



universität
wien

MASTERARBEIT / MASTER'S THESIS

Titel der Masterarbeit / Title of the Master's Thesis

Bestimmung von ^{236}U und Pu-Isotopen in Luftfiltern und
Lungenaschen aus den frühen 1960er Jahren

verfasst von / submitted by

Hasan Hüseyin Uguz, BSc

angestrebter akademischer Grad / in partial fulfilment of the requirements for the degree of
Master of Science (MSc)

Wien, 2019 / Vienna 2019

Studienkennzahl lt. Studienblatt /
degree programme code as it appears on
the student record sheet:

A 066 862

Studienrichtung lt. Studienblatt /
degree programme as it appears on
the student record sheet:

Masterstudium Chemie

Betreut von / Supervisor:

ao. Univ.-Prof. Mag. Dr. Gabriele Wallner

Danksagung

Allen voran möchte ich ao. Univ.-Prof. Mag. Dr. Gabriele Wallner für die Möglichkeit die vorliegende Arbeit durchzuführen und für ihr Vertrauen, das sie in mich gesetzt hat, danken.

Ich danke Dr. Karin Hain für die AMS-Messungen meiner Proben.

Des Weiteren möchte ich Ing. Wolfgang Obermaier für die engagierte Betreuung und für den fachlichen Austausch danken.

Herzlich möchte ich mich bei meiner Mutter Senay Uguz und meinem Vater Mag.rer.nat. Haydar Uguz bedanken. Vor allem meiner wunderbaren Mutter danke ich dafür, dass sie mir immer wieder die unerlässlichen Dinge des Alltags abgenommen hat und mit ihrem liebevoll zubereiteten Essen dafür gesorgt hat, dass ich körperlich und auch seelisch diese intensive Zeit gut überstehen konnte.

Von ganzem Herzen möchte ich mich bei meiner Freundin Diana Arnhold für ihre immerwährende moralische Motivation und für die Unterstützung beim Verfassen dieser Arbeit danken.

Zu guter Letzt gilt mein Dank meinen Freunden Erdem Yildiz, Chen Jin und Milan Zaric, die jederzeit für mich da sind und wahre Freunde fürs Leben sind.

Inhaltsverzeichnis

1.	Einleitung.....	6
2.	Uran.....	8
2.1.	Physikalische und chemische Eigenschaften von Uran und die Verwendung	11
2.2.	Die Urananreicherung	13
2.3.	Entstehung von ^{236}U	14
2.3.1.	Natürlich	14
2.3.2.	Anthropogen	14
3.	Plutonium	16
3.1.	Physikalische und chemische Eigenschaften von Plutonium	19
4.	Geschichtlicher Hintergrund der Atomwaffentests	21
5.	Beschleunigermassenspektrometrie (AMS).....	23
6.	Vorangegangene Analysen.....	27
7.	Vorversuche und Ausbeutebestimmung mittels α -Spektrometrie.....	31
7.1.	Vorversuche und Ausbeutebestimmung für die Uranbestimmung	31
7.2.	Vorversuche und Ausbeutebestimmung für die Plutoniumbestimmung	36
8.	Methoden und praktische Durchführung für die AMS-Messung.....	38
8.1.	Aufarbeitung der Luftfilter für die Uranmessung.....	38
8.2.	Aufarbeitung der Luftfilter für die Plutoniummessung.....	41
8.3.	Aufarbeitung der Lungenaschen für die Plutoniummessung.....	42
9.	Ergebnisse und Diskussion	45
9.1.	Plutonium Luftfilter	45
9.1.1.	Atomverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ Luftfilter.....	47
9.1.2.	^{239}Pu [at/m ³], ^{240}Pu [at/m ³] und Aktivitätssumme [Bq/m ³].....	50
9.2.	Uran Luftfilter	55
9.2.1.	Atomverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ Luftfilter.....	55
9.2.2.	^{236}U [at/m ³] und Aktivität [Bq/m ³].....	58
9.3.	Plutonium Lungenasche	62
10.	Ausblick.....	66
11.	Literaturverzeichnis.....	67
12.	ANHANG	72
12.1.	Zusammenfassung.....	72
12.2.	Abstract	74
12.3.	Hochreine Chemikalien und ihre Hersteller	76
12.4.	Probenliste Luftfilter.....	77

12.5.	Ergebnisse der linearen Fehlerfortpflanzung	85
12.6.	α -Spektren der Proben für die Ausbeutebestimmung.....	89
12.7.	Ergebnisse der S2 Picofox Spurenelementanalyse.....	90

1. Einleitung

Im Zuge dieser Masterarbeit sollte der Gehalt an ^{236}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu und das Isotopen- bzw. Atomverhältnis von $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ bzw. $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ in Luftfiltern aus den Jahren 1962-1966 von der Messstelle Wien Hohe Warte bestimmt werden. Aufbauend auf den Masterarbeiten von P. Zima (1) und W. Moser (2), in denen menschliche Lungenaschen von Verstorbenen der Jahre 1961 bis 1965 aus dem Großraum Wien untersucht worden sind, sollte eine direkte Bestimmung der Radionuklide in der Luft erfolgen, ohne dass biologische Prozesse eine Rolle spielen. Des Weiteren wurde der Gehalt an ^{239}Pu und ^{240}Pu sowie das $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Verhältnis an ausgewählten Lungenaschen nach Aufschluss mit konzentrierter Flusssäure und Salpetersäure untersucht.

Am 16. Juli 1945 5:29:45 Uhr Ortszeit schmolz im Bundesstaat New Mexico die erste nukleare Explosion (Trinity Test) mit einer Sprengkraft von 21 Kilotonnen TNT-Äquivalent 4 Hektar Sand zu Glas und leitete damit das Atomzeitalter ein. (3) Zwischen 1945 und 2006 führten insgesamt 2056 nukleare Explosionen zu einer weltweiten Verteilung verschiedener Radionuklide. Diese gelangten durch Fallout und Washout wieder auf die Erdoberfläche. Anthropogene Einträge von Actinoiden in die Umwelt erfolgten auch durch (sowohl legale als auch störungsbedingte) Freisetzung aus Reaktoren und Wiederaufbereitungsanlagen. Weitere Kontaminationen der Umwelt geschahen beispielsweise am 21. April 1964 beim Verglühen des US-Weltraumsatelliten SNAP 9 A, welcher mit einer ^{238}Pu -Isotopenbatterie betrieben wurde, und bei der Nuklearkatastrophe von Tschernobyl 1986. (4) (5)

^{236}U entsteht in der Natur kontinuierlich durch Neutroneneinfang aus ^{235}U und ist somit in der Umwelt omnipräsent. Da aber die natürlichen Konzentrationen sehr gering sind (Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U} \leq 10^{-10}$), können bereits kleinste Mengen anthropogenes ^{236}U das $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ Verhältnis signifikant verändern. Aus diesem Grund können anthropogene Einflüsse anhand des ^{236}U Gehalts und der Isotopenverhältnisse ermittelt werden. ^{236}U kann auch als Indikator (englisch: tracer) für geochemische und ozeanische Prozesse verwendet werden. (6)

^{239}Pu ist in der Umwelt natürlich nur im Ultraspurenbereich vorzufinden, wird aber in großen Mengen in Kernreaktoren hergestellt. Durch das Verhältnis von ^{240}Pu zu ^{239}Pu ist es möglich, auf die Herkunft der Kontamination der Umwelt durch das anthropogene Plutonium zu schließen. Während das bisher als Tracer verwendete ^{137}Cs (Halbwertszeit 30,07 Jahre) bereits

auf <35% der ursprünglichen Fallout-Aktivität zerfallen ist, haben jüngste Studien gezeigt, dass sich auch ^{239}Pu gut als Tracer für Sedimentanalysen eignet. (7) (8) (9)

Die Vermessung der Proben erfolgte am Beschleuniger-Massenspektrometer (englisch: AMS - Accelerator Mass Spectrometer) des Vera Laboratoriums (Vienna Environmental Research Accelerator, Fakultät für Physik der Universität Wien). Die im Jahre 1996 in Betrieb gegangene Anlage wurde 2001 erweitert, um Beschleuniger-Massenspektrometrie von langlebigen Radioisotopen im gesamten Bereich der Nuklidkarte zu ermöglichen. Das Herz der Beschleunigeranlage ist ein 3MV Pelletron Tandembeschleuniger der National Electrostatics Corporation (NEC), USA. Die Anlage wurde mit dem Ziel errichtet langlebige natürliche und künstliche Radionuklide in den sieben Domänen der Umwelt, nämlich Atmosphäre, Biosphäre, Hydrosphäre, Kryosphäre, Lithosphäre, Kosmosphäre und Technosphäre, zu untersuchen. (10) (11)

Da Actinoide wie ^{236}U und Pu-Isotope in Umweltproben nur im Ultraspurenbereich vorzufinden sind und überdies alpha-spektrometrisch nicht voneinander (^{239}Pu und ^{240}Pu) oder von einem häufigeren Isotop (^{235}U und ^{238}U) zu trennen sind, erfordert die Messung dieser Proben Methoden sehr hoher Empfindlichkeit. Das ICP-MS, das am häufigsten verwendete Massenspektrometer für die Untersuchung von Actinoiden, erreicht ein Detektionslimit von $^{236}\text{U}/^{238}\text{U} = 10^{-8}$. Die Thermionenmassenspektrometrie (TIMS) ist eine Methode mit der ein Detektionslimit von $^{236}\text{U}/^{238}\text{U} = 10^{-10}$ erreicht werden kann. Verglichen mit diesen Methoden ist das AMS in der Lage, $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Verhältnisse von 10^{-14} zu messen. (6) (12) (13) (14) (15)

2. Uran

Uran wurde vom deutschen Chemiker Martin Heinrich Klaproth im Jahre 1789 in einem aus Pechblende isolierten Oxid entdeckt und nach dem von W. Herschel im Jahre 1781 neu entdeckten Planeten Uranus benannt. Erst fünfzig Jahre später gelang es dem französischen Chemiker Eugène-Melchior Péligot erstmals 1841 elementares Uran durch die Reduktion des Tetrachlorids mit Kalium zu gewinnen. Uranverbindungen wurden im 19. Jahrhundert zum Färben von Glas und Keramik verwendet. Im Jahre 1896 entdeckte Henri Becquerel bei der Untersuchung von Uranverbindungen die Radioaktivität. Er stellte fest, dass sich Fotoplatten durch Präparate, die er in der Nähe deponierte, schwärzten. Da dies in einem dunklen Raum geschah, konnte Becquerel Phosphoreszenz, welche ihm zu dieser Zeit bereits bekannt war, ausschließen. Zwei Jahre später stellte Marie Curie fest, dass Thorium ähnliche Eigenschaften aufweist und entdeckte zusammen mit ihrem Ehemann Pierre Curie Polonium und später Radium. Mit der Entwicklung von Messgeräten für die genauere Messung von Radioaktivität, wie zum Beispiel dem Geiger-Müller-Zählrohr, stellte man fest, dass auch bei Abwesenheit eines zu vermessenden radioaktiven Präparates Strahlung (natürliche Hintergrundstrahlung) auftritt. Im Jahre 1912 beobachtete der österreichische Physiker Victor Franz Hess bei Ballonaufstiegen, dass sich die Zählrate bei einer Höhe von 9000m um einen Faktor von 12 erhöht und entdeckte somit die kosmische Strahlung. (4) (16) (17)

In den 1950er Jahren wurden die ersten Kernkraftwerke errichtet, welche die freiwerdende Energie ausnutzen, die durch die neutroneninduzierte kontrollierte Spaltung von ^{235}U entstand. Bei der Spaltung eines ^{235}U -Kerns wird 225 MeV Energie freigesetzt. Dies entspricht 9×10^{10} J bei der Spaltung von 1 g ^{235}U . Im Vergleich dazu werden bei der Verbrennung von 1 g reiner Kohle nur etwa 4×10^2 J Energie frei. (18)

In der Erdkruste kommen hauptsächlich vier Isotope von Uran natürlich vor: Die primordialen Nuklide ^{238}U (Massenanteil: 99%) und ^{235}U (Massenanteil: 0,72%), das radiogene Nuklid ^{234}U (Massenanteil: 0,0054%) und Spuren von ^{236}U . Die Uran-Radium-Reihe beginnt mit dem Zerfall des primordialen Nuklids ^{238}U und endet mit ^{206}Pb . ^{234}U gehört zu den Nukliden dieser Zerfallsreihe. Das ebenfalls primordiale ^{235}U -Isotop startet die Uran-Actinium-Reihe. Diese Isotope und deren Halbwertszeiten, Zerfallsarten, Häufigkeiten und α -Energien sind in Tabelle 1 aufgelistet. (18) (19) (20)

Tabelle 1: Halbwertszeiten, Zerfallsarten, Häufigkeiten und α -Energien der Uranisotope ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U und ^{238}U (18) (19) (20)

Isotop	Halbwertszeit [a]	Zerfallsart	Energie [MeV]	Häufigkeit [%]
^{234}U	$2,45 \cdot 10^5$	α -Zerfall	4.775 & 4.722	0,0054
^{235}U	$7,04 \cdot 10^8$	α -Zerfall	4.398 & 4.366	0,7204
^{236}U	$2,34 \cdot 10^7$	α -Zerfall	4.494 & 4.445	Spurenbereich
^{238}U	$4,47 \cdot 10^9$	α -Zerfall	4.198 & 4.151	99,2742

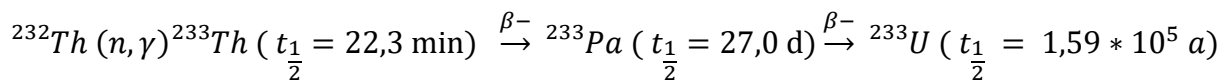
Die durchschnittliche Konzentration von natürlichem Uran in der Erdkruste beträgt 2,7ppm (im Meereswasser: 3ppb). Die Werte der Urankonzentrationen können je nach Matrix stark schwanken. In Bodenproben wurden Urankonzentrationen von 0.1 – 10 mg/kg, in Wasserproben (Oberflächenwasser, Grundwasser, Mineralwasser) Konzentrationen von 0.01 – 1 500 $\mu\text{g/l}$ und in der Luft Konzentrationen von $8.1 \cdot 10^{-9}$ – $8.1 \cdot 10^{-7}$ mg/m³ gemessen. (21)

Das natürliche Verhältnis von $^{236}\text{Uran}/^{238}\text{Uran}$ in tiefen Schichten der Erdkruste, welche von kosmischer Strahlung nicht beeinflusst werden, beträgt $3 \cdot 10^{-14}$. Dieses Verhältnis ist für verschiedenes geologisches Material unterschiedlich und kann an der Erdoberfläche ein starkes Indiz für den Ursprung der anthropogenen Kontaminationen sein. Das $^{236}\text{Uran}/^{238}\text{Uran}$ Verhältnis für Uranerz beträgt 10^{-12} – 10^{-10} . (12) Im stationären Zustand (englisch: steady state) wird das $^{236}\text{Uran}/^{238}\text{Uran}$ Verhältnis von typischen Gesteinen der Erdkruste auf $7 \cdot 10^{-13}$ geschätzt. In Flusswasser und Meereswasser beträgt das $^{236}\text{Uran}/^{238}\text{Uran}$ Verhältnis laut Steier et al. (9) 10^{-14} – 10^{-13} . In anthropogen belasteten Böden in der Nähe von Tschernobyl wurden $^{236}\text{Uran}/^{238}\text{Uran}$ Werte von 10^{-7} – 10^{-3} gemessen. Im Kosovo wurden, aufgrund der Belastung durch DU-Munition (englisch: depleted uranium), in Böden Werte von 10^{-7} – 10^{-3} gemessen. In Bodenproben in der Nähe zweier Uranaufbereitungsanlagen in den Vereinigten Staaten sind Werte von 10^{-6} – 10^{-4} gemessen worden, während im Geweih von europäischen Rehen aus den Jahren 1955-1977 Werte von $(0,67-4,02) \cdot 10^{-6}$ gefunden wurden. Bei Reaktor-bestrahltem Uran sind Werte von 10^{-2} zu erwarten. (22) (23) (24)

Der globale Gehalt von ^{236}U wird von Steier et al. in den oberen Schichten der Erdkruste auf rund 30kg und in den Ozeanen auf weniger als 0,5kg geschätzt. Steier et al. nehmen weiter an, dass der Gehalt von anthropogen hergestelltem $^{236}\text{Uran}$ in der Größenordnung von 10^6kg liegen muss, wenn man annimmt, dass $2,2 \cdot 10^9$ kg Uran bis 2003 abgebaut worden ist und 50% des ^{235}U in Kernkraftwerken verbraucht worden ist. ^{236}U entsteht in Kernkraftwerken aus

der Reaktion von thermischen Neutronen mit ^{235}U . Basierend auf der Tatsache, dass bereits kleinste Mengen an bestrahltem Uran das $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ Verhältnis signifikant verändern können, kann ^{236}U als „Tracer“ sowohl in der nuklearen Forensik als auch für verschiedenste Umweltprozesse verwendet werden, da anthropogene Quellen einen charakteristischen Fingerabdruck hinterlassen. (9) (25)

^{233}U ist ein weiteres anthropogen hergestelltes Uran-Isotop. Neben ^{235}U , ^{239}Pu und ^{241}Pu kann auch ^{233}U als Brennstoff in Kernwaffen und Kernreaktoren verwendet werden. In einem Reaktor kann ^{233}U durch das Bestrahlen von ^{232}Th mit Neutronen durch folgende Reaktion hergestellt werden (18):



^{233}U ist ebenfalls ein α -Strahler mit α -Energien von 5,789 MeV (13,2%) und 4,82 MeV (84,4%).

Abbildung 1 zeigt (a) das simulierte und (b) das reale α -Spektrum der fünf Uranisotope ^{232}U , ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U und ^{238}U . (18)

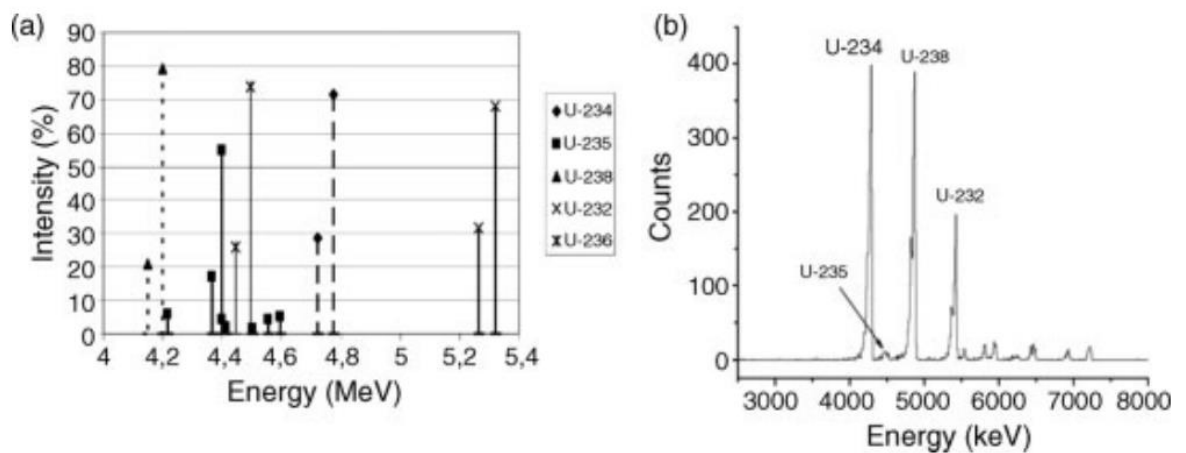


Abbildung 1: a) simulierte b) reale Spektren α -Spektren der fünf Uranisotope ^{232}U , ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U und ^{238}U (18).

Obwohl die α -Peaks von ^{235}U und ^{236}U überlappen, können sie, wenn die Aktivitäten der beiden Isotopen in derselben Größenordnung liegen, rechnerisch voneinander getrennt werden. Da das $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Verhältnis im natürlichen Uran konstant ist, kann durch den ^{238}U -Peak der Beitrag von ^{235}U von der Summe des überlappten ^{235}U und ^{236}U Peaks abgezogen werden. (18)

2.1. Physikalische und chemische Eigenschaften von Uran und die Verwendung

Tabelle 2: Physikalische und chemische Eigenschaften von Uran (26)

Symbol, Ordnungszahl	U	92
Aussehen	silbrig-weiß	
Vorkommen, Erz	USA, Kanada, Skandinavien, Südafrika, Deutschland, Tschechien	Pechblende, Carnotid
Massenanteil in der Erdhülle (ppm)	3,2	
Atommasse (u)	238,039	
Elektronegativität (Pauling)	1,38	
Elektronenkonfiguration	$[\text{Rn}]7s^2 6d^1 4f^3$	
Magnetismus	paramagnetisch	
Einfangsquerschnitt Neutronen (barns)	586 (^{235}U)	
Kristallsystem	orthorhombisch	
Dichte (g/cm^3 , bei 298 K)	19,16	
Schmelzpunkt ($^{\circ}\text{C}$)	1133	
Siedepunkt ($^{\circ}\text{C}$)	3930	
Atomradius (berechnet, pm)	139	
Kovalenter Radius (pm)	142	
Ionenradius (pm)	80 („ U^{6+} “)	

Uran ist ein silberweißes, relativ weiches Schwermetall mit einer Dichte von $19,16\text{g/cm}^3$. In Abhängigkeit von der Temperatur kommt es in drei Modifikationen vor: orthorhombisches α -Uran unter einer Temperatur von 688°C , tetragonal kristallisierendes β -Uran zwischen 688 und 776°C und kubisches γ -Uran oberhalb einer Temperatur von 776°C . In fein verteiltem Zustand ist Uran selbstentzündlich. Uran korrodiert an der Luft. Von Säuren kann metallisches Uran aufgelöst werden, während es von Basen nicht angegriffen wird. Uranverbindungen treten in Oxidationsstufen 2+ bis 6+ auf. MacDonald et al. gelang es kürzlich Uran-II-Verbindungen, durch die Reduktion einer Uran-III-Verbindung unter Verwendung in situ erzeugter Alkalide, herzustellen. (26) (27) (28)

Uran wird heute fast ausschließlich als Kernbrennstoff verwendet. Der Spaltstoff ^{235}U kommt in natürlichem Uran nur mit einem Massenanteil von 0,72% vor und muss dementsprechend angereicht werden, bevor er als nuklearer Brennstoff verwendet werden kann. In der Regel wird schwach angereichertes Uran (ca. 3% ^{235}U), auch „LEU“ (englisch: lightly enriched uranium) genannt, in Kernkraftwerken eingesetzt, während hochangereichertes Uran, auch

„HEU“ (englisch: highly enriched uranium) genannt, in Kernwaffen und für medizinische Forschungszwecke verwendet wird. Ist eine Anreicherung des ^{235}U Isotops von 20% erreicht, spricht man von hochangereichertem Uran. Die nach der Anreicherung zurückbleibende Fraktion wird abgereichertes Uran genannt (englisch: depleted uranium). Die kritische Masse von ^{235}U , die für eine spontan ablaufende Kettenreaktion nötig ist, beträgt etwa 49kg. Sie kann aber mit einem 30cm dicken Neutronenreflektor aus Stahl auf etwa 17 kg abgesenkt werden. Während ^{235}U in Kernkraftwerken zur Energiegewinnung genutzt wird, wird ^{238}U zum Brüten von Plutonium verwendet. Bei der Spaltung eines ^{235}U -Kerns werden 225 MeV Energie freigesetzt, von denen ca. 90% in einem Reaktor thermisch verwertbar sind. Die Strommenge, die tatsächlich aus 1kg natürlichem Uran erzeugt werden kann, ist abhängig vom Reaktortyp und Brennstoffkreislauf und kann sich zwischen 36 und 56 MWh bewegen. Das abgereicherte Uran kann als Abschirmmaterial im Strahlenschutz, als Ausgleichsgewicht in Flugzeugen und als panzerbrechende Munition bzw. Panzerung verwendet werden. Kernreaktoren können auch als Antrieb für Kriegsschiffe, U-Boote und Eisbrecher verwendet werden. (26) (29) (30) (31)

2.2. Die Urananreicherung

Mit einem Wirkungsquerschnitt von 586 barn gehört ^{235}U zu den wenigen Nukliden, die eine nukleare Kettenreaktion aufrechterhalten können. Als Urananreicherung wird jeder Prozess verstanden, der zu einer Veränderung der Isotopenzusammensetzung zugunsten des Isotops ^{235}U führt. Das gängigste Verfahren zur Anreicherung ist heutzutage das Gaszentrifugenverfahren. Bevor das Uran in einer Gaszentrifuge angereichert werden kann, muss es gereinigt und in Uranhexafluoridgas (UF_6) umgewandelt werden. Das Uranhexafluoridgas wird in den sich sehr schnell rotierenden Zylinder eingeleitet. Bedingt durch die Zentrifugalkraft reichern sich die schweren $^{238}\text{UF}_6$ -Moleküle in der Nähe der Innenwand des Zylinders an, während sich die leichten $^{235}\text{UF}_6$ -Moleküle im Zentrum des Zylinders anreichern (siehe Abbildung 2). Da die erwünschte Trennleistung nicht durch eine einzelne Gaszentrifuge erreicht werden kann, werden die Zentrifugen zu sogenannten Kaskaden mit hunderten Einzelzentrifugen verbunden. UF_6 ist bei diesem rein physikalischen Prozess sowohl Ausgangsmaterial als auch Endprodukt und wird in speziell dafür vorgesehenen standardisierten Zylindern an die Endnachfrage geliefert. (32)

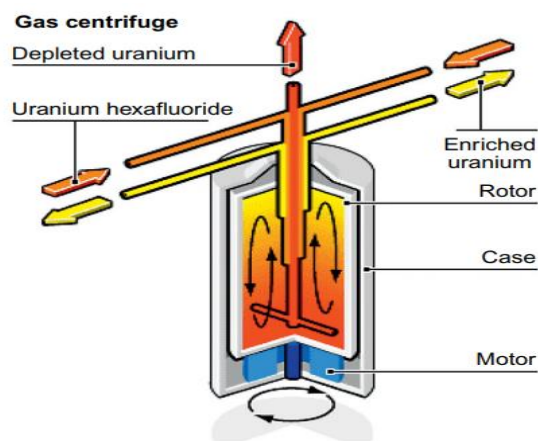


Abbildung 2: Gaszentrifuge (32)

2.3. Entstehung von ^{236}U

2.3.1. Natürlich

^{236}U hat eine Halbwertszeit von $2,34 \cdot 10^7$ a und entsteht in der Natur primär durch den Einfang von thermischen Neutronen aus ^{235}U . Dies entspricht der Reaktion $^{235}\text{U} (n,\gamma) ^{236}\text{U}$, welche in Abbildung 3 dargestellt ist. Die Neutronen entstehen aus (α,n) Reaktionen an leichten Elementen der Erdkruste, wie zum Beispiel Na und Mg. Die α -Partikel wiederum stammen aus den Zerfällen der Uran- und Thorium-Reihen. Die thermischen Neutronen können aber auch aus der kosmischen Strahlung, aus dem spontanen Zerfall von ^{238}U oder aus dem induzierten Zerfall von ^{235}U stammen. Ein kleiner Anteil des natürlichen ^{236}U entsteht vermutlich aber auch aus der $(n,3n)$ Reaktion von ^{238}U mit schnellen Neutronen aus der kosmischen Höhenstrahlung. Diese Reaktion ist in Abbildung 4 dargestellt. (12) (24)

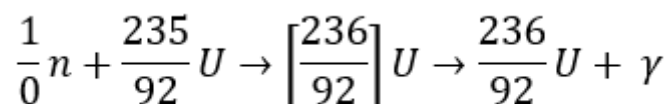


Abbildung 3: Einfang von thermischen Neutronen und die Entstehung von ^{236}U aus ^{235}U

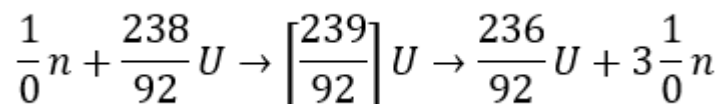


Abbildung 4: $(n,3n)$ Reaktion von ^{238}U mit schnellen Neutronen aus der kosmischen Höhenstrahlung

2.3.2. Anthropogen

Der anthropogene Eintrag von ^{236}U ist weit größer als die Vorkommen in der Natur. Ursprung des Eintrags sind hauptsächlich Ableitungen aus nuklearen Anlagen, atomare Explosionen und Unfälle.

In Kernkraftwerken reagieren thermische Neutronen mit ^{235}U . Bei dieser Reaktion kommt es in 85% der Fälle zur Spaltung, aus der verwertbare Energie gewonnen wird. Allerdings kommt

es mit einer Wahrscheinlichkeit von 15% auch zur unerwünschten Bildung von ^{236}U . Diese Reaktionen sind in Abbildung 5 und Abbildung 6 dargestellt. (33)

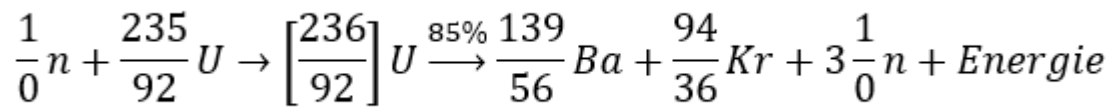


Abbildung 5: Spaltung von ^{235}U durch thermische Neutronen und die Gewinnung verwertbarer Energie

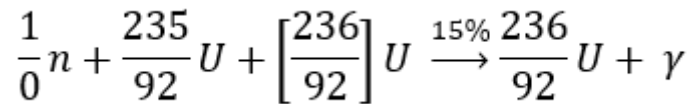


Abbildung 6: Die unerwünschte Reaktion mit ^{236}U als Produkt

Weiters entsteht ^{236}U aus dem α -Zerfall von ^{240}Pu , welches sich auf der Erde ebenfalls als globaler Fallout verteilt hat. Die Konzentrationen und Vorkommen von Plutonium Isotopen, sowie die $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Verhältnisse wurden in der Vergangenheit bereits eingehend untersucht. Die ^{236}U Entstehung aus ^{240}Pu 40 Jahre nach Deposition, wird von Steier et al. auf $1.0 \times 10^9 - 5.0 \times 10^{11}$ Atome/ m^2 geschätzt. Für diese Schätzung wurde die Halbwertszeit von ^{240}Pu (6563 Jahre) und die $^{239+240}\text{Pu}$ Werte 10–200 Bq/ m^2 vom globalen Fallout verwendet, welche von Yamamoto et al. in Japan 1983 beschrieben wurden. Diese Reaktion ist in Abbildung 7 dargestellt. (12) (34)

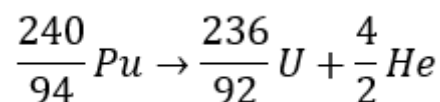


Abbildung 7: Entstehung von ^{236}U aus dem α -Zerfall von ^{240}Pu

Anthropogen entsteht ^{236}U in großen Mengen auch durch den Einfang von thermischen Neutronen in nuklearen und thermonuklearen Explosionen (bei letzteren ist die eigentliche Fusionsbombe von einem Uran-Mantel umgeben). Diese Reaktion ist in Abbildung 3 bereits dargestellt. Auch die $^{238}\text{U}(n,3n)^{236}\text{U}$ Reaktion, wie sie in Abbildung 4 beschrieben ist, findet in nuklearen Explosionen statt und sorgt für einen großen anthropogenen Eintrag von ^{236}U .

In Bodenproben, die durch globalen Fallout belastet sind, werden durchschnittliche Werte für ^{236}U von 10^8 at/g erwartet. Laut Sakaguchi et al. ist diese Zahl bedeutsamer als das $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ Verhältnis, da die ^{238}U -Konzentration der Bodenmatrix sehr stark variieren kann und so das Verhältnis auch von der ^{238}U -Konzentration abhängt. (12)

3. Plutonium

Plutonium ist mit einem Gehalt von 2×10^{-16} ppm wohl das seltenste in der Erdkruste vorkommende Element. In geringen Mengen entsteht Plutonium in natürlich vorkommendem Uran durch Neutroneneinfang. Der US-amerikanische Chemiker D. F. Peppard extrahierte im Jahre 1951 wenige μg ^{239}Pu aus kongolesischem Pechblendekonzentrat. Für die Erzeugung von $1 \mu\text{g}$ ^{239}Pu mussten 100t Pechblende verarbeitet werden. Erst im Jahr 1971 entdeckte man im Mineral Bastnäsit das langlebigste Plutoniumisotop ^{244}Pu . (35) (36)

3-5t Plutonium wurden durch oberirdische Kernwaffentests, die zwischen 1945 und 1980 durchgeführt wurden, über die ganze Erdkugel verteilt. Ein weiterer beträchtlicher anthropogener Eintrag erfolgte bei Unfällen mit Kernwaffen oder Kernreaktoren. Weitere Beispiele für anthropogene Einträge sind Unfälle von mit Radionuklidbatterien betriebenen Satelliten beim Wiedereintritt in die Erdatmosphäre (Transit 5BN-3, Kosmos 954 und Apollo 13), der Brand des Reaktors von Windscale (heute Sellafield) im Jahre 1957, die Reaktorexlosion in Fukushima und die Reaktorkatastrophe von Tschernobyl im Jahre 1986. (26)

Die wichtigsten Plutoniumisotope und deren Halbwertszeiten, Zerfallsarten und α - β -Energien sind in Tabelle 3 aufgelistet.

Tabelle 3: Halbwertszeiten, Zerfallsarten und α - β -Energien der Plutoniumisotope ^{236}Pu , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu und ^{244}Pu (26)

Isotop	Halbwertszeit [a]	Zerfallsart	Energie [MeV]	Beispiel für die Produktion
^{236}Pu	2,56	α	5.768 (69%), 5.721 (31%)	$^{235}\text{U}(\alpha, 3n)$
^{238}Pu	87,7	α	5.499 (70.9%), 5.456 (29.0%)	^{238}Np Tochter
^{239}Pu	$2,411 \times 10^4$	α	5.157 (70.77%), 5.144 (15.1%), 5.105 (11.5%)	^{239}Np Tochter
^{240}Pu	6.561×10^3	α	5.168 (72.8%), 5.124 (27.1%)	Einfang mehrerer Neutronen
^{241}Pu	14,35	$\beta^- > 99,99\%$ $\alpha 2,45 \times 10^{-3}\%$	20.8 keV 4.896 (83.2%), 4.853 (12.2%)	Einfang mehrerer Neutronen

^{242}Pu	3.75×10^5	α	4.902 (76.49%), 4.856 (22.4%)	Einfang mehrerer Neutronen
^{244}Pu	8.08×10^7	α	4.589 (81%), 4.546 (19.4%)	Einfang mehrerer Neutronen

Die häufigsten Isotope in der Umwelt und in Nuklearabfällen sind allerdings ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , und ^{241}Pu . Im Vergleich zu den anderen Isotopen wird ^{242}Pu in Kernreaktoren nur in geringen Mengen hergestellt. (18)

Das mit thermischen Neutronen spaltbare ^{239}Pu mit einer kritischen Masse von 10kg, also ein Fünftel der kritischen Masse von ^{235}U , gehört zu den wichtigsten Pu-Isotopen. Aufgrund der geringen kritischen Masse wurde ^{239}Pu auch in Atomwaffen eingesetzt. Das meiste ^{239}Pu wurde in Kernreaktoren durch den Beschuss von ^{238}U mit Neutronen hergestellt. Dabei entsteht ^{239}U , welches über ^{239}Np zu ^{239}Pu zerfällt. Diese Reaktion ist in Abbildung 8 dargestellt. (18) (26)

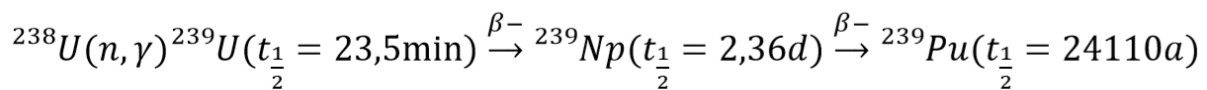


Abbildung 8: Entstehung von ^{239}Pu durch den Beschuss von ^{238}U mit Neutronen

Aufgrund seines α -Zerfalls und der damit verbundenen hohen Leistungsdichte von $6,8 \text{ W/cm}^3$ wird ^{238}Pu zum Betreiben von Satelliten verwendet. ^{238}Pu wird in hohen Mengen in nuklearen Explosionen und in Kernreaktoren hergestellt. Es entsteht aus ^{238}U und ^{235}U durch den Beschuss mit Neutronen. Diese Reaktionen sind in Abbildung 9 und 10 dargestellt. (18)

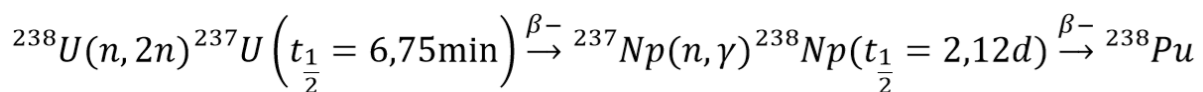


Abbildung 9: Entstehung von ^{238}Pu aus ^{238}U durch den Beschuss mit Neutronen

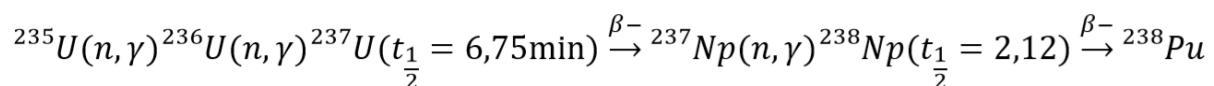


Abbildung 10: Entstehung von ^{238}Pu aus ^{235}U durch den Beschuss mit Neutronen

Die Pu-Isotope mit den höheren Massen können durch sukzessiven Neutroneneinfang aus ^{239}Pu hergestellt werden: $^{239}\text{Pu}(n, \gamma) ^{240}\text{Pu}(n, \gamma) ^{241}\text{Pu}(n, \gamma) ^{242}\text{Pu}$. ^{243}Pu ist, aufgrund seines kleinen Neutronen-Einfangsquerschnitts, kaum noch in der Lage weitere Neutronen zu absorbieren.

Dieser Prozess des sukzessiven Neutroneneinfangs ist daher bei ^{243}Pu beendet. Da das Verhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ eine Funktion des Neutronenflusses ist, kann durch das ermittelte Verhältnis auf die Quelle des Plutoniums geschlossen werden. (18)

Das durchschnittliche $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Verhältnis im globalen Fallout aus den atmosphärischen Atomwaffentests beträgt $0,178 \pm 0,023$. In der Umgebung von Tschernobyl ist das Verhältnis höher und beträgt $0,38 \pm 0,07$. (9) Es ist auch möglich anhand des Verhältnisses auf die Art der durchgeführten Bombentests zu schließen. Das $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Verhältnis in Proben, die durch neutronenreiche, thermonukleare Tests der USA aus den Jahren 1951-1958 kontaminiert wurden, beträgt 0,32-0,36. Deutlich niedriger liegt das Verhältnis bei den Tests der UdSSR der Jahre 1961-1962, nämlich bei 0,18 und bei den Tests der Franzosen aus den Jahren 1966-1974 liegt es bei 0,09. (2)

Tabelle 4 zeigt die anthropogenen Quellen für Plutonium in der Umwelt. Sie verdeutlicht, dass der mit Abstand größte Eintrag durch Atomwaffentests erfolgt ist. Es wird geschätzt, dass dieser Eintrag 85% der Plutoniumaktivität in der Umwelt ausmacht. Beabsichtigtes oder unbeabsichtigtes Entleeren von radioaktivem Material in die Umwelt ist in dieser Tabelle nicht enthalten. Allerdings wird hierbei angenommen, dass dieses nur einen sehr geringen Anteil der Plutoniumaktivität in der Umwelt ausmacht. (18)

Tabelle 4: Die anthropogenen Quellen für Plutonium in der Umwelt [Bq] (18)

Radionuklide	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu	$^{239}+^{240}\text{Pu}$	Gesamt
Atomwaffentests	$3,3 \times 10^{14}$	$6,5 \times 10^{15}$	$4,4 \times 10^{15}$	$1,4 \times 10^{17}$	$1,6 \times 10^{13}$	$12,6 \times 10^{15}$	$1,7 \times 10^{17}$
SNAP-9A Satellit, 1964	$6,3 \times 10^{14}$	-	-	-	-	-	$6,3 \times 10^{14}$
B-52G-Bomber Unglück, Spanien 1966	-	-	-	-	-	$5,5 \times 10^{10}$	$5,5 \times 10^{10}$
B-52 Absturz, Grönland 1968	-	-	-	-	-	1×10^{13}	1×10^{13}
Nuklearkatastrophe von Tschernobyl 1986	$3,5 \times 10^{13}$	3×10^{13}	$4,2 \times 10^{13}$	6×10^{15}	$7,0 \times 10^{10}$	$7,2 \times 10^{13}$	6×10^{15}
Brand Plutoniumfabrik Sellafield	$1,2 \times 10^{14}$	-	-	$2,2 \times 10^{16}$	-	$6,1 \times 10^{14}$	$2,2 \times 10^{16}$
Wiederaufbereitungsanlage La Hague	$2,7 \times 10^{12}$	-	-	$1,2 \times 10^{14}$	$1,7 \times 10^9$	$3,4 \times 10^{12}$	$1,4 \times 10^{14}$

Bis auf ^{241}Pu zerfallen alle Pu-Isotope, die in Tabelle 3 aufgelistet sind, über α -Zerfall. Bei ^{241}Pu kommt es hauptsächlich zum β -Zerfall. Die geläufigsten radiometrischen Methoden für die Messung von Plutoniumisotopen sind die α -Spektrometrie und die

Flüssigszintillationsmessung. ^{238}Pu , ^{239}Pu und ^{240}Pu werden mittels α -Spektrometrie vermessen, während bei ^{241}Pu der Flüssigszintillationszähler verwendet wird. Mit der α -Spektrometrie ist es nicht möglich, die nahe beieinander liegenden α -Peaks von ^{239}Pu (5,16MeV) und ^{240}Pu (5,17MeV) voneinander zu trennen. Deshalb werden diese zwei Peaks zu $^{239,240}\text{Pu}$ aufsummiert. Des Weiteren ist anzumerken, dass es bei der Messung von ^{238}Pu und $^{239,240}\text{Pu}$ zum Überlappen der Peaks durch die Zerfälle von ^{241}Am , ^{210}Po , ^{224}Ra , ^{229}Th , ^{231}Pa , ^{232}U und ^{242}Am kommen kann. Deshalb muss eine effektive chemische Abtrennung dieser Radionuklide vor der Messung vorgenommen werden. (18)

Die in dieser Arbeit zum Einsatz gekommene AMS bietet eine hervorragende Möglichkeit der Detektion von ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu und ^{244}Pu mit einem Detektionslimit von etwa $2,3 \times 10^6 \text{at/Probe}$ ($=2,1 \mu\text{Bq/Probe}$) für ^{239}Pu und $1,1 \times 10^5 \text{at/Probe}$ ($=0,37 \mu\text{Bq/Probe}$) für ^{240}Pu . Der Vorteil der AMS gegenüber anderen massenspektrometrischen Techniken liegt darin, dass die Interferenz von $^{238}\text{U}^1\text{H}$ mit ^{239}Pu und von $^{238}\text{U}^2\text{H}$ mit ^{240}Pu in dem sogenannten „stripping“-Prozess beseitigt werden kann. (18) (37)

3.1. Physikalische und chemische Eigenschaften von Plutonium

Tabelle 5: Physikalische und chemische Eigenschaften von Plutonium (26)

Symbol, Ordnungszahl	Pu	94
Aussehen	silbrig	
Vorkommen, Erz	Pechblende	
Massenanteil in der Erdhülle (ppm)	2×10^{-16}	
Atommasse (u)	244,064	
Elektronegativität (Pauling)	1,28	
Elektronenkonfiguration	$[\text{Rn}] 7s^2 5f^6$	
Magnetismus	Paramagnetisch	
Einfangsquerschnitt Neutronen (barns)	1,7 (^{244}Pu)	
Kristallsystem	Monoklin	
Dichte (g/cm^3 , bei 298 K)	19,82	
Schmelzpunkt ($^{\circ}\text{C}$)	639	
Siedepunkt ($^{\circ}\text{C}$)	3230	
Atomradius (berechnet, pm)	151 (–)	
Kovalenter Radius (pm)	187	
Ionenradius (pm)	108 (Pu^{3+})	

Bei Normalbedingungen ist Plutonium ein silberglänzendes Schwermetall mit einer Dichte von $19,82\text{g/cm}^3$. (38) Alle Plutoniumisotope sind radioaktiv. 100g Plutonium bzw. ^{239}Pu erzeugen ca. 0,2 W Wärmeleistung. (39) Im Vergleich zu anderen Schwermetallen ist Plutonium ein schlechter Leiter für Wärme und elektrischen Strom. In Abhängigkeit von der Temperatur kristallisiert Plutonium in insgesamt sechs allotropen Modifikationen, die jeweils deutlich voneinander abweichende Dichten besitzen. α -Plutonium ist die bei Raumtemperatur stabile Modifikation und kristallisiert monoklin. (26) Bei höheren Temperaturen zeigt Plutonium das seltene Phänomen der Dichteanomalie. Bei der Phasenumwandlung zur δ' - und ϵ -Modifikation und auch beim Schmelzen wird, wie bei Wasser, die Dichte größer. Flüssiges Plutonium besitzt die höchste Viskosität aller Elemente im flüssigen Zustand. (26)

Plutonium ist unedel und reaktiv. An der Luft läuft das Metall zuerst matt an und überzieht sich mit einer blauschwarzen Oxidschicht. Bei längerem Stehen an der Luft bildet sich eine dicke, graugrüne Oxidschicht. Beim Erhitzen reagiert Plutonium mit den meisten Nichtmetallen und Wasser. In konzentrierter Salpetersäure kommt es zur Bildung einer schützenden Passivschicht. Dadurch lässt sich Plutonium nicht in konzentrierter Salpetersäure lösen. (26) (40)

Plutonium kann in allen Oxidationsstufen zwischen +III und +VII vorkommen, wobei die Oxidationsstufe +VII selten vorkommt. Plutonium kommt in den üblichen Oxidationsstufen +III bis +VI in Form von Pu^{3+} , Pu^{4+} , PuO_2^+ und PuO_2^{2+} vor. Die Redoxchemie des Plutoniums ist sehr kompliziert. So kann es vorkommen, dass diese vier Formen in Lösung simultan existieren. Pu^{3+} und Pu^{4+} sind in sauren Konditionen stabiler, während PuO_2^+ in neutralen Lösungen und PuO_2^{2+} in alkalischen Lösungen stabiler ist. (26)

4. Geschichtlicher Hintergrund der Atomwaffentests

Der erste Atomwaffentest fand am 16. Juli 1945 in der Wüste Neumexikos statt (Trinity Test). Kurz darauf am 6. und 9. August 1945 folgten die US-amerikanischen Atombombenabwürfe auf Hiroshima und Nagasaki. Angeführt von den Großmächten USA, UdSSR und Vereinigtes Königreich wurden bis zum Jahr 1957 49 Tests durchgeführt. Darauf folgten im Jahr 1958 99 Tests, im Jahr 1961 58 Tests und 1962 116 Tests. Der erste französische Atombombentest hat im Jahre 1960 in Algerien stattgefunden. Mit einer Sprengkraft von 50-60MT erzeugte die sowjetische AN602 (Zar-Bombe) im Jahre 1961 die größte jemals von Menschen verursachte Explosion. Bis zum Jahr 2017 wurden mehr als 2000 nukleare Textexplosionen durchgeführt, die zur Verteilung verschiedener Radionuklide geführt haben. Die intensivste Testperiode, bei der 57% der gesamten Detonationsenergie freigesetzt wurde, erstreckte sich von September 1961 bis Dezember 1962. Nach den 1960er Jahren gab es kaum einen Ort mehr auf der Erde, der nicht durch die atmosphärischen Tests kontaminiert wurde. Tabelle 6 zeigt alle bekannten Detonationen bis zum Jahr 1999. (41) (42)

Tabelle 6: Übersicht über die Atomwaffentests (41)

Land	Zeitperiode	Atmosphärisch	Unterwasser	Untertage	Friedliche Tests	Gesamt
Frankreich	1969-1974	45		160		205
Indien	1974-1998			6	1	7
Pakistan	1998			6		6
China	1964-1980	22		22		44
UdSSR	1949-1962	216	3	750	124	1093
UK	1952-1953	21		24		45
USA	1945-1962	192	5	908	27	1132
Gesamt		496	8	1876	152	2532

Der atmosphärische Input von Radionukliden war in der nördlichen Hemisphäre größer als in der südlichen Hemisphäre, da die meisten atmosphärischen Tests in der nördlichen Hemisphäre durchgeführt worden sind und der Luftaustausch zwischen den Hemisphären gering ist. Die Radionuklide hefteten sich an Aerosole an und konnten an atmosphärischen Prozessen partizipieren und sich so über die ganze Erde verteilen. Man unterscheidet zwischen der Deposition von eher größeren Partikeln in der Nähe der Explosion, der Deposition von eher kleineren Partikeln in der Troposphäre und der Deposition von sehr

kleinen Partikeln in der Stratosphäre. Lokale Deposition ist hauptsächlich auf erdoberflächennahe Explosionen zurückzuführen. Gerade einmal 10% des radioaktiven Materials wird in der Nähe eines atmosphärischen Tests eingetragen. Einträge von langlebigen Radionukliden in die Stratosphäre stammen von atmosphärischen Explosionen im Megatonnenbereich, da Explosionen mit Sprengkräften im Kilotonnenbereich nicht in der Lage dazu sind, Radionuklide in signifikanten Mengen in die Stratosphäre zu befördern. Da die Atombomben, die in Hiroshima und Nagasaki abgeworfen wurden, in über 500m Höhe explodiert sind, ist die Deposition von radioaktivem Fallout in Japan relativ klein geblieben. (41) (43) (44)

Da die Strahlenbelastung bis zum Jahr 1963 schnell anstieg, beschlossen die verfeindeten Weltmächte USA und Vereinigtes Königreich auf der einen Seite und die UdSSR auf der anderen Seite, den Vertrag zum Verbot von Nuklearwaffentests in der Atmosphäre, im Weltraum und unter Wasser abzuschließen. Weitere Kernwaffentests fanden ab 1961 hauptsächlich unterirdisch statt. (41)

5. Beschleunigermassenspektrometrie (AMS)

Da Actinoide wie ^{236}U und Pu-Isotope in Umweltproben nur im Ultraspurenbereich vorzufinden sind, erfordert die Vermessung dieser Proben Methoden sehr hoher Empfindlichkeit. Das ICP-MS, das am häufigsten verwendete Massenspektrometer für die Untersuchung von Actinoiden, erreicht ein Detektionslimit von $^{236}\text{U}/^{238}\text{U} = 10^{-8}$. Die Thermionenmassenspektrometrie (TIMS) ist eine Methode mit der ein Detektionslimit von $^{236}\text{U}/^{238}\text{U} = 10^{-10}$ erreicht werden kann. Verglichen mit diesen Methoden ist das AMS in der Lage $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Verhältnisse von 10^{-14} zu messen. (6) (12) (13) (14) (15)

In Tabelle 7 sind die Detektionslimits für die verschiedenen Methoden in unterschiedlichen Einrichtungen und Laboratorien für ^{236}U angegeben, wie sie in der Literatur vorzufinden sind. (45)

Tabelle 7: Detektionslimits für ^{236}U für verschiedene Methoden

Methode	Einrichtung, Laboratorium oder Projekt	Die niedrigsten gemessen $^{236}\text{U}/\text{U}$ -Werte an realen Proben	Detektionslimit
α -Spektroskopie			2×10^{-5}
AMS	ANTARES, Menai	7×10^{-9} - $1,5 \times 10^{-8}$	1×10^{-8}
	CAMS, Livermore	4×10^{-9}	1×10^{-9}
	VERA, Wien	5×10^{-12}	5×10^{-13}
	ANU, Canberra	1×10^{-12}	1×10^{-13}
TIMS	IRMM, Geel	2×10^{-10}	
ICP-MS	LLNL, Livermore	$1,5 \times 10^{-8}$ - 2×10^{-7}	$1,5 \times 10^{-8}$
	VIRIS, Wien	4×10^{-8}	1×10^{-8}
	REIMEP-18	3×10^{-8}	
RIMS	Larissa, Mainz		$> 4 \times 10^{-8}$
	IRMM, Geel	2×10^{-10}	

Das Detektionslimit kann durch den chemischen Hintergrund (englisch: blank), dem Hintergrund des Messgeräts, verursacht durch ineffiziente Suppression unerwünschter Isotope, oder durch die Atomzählrateneffizienz (englisch: atom counting efficiency) eingeschränkt werden. Die Faktoren, die zur Effizienz beitragen, sind die chemische Ausbeute, die Ausbeute der negativen Ionisation in der Ionenquelle (unter 1%), die Ausbeute des ausgewählten Ladungszustandes (in der vorliegenden Arbeit U^{3+}) nach dem Tandembeschleuniger, die ionenoptische Transmission (englisch: ion optical transmission)

durch das Gerät und die Detektoreffizienz.(46) Problematisch sind bei der Messung von ^{236}U bei sehr niedrigen $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Atomverhältnissen vor allem Hydride von ^{235}U ($^{235}\text{UH}^{3+}$). Diese Hydride können durch den Standard Vienna KkU rechnerisch eliminiert werden. Der „in-house“-Standard Vienna KkU (stammt aus der Zeit der Monarchie, ist also frei von anthropogenem ^{236}U) hat ein Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ von $(6,98 \pm 0,32) \times 10^{-11}$ und wird zum „Fädeln“ und Normieren des ^{238}U -Strahls verwendet. (45) (46)

Die Plutoniummessung, bei der keine störenden Interferenzen auftreten, wird hauptsächlich von der Detektionseffizienz limitiert. Die Detektionseffizienz gibt die Anzahl der „Counts“ am Detektor an, die pro Atom der Probe ausgelöst werden. Das Detektionslimit für ^{239}Pu wird von den Blanks der Prozeduren eingeschränkt. Die Detektionseffizienzen und Detektionslimits der verschiedenen Methoden für Plutonium sind in Tabelle 8 angegeben. (45)

Tabelle 8: Detektionseffizienzen und Detektionslimits der verschiedenen Methoden für Plutonium

Methode	Atome/Count	Detektionslimit (Anzahl der Atome in der Probe)
AMS	10^4	$X \times 10^4$ von $^{241,242,244}\text{Pu}$ 2×10^5 ^{239}Pu , Limitierung durch den Blank
ICP-MS	10^3	10^7
TIMS	20	$\sim 3 \times 10^4$
RIMS	$2,5 \times 10^4$	-

In Abbildung 11 ist der Aufbau der Apparatur des Vienna Environmental Research Accelerator VERA abgebildet. Die Proben, welche aus Urandioxid oder einem Plutoniumhexanitratkomplex, beide eingebettet in Eisenoxid, bestehen, werden in Aluminium-Pins gepresst und die Probenräder mit diesen bestückt. Durch die Cäsium-Sputter-Quelle werden die Proben zerstäubt und die entstandenen negativen Ionen werden auf den elektrostatischen Analysator beschleunigt. (45) (46) (47) (48)

Im elektrostatischen Analysator werden die Ionen nach ihrer kinetischen Energie sortiert. Sind die Ionen auf einer konstanten kinetischen Energie, so gilt in magnetischen Massenanalysatoren für den Ablenkungsradius r:

$$r = \frac{m \cdot v}{z \cdot B}$$

m = Masse des Ions, v = Geschwindigkeit des Ions, z =Ladung des Ions, B =Magnetfeld

So gelangen letztendlich nur bestimmte m/z -Verhältnisse in die Faraday Cups, in denen Impulse proportional zur Stärke des Strahls erzeugt werden.

Nach dem ersten Analysator werden die Ionen im linearen Tandembeschleuniger durch eine Hochspannung von 1,65MV beschleunigt. In der Mitte des Beschleunigers wird in 90° Stellung chemisch inertes Strippergas (Helium) eingeleitet. Durch die Kollisionen der Ionen mit den Gasmolekülen werden die Moleküle zerstört und durch das Abstreifen von äußeren Elektronen werden positive Ionen gebildet. Es entstehen Uran- und Plutoniumisotope in den Ladungszuständen +I bis +V, wobei +III den erwünschten Ladungszustand darstellt. Von derselben positiven Hochspannung können die Ionen nun noch einmal in Vorwärtsrichtung beschleunigt werden. Weitere Selektion der Ionen erfolgt durch einen Wien Filter, einen elektrostatischen Analysator und zwei magnetischen Analysatoren. Die Ionen in +III Ladungszustand werden letztendlich mittels Ionisationskammer detektiert. (45) (46) (47)

Um die absoluten Konzentrationen ermitteln zu können, wurde im Zuge dieser Arbeit für die Uranmessungen als interner Standard ^{233}U und für die Plutoniummessungen ^{242}Pu verwendet.

6. Vorangegangene Analysen

Die in dieser Arbeit verwendeten Luftfilter wurden bereits im Jahre 1982 im Zusammenhang mit einer umfassenden Studie mit dem Titel „Alphastrahler in Umweltproben“, die vom Bundesministerium für Gesundheit und Umweltschutz finanziert wurde, von Karl Irlweck et al. mit den damals möglichen Analysemethoden untersucht und beschrieben. In erster Linie wurde der Plutoniumgehalt in Luftfiltern und in einer Reihe von Autopsieproben auch der Plutoniumgehalt von Lungenaschen bestimmt. Als Nebenprodukt der alphaspektrometrischen Auswertungen dieser Proben konnte auch der Urangehalt ermittelt werden und Aussagen über die Isotopenzusammensetzung in städtischen Aerosolproben gemacht werden. (49)

Es wurden Zellulosefilter von der Messstelle Wien/Hohe Warte vom Typ Whatman 501, auf denen das Aerosol über 24h bei einem Luftdurchsatz von ca. 100L/min abgeschieden worden war, für die Uran- und Plutoniumbestimmung verwendet. Aus Sammelproben (20-40 Filter) mit einem Luftvolumen von 2000-8000m³ wurden Zweimonats- oder Quartalmittelwerte gebildet. Durch Wägung der veraschten Luftfilterproben konnte auch der Staubgehalt ermittelt werden. Die Urankonzentration der Luft lag in den Jahren 1963 und 1964 im Bereich von 10-110 aCi/m³ oder 30-330pgU(nat)/m³. Für die Periode 1974-1978 ergab sich ein Mittelwert von 33,5±14,3aCi/m³ (102±43pg/m³). Bezieht man diesen Wert auf die gleichfalls bestimmte Staubkonzentration, ergibt sich ein Urangehalt der veraschten Aerosolprobe von etwa 4ppm. Innerhalb der Fehlergrenzen zeigten die Luftfilter die Isotopenzusammensetzung des Natururans. Anomalien der Isotopenhäufigkeiten konnten nicht festgestellt werden. „Heiße Teilchen“ von Bombenuran konnten in Einzelfällen beobachtet werden, aber man nahm an, dass diese für den Strahlenschutz keine große Rolle spielen dürften. Irlweck und Pichlmayer führten als Quelle des Urans die Resuspension von Bodenmaterial an. In städtischen Gebieten dürften aber auch durch Hausbrände lokal höhere Urankonzentrationen auftreten. (49)

Tabelle 9: Urangehalt in Luftfiltern von der Sammelstelle Wien/Hohe Warte (49)

Periode	Luftvolumen [m ³]	Staubgehalt [µg/m ³]	²³⁴ U [aCi/m ³]	²³⁸ U [aCi/m ³]
1963/I-II	2091	37	56	45
III-IV	2242	36/39	113±19	73±16
V-VI	3076	26/25	82±14	49±11
VII-VIII	3136	26	66	45
IX-X	3386	41	43	22
XI-XII	3237	38	110	96
1964/I-II	3120	30	47	33
III-IV	3180	43	57	43
V-VI	3130	29	21	16
VII-VIII	3220	28	14	18

Die durch die Analyse der Luftfilter von der Messstelle Wien/Hohe Warte erhaltenen Pu-Konzentrationen sind in Abbildung 12 dargestellt. Die üblichen Frühjahresmaxima, die durch verstärkten Luftmassenaustausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre zustande kommen, sind in den ersten Jahren der Messungen deutlich erkennbar. Kurz nach der letzten großen Atomwaffenserie von Oktober 1962, sind die höchsten Konzentrationen im Frühjahr 1963 von etwa 1fCi ^{239,240}Pu/m³ in den Luftfiltern gemessen worden. Die Konzentration im Jahr 1966 ist hingegen auf etwa 0,05fCi/m³ abgesunken. Es wird angenommen, dass die hohen Pu-Konzentrationen vor 1967 auf die Kernwaffenversuche zurückzuführen sind. In den Jahren 1968 und 1976 ist die Plutoniumfreisetzung bei neuerlichen oberirdischen Versuchen in China merklich angestiegen. Es wurden auch ²³⁸Pu-Konzentrationen von Irlweck et al. bestimmt, die das Verglühen des SNAP 9 A durch hohe Konzentrationen im Jahr 1968 bestätigen. In Tabelle 10 sind die von Irlweck et al. für die Luftfilter von der Messstelle Wien/ Hohe Warte ermittelten Jahresmittelwerte und andere in der Literatur publizierte Werte aufgeführt. (5)

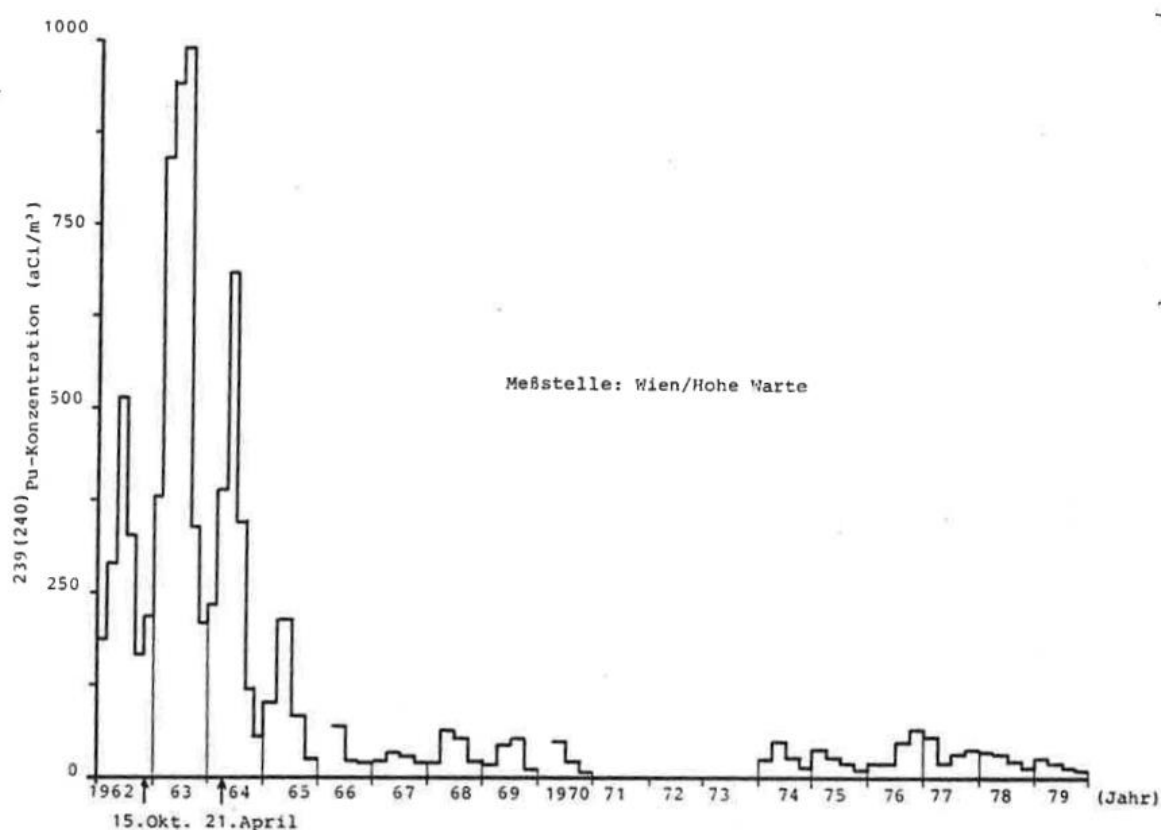


Abbildung 12: Plutoniumkonzentrationen der Luftfilter der Messstelle Wien/Hohe Warte (1962-1979) (5)

Tabelle 10: Die Mittelwerte der $^{239,240}\text{Pu}$ -Konzentrationen der bodennahen Atmosphäre für die Jahre 1962-1966 [fCi/m^3] (5)

Messstelle	Wien/Hohe Warte	Chilton (UK)	Ispra (I)	New York (USA)
1962	0,3	0,4	0,5	0,7
1963	0,6	0,8	1,0	1,7
1964	0,3	0,5	0,6	0,9
1965	0,1	0,2	0,3	0,3
1966	0,05	0,1	0,1	0,1

Die in dieser Arbeit untersuchten menschlichen Lungenaschen wurden bereits von P.Zima und W. Moser bezüglich ihres Gehalts an ^{236}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu und der Verhältnisse $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ bzw. $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ untersucht. Für die gemessenen Verhältnisse von $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ der menschlichen Lungenaschen von Verstorbenen aus den Jahren 1961-1965 aus dem Großraum Wien berichtet P. Zima von Werten im Bereich $1,02 \times 10^{-8} \pm 8,60 \times 10^{-10}$ bis $1,26 \times 10^{-7} \pm 4,40 \times 10^{-9}$. Die Mittelwerte der Messungen von ^{236}U liegen im Bereich von $9,10 \times 10^6 \pm 1,18 \times 10^6$ bis $4,37 \times 10^7 \pm 1,07 \times 10^6$ Atome/g Probe. (1) (2)

Die gewichteten Jahres-Mittelwerte des Gehalts an ^{236}U in den untersuchten Lungenaschen liegen in der Arbeit von W. Moser im Bereich von $1,14 \times 10^7$ bis $3,32 \times 10^7$ at/g Asche. Weiters berichtet W. Moser für das $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Atomverhältnis von gewichteten Jahres-Mittelwerten im Bereich von $1,17 \times 10^{-8}$ bis $5,43 \times 10^{-8}$. Die gewichteten Jahres-Mittelwerte des Gehalts an ^{239}Pu in den Lungenaschen liegen im Bereich von $3,62 \times 10^8$ bis $7,58 \times 10^8$ at/g Lungenasche (1962-65). Die gewichteten Mittelwerte des Gehalts an ^{240}Pu in den Lungenaschen liegen im Bereich von $5,86 \times 10^7$ bis $1,32 \times 10^8$ at/g Lungenasche. Das $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Atomverhältnis in den vermessenen Lungenproben lag mit einem gewichteten Mittelwert aller Proben von $0,180 \pm 0,0034$ im Bereich der üblichen publizierten Werte für den globalen Fallout von $0,178 \pm 0,025$. (2)

Während die ^{236}U -Messungen sowohl für die Absolutmessungen (Atome ^{236}U / g Lungenasche) als auch die $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Atomverhältnisse deutlich den „Bombenpeak“ zeigten, konnte ein Anstieg bei den Pu-Absolutmessungen (im Gegensatz zu den früheren Alpha-Messungen von Irlweck et al.) nicht gefunden werden. Der Grund dafür wird in der unterschiedlichen Probenaufbereitung vermutet; die von Moser verwendete Vorschrift wurde daher in dieser Arbeit modifiziert, um eine möglichst vollständige Lösung der Aschen zu erreichen.

7. Vorversuche und Ausbeutebestimmung mittels α -Spektrometrie

Zuerst wurden an den Luftfiltern aus den Jahren 1962-1966 von der Messstelle Wien Hohe Warte Löslichkeitsversuche und alpha-spektrometrische Ausbeutebestimmungen durchgeführt.

7.1. Vorversuche und Ausbeutebestimmung für die Uranbestimmung

Es wurden neun Filter eingewogen und in einer zuvor gründlich gereinigten Porzellanschale im Ofen bei 450°C über Nacht verascht. Die Asche wurde vorsichtig auf einem Uhrglas gewogen. In einem Reagenzglas wurde sie 2h lang mit 10mL 8M suprapurer HNO_3 reflux gekocht. Daraufhin wurde mit Milli-Q Wasser auf 20mL aufgefüllt und der Überstand dekantiert, um diesen mit der S2 Picofox zu vermessen (Probe 1). Bei dieser Art der Röntgenfluoreszenzanalyse (TXRF, englisch: total reflection x-ray fluorescence) wird die Probe mit monochromatischer Röntgenstrahlung unterschiedlicher Energie bestrahlt und emittiert dabei je nach elementarer Zusammensetzung charakteristische Röntgenfluoreszenzstrahlung. Nach der Vermessung mit der S2 Picofox wurde der Überstand bis zur Trockene eingedampft und mit 20mL Königswasser (8mL 30% HCl und 30mL 68% HNO_3) 3h reflux gekocht. Der Überstand wurde abermals dekantiert und mit der S2 Picofox vermessen (Probe 2). Dann wurde der Rückstand 3mal mit 15mL 8M HNO_3 bis zur Trockene eingedampft. Der unlösliche Rückstand wurde abzentrifugiert, 3mal mit Milli-Q Wasser gewaschen und im Ofen bei 100°C getrocknet, um ihn anschließend abzuwiegen. Der Überstand wurde wieder mit der S2 Picofox vermessen (Probe 3).

Die Asche, die aus dem Verbrennen der neun Luftfilter bei 450°C entstand, wog 0,0432g und nach dem oben beschriebenen Aufschluss 0,0050g. Der unlösliche Anteil nach dem Aufschluss lag also bei 12%. Der unlösliche Anteil lag nach einem erneuten Versuch, die Asche ausschließlich 3h in Königswasser reflux zu kochen, abermals bei 12%.

Ein Auszug der relevanten Ergebnisse der S2 Picofox Spurenelementanalyse sind in Tabelle 11 und Tabelle 12 zusammengefasst. Tabelle 11 bezieht sich auf die Spurenelementanalyse von

Probe 2 und Tabelle 12 auf die Analyse von Probe 3. Die vollständigen Ergebnisse der Messung sind im Anhang zu finden.

Tabelle 11: Ergebnisse der S2 Picofox Spurenelementanalyse für die Probe 2

Element	Linie	Konz. [mg/l]	Sigma [mg/l]
K	K12	31,2	0,2
Ca	K12	145,1	0,4
Cr	K12	0,226	0,009
Mn	K12	1,67	0,02
Fe	K12	49,6	0,2
Co	K12	Not. Det.	
Ni	K12	1,08	0,01
Cu	K12	2,71	0,02
Zn	K12	16,12	0,05
Rb	K12	0,158	0,002
Sr	K12	0,517	0,004
Sn	L1	0,73	0,10
Ba	L1	2,44	0,04
Pt (IS)	L1	10,00	0,04
Pb	L1	13,68	0,04

Tabelle 12: Ergebnisse der S2 Picofox Spurenelementanalyse für die Probe 3

Element	Linie	Konz. [mg/l]	Sigma [mg/l]
K	K12	0,206	0,014
Ca	K12	0,559	0,013
Cr	K12	0,005	0,003
Mn	K12	Not. Det.	
Fe	K12	0,162	0,003
Co	K12	Not. Det.	
Ni	K12	0,004	0,001
Cu	K12	0,004	0,001
Zn	K12	0,089	0,002
Rb	K12	Not. Det.	
Sr	K12	0,020	0,001
Sn	L1	Not. Det.	
Ba	L1	Not. Det.	
Pt (IS)	L1	10,000	0,030
Pb	L1	Not. Det.	

Durch die Spurenelementanalyse mit der S2 Picofox ist zu erkennen, dass die meisten Elemente nach dem dreistündigen Refluxkochen mit Königswasser bereits in Lösung gegangen

sind und sich im Überstand befinden. Die meisten Elemente sind im Überstand der 3. Probe kaum noch detektierbar oder sind nur noch in vernachlässigbar kleinen Mengen vorhanden. Es wird angenommen, dass sich das Uran ähnlich verhält und sich fast ausschließlich im Königswasserüberstand befindet. Diese Annahme deckt sich mit den bisherigen Erkenntnissen, dass sich das Uran hauptsächlich in Aerosolpartikel an der Oberfläche der Quarz-Körner befindet und sich dementsprechend leicht in Säuren lösen lässt.

Für die alpha-spektrometrische Ausbeutebestimmung wurden zehn Genuine Whatman Filter N°50 auf einem Uhrglas abgewogen und anschließend in Porzellanschalen verascht. So wurden drei Proben bekannter Aktivität hergestellt, um die Ausbeute von drei verschiedenen Methoden zu bestimmen. Das Gewicht der zehn Filter und deren Aschen sind in Tabelle 12 eingetragen.

Tabelle 13: Das Gewicht der zehn Filter und deren Aschen für die Proben 1-3

Probe	10 Filter [g]	Asche der Filter [g]
Probe 1	1,3712	0,0013
Probe 2	1,3728	0,0009
Probe 3	1,3800	0,0021

Da sich die drei Methoden nur geringfügig voneinander unterscheiden, wird die verwendete Methode anhand der Methode mit der größten Ausbeute beschrieben (angewendet auf Probe 2). Anschließend wird erläutert worin sich die Methoden unterscheiden.

Die veraschte und eingewogene Probe wurde mit 15mL Königswasser (8mL 30% HCl und 30mL 68% HNO₃) 3h reflux gekocht. Nach dem Abkühlen auf Raumtemperatur wurden 10µL KkU-Lösung [$A(^{234}\text{U}) + A(^{238}\text{U}) = (56 \pm 2) \text{ mBq}$] hinzugefügt. Dann wurde die Probe in ein Kunststoffröhrchen überführt; das Becherglas wurde dreimal mit wenig Königswasser gewaschen. Anschließend wurde der unlösliche Rückstand abzentrifugiert und die Probe wieder in ein Becherglas dekantiert. Der Rückstand wurde zweimal mit je 5mL Königswasser gewaschen; die Waschlösung wurde mit der Probe vereinigt. Die Probe wurde dann bis zur Trockene eingedampft, weiters dreimal mit je 10mL 7,2 M HNO₃ eingedampft und zuletzt in 15mL 7,2 M HNO₃ aufgenommen. Etwa 1g UTEVA B200-A Harz wurden in 7,2 M HNO₃ 1h aufgeschlämmt und eine Säule (Durchmesser: 0,5cm, Länge: 6cm) halb hoch befüllt. Die Probe wurde auf die Säule aufgetragen. Das Proben-Becherglas wurde zweimal mit je 5mL 7,2 M HNO₃ gewaschen und diese Waschlösung wurde ebenfalls auf die Säule aufgetragen. Das

Uran wurde anschließend mit 25mL 0,1 M HNO_3 eluiert und in einem Becherglas aufgefangen (Flussrate: 0,6-0,8 mL/min). Die Probe wurde bis zur Trockene eingedampft. Der Rückstand wurde dreimal mit je 2mL konz. HNO_3 und drei Tropfen H_2O_2 vorsichtig komplett bis zur Trockene abgeraucht. Anschließend wurde dreimal mit 5mL konz. HCl abgeraucht und der Rückstand wurde in 2mL 1M HCl aufgenommen und in eine Kunststoffeprouvette transferiert. Das Becherglas wurde zweimal mit je 1mL 1M HCl nachgespült und die Waschlösung wurde ebenfalls in die Kunststoffeprouvette transferiert.

Bei der Mikropräzipitation wird anschließend durch die Mitfällung von Uran zusammen mit Neodymfluorid eine sehr dünne Schicht, um Selbstabsorption zu vermeiden, für die alpha-spektrometrische Messung hergestellt. Dazu wurden 100 μL der 0,5mg/mL konzentrierten Neodym-Lösung (58mg Nd_2O_3 in 1M HCl gelöst und mit 1M HCl auf 100mL aufgefüllt) zur Probelösung zugegeben und geschüttelt. Dann wurde eine 15%ige TiCl_3 -Lösung zugetropft bis die Lösung violett geblieben ist (die violette Färbung ist ein Zeichen dafür, dass das Uran jetzt vierwertig vorliegt). Als Fällungsmittel wurden 0,5mL 40%ige HF zugegeben, geschüttelt und die Lösung 30 Minuten stehen gelassen. Ein Membranfilter wurde auf eine Trichterhalterung aufgesetzt, mit destilliertem Wasser befeuchtet und nach dem Anlegen eines leichten Vakuums, wurde der Filter mit 4 mL NdF_3 -Lösung gewaschen. Nachdem die Probe ca. 1min im Ultraschallbad beschallt wurde, wurde sie abfiltriert. Die Epruvette wurde mit 2 mL 0,58 M HF und zweimal mit 2 mL dest. Wasser gewaschen und jeweils abfiltriert. Der Filter wurde trocken gesaugt, mit einer Pinzette auf eine Probenhalterung gelegt und mit einem Sprengring fixiert. Dann wurde der Filter staubgeschützt getrocknet.

Die Proben wurden mit einem Oberflächensperrschichtdetektor der Firma Canberra/Packard (Modell 7401 VR) vermessen. α -Teilchen erzeugen dabei Elektron-Loch-Paare, welche im elektrischen Feld getrennt werden. Die jeweiligen Ladungen werden an den Kontakten gesammelt. Mit Hilfe eines ladungsempfindlichen Vorverstärkers werden Spannungsimpulse erzeugt, deren Höhen von der Energie der α -Strahlung abhängen. Die Menge an erzeugten Elektron-Loch-Paaren ist direkt proportional zur Energie der α -Partikel. Für die Kalibration werden α -Strahler mit bekannten Energien verwendet. (2) (17)

Die Methode, bei der (im Gegensatz zur oben geschilderten Prozedur) die Königswasserlösung direkt auf die Ionensäule aufgetragen wurde, zeigte die geringste Ausbeute (Probe 1). In einer weiteren Variante (Probe 3) wurde der Spike schon vor dem Veraschen auf die Filter

aufgetragen. Sonst sind die Methoden mit der beschriebenen Methode ident. In Abbildung 13 ist das α -Spektrum der Probe 2, der Probe mit der höchsten Ausbeute, zu sehen. Die α -Spektren von Probe 1 und Probe 3 sind im Anhang zu finden.

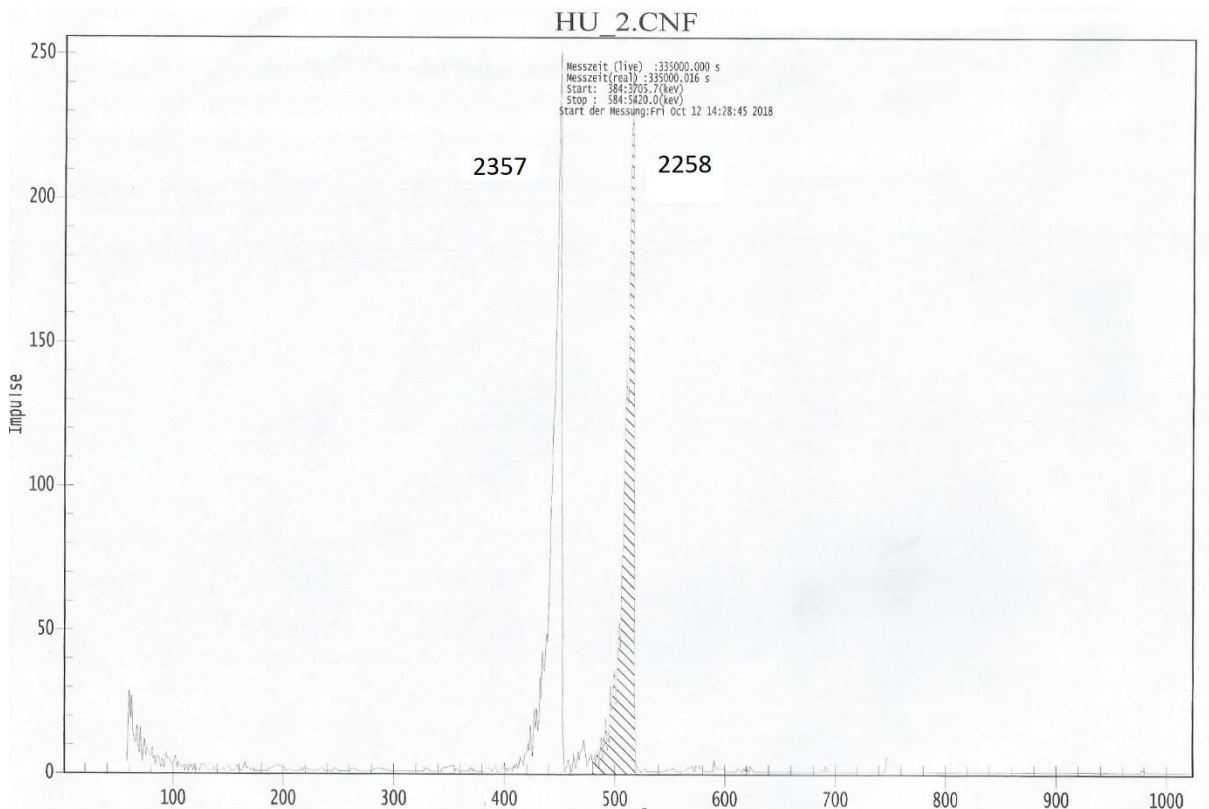


Abbildung 13: α -Spektrum der Probe 2

Die Ausbeute wurde wie folgt berechnet:

$$Y(U) = \frac{\text{Counts} (^{234+238}\text{U})}{t * \epsilon * A(^{234+238}\text{U})} * 100 = \frac{4615}{335000\text{s} * 0,284 * 56 * 10^{-3}\text{mBq}} * 100 = 86\%$$

$Y = \text{Ausbeute } [\%]$, $t = \text{Messzeit } [s]$, $\epsilon = \text{Detektoreffizienz}$, $A = \text{Aktivität } [\text{mBq}]$

Berücksichtigt man die Unsicherheiten der Detektoreffizienz, der Anzahl der gemessenen Counts und der Aktivität der KkU-Lösung und wendet das Gauß'sche Fehlerfortpflanzungsgesetz an, so erhält man für Uran eine Ausbeute von $(86 \pm 12)\%$. Die Ausbeuten von Probe 2 und 3 stimmen innerhalb der Fehlergrenzen überein.

Tabelle 14: Ausbeuten für die Proben 1-3

Probe	Detektoreffizienz	Counts ($^{234+238}\text{U}$)	Ausbeute U [%]
Probe1	$0,346 \pm 0,036$	2197	34 ± 4
Probe2	$0,284 \pm 0,036$	4615	86 ± 12
Probe3	$0,336 \pm 0,035$	4402	70 ± 8

7.2. Vorversuche und Ausbeutebestimmung für die Plutoniumbestimmung

Es wurden erneut neun Filter eingewogen und in einer zuvor gründlich gereinigten Porzellanschale im Ofen bei 450°C 24h verascht. Zur gewogenen Asche wurden 10mL konz. HNO₃ und (14,4±0,7) mBq ²⁴²Pu-Spike zugegeben. Dann wurde die Probe bis zur Trockene eingedampft, abermals 10mL konz. HNO₃ zugegeben und erneut eingedampft. Der Rückstand wurde zweimal in je 5mL konz. HF aufgenommen und eingedampft (hier wurde mit einem Teflonbecher gearbeitet, da die Flusssäure Glas angreifen würde). Anschließend wurde zweimal mit jeweils 10mL konz. HNO₃ und 2mL H₂O₂ eingedampft. Der Rückstand wurde dann in 10mL 7,2M HNO₃ aufgenommen und in ein Zentrifugenröhrchen überführt. Nach dem Zentrifugieren wurde die Probe (der Überstand) in einen Teflonbecher transferiert. Der Rückstand wurde zweimal mit 5mL 7,2M HNO₃ gewaschen und diese Waschlösung wurde mit der Probe vereinigt. Der unlösliche Anteil wurde zweimal mit dest. Wasser gewaschen, im Ofen bei 100°C getrocknet und anschließend gewogen. Der unlösliche Anteil lag bei unter 1% des Aschegehalts.

Der Probe im Teflonbecher wurden dann 0,2g NaNO₂ beigelegt. Die Lösung wurde vorsichtig erhitzt, bis die Entwicklung von NO_x (bräunliche Dämpfe) aufhörte. Das Pu lag nun als vierwertiger Hexanitratkomplex vor. Die auf Raumtemperatur abgekühlte Lösung wurde auf eine dreimal mit je 10mL 7,2M HNO₃ konditionierte Säule mit aufgeschlammten Dowex 1x2 (100-200 mesh, Cl⁻) aufgetragen. Zuerst wurde zweimal mit je 15mL 7,2M HNO₃ gewaschen, um U, Am und Sr zu eluieren. Dann wurde zweimal mit je 15mL 32% HCl Th eluiert. In einem Teflonbecher wurden 5mL konz. HNO₃ vorgelegt und dann wurde das Pu mit 50mL 0,36M HCl – 0,018M HF in den Teflonbecher eluiert. Die Pu-Fraktion wurde anschließend bis fast zur Trockene eingedampft. Der Rückstand wurde dreimal mit je 5 mL 65%iger HNO₃ und einigen Tropfen 30%iger H₂O₂ abgeraucht, um die Fluoride zu entfernen. Dann wurde der Rückstand dreimal mit je 5 mL 32% HCl abgeraucht. Der Rückstand wurde in 2mL 1M HCl aufgenommen und in eine Kunststoffeprouvette transferiert. Der Rückstand wurde zweimal mit je 1mL 1M HCl nachgespült.

Die Mikropräzipitation wurde analog zu den Uran-Proben durchgeführt, allerdings ohne TiCl₃-Zugabe, da sich hier das Pu bereits im vierwertigen Zustand befindet.

Die Ausbeute wurde wie folgt berechnet:

$$Y(^{242}\text{Pu}) = \frac{\text{Counts}(^{242}\text{Pu})}{t * \varepsilon * A(^{242}\text{Pu})} * 100 = \frac{805}{500000\text{s} * 0,346 * 14,4 * 10^{-3}\text{MBq}} * 100 = 32\%$$

Berücksichtigt man den Fehler der Detektoreffizienz ($\varepsilon=0,346 \pm 0,036$), der Counts und der Aktivität des ^{242}Pu -Spikes und wendet das Gauß'sche Fehlerfortpflanzungsgesetz an, so betrug die Ausbeute für ^{242}Pu (32 ± 4)%.

8. Methoden und praktische Durchführung für die AMS-Messung

8.1. Aufarbeitung der Luftfilter für die Uranmessung

Die Aufarbeitung der Luftfilter aus den Jahren 1962-1966 von der Messstelle Wien Hohe Warte erfolgte nach der in den Vorversuchen beschriebenen Methode in leicht modifizierter Form, um die Probe für eine AMS-Messung zugänglich zu machen.

Es wurden Teflonbecher verwendet, da Uran und Plutonium an der Oberfläche von Bechergläsern haften würden. Des Weiteren wurden stets Chemikalien in Supra-Qualität oder Chemikalien, die eine für die Spurenelementanalyse geeignete Reinheit aufweisen, verwendet. Eine Liste dieser Chemikalien befindet sich im Anhang.

Zu Beginn wurden jeweils 40 Luftfilter, die in einem Zeitraum von zwei bis drei Monaten besaugt worden waren, säuberlich geviertelt, gewogen und in einer Porzellanschale zu einer Analysenprobe zusammengefasst. Auf diese Weise wurden wie bei der Veröffentlichung von Irlweck et al. Mittelwerte für zwei bzw. drei Monate erhalten. (5) Für das Jahr 1962 wurden allerdings drei ganze Luftfilter verwendet, da für dieses Jahr nicht mehr Luftfilter zur Verfügung standen. Eine Liste aller Proben mit ihren zugehörigen Luftvolumina und Besaugungsdaten befindet sich im Anhang.

Um Verunreinigungen, die trotz der Verwendung suprapurer Chemikalien, während der Aufarbeitung in die Proben gelangen, quantifizieren zu können, wurden stets Blanks parallel aufgearbeitet. Dazu wurden leere Filterpapiere der Firma Whatman® verwendet, die in identer Weise wie die Proben verascht und aufgearbeitet wurden. Um sicherzugehen, dass während dem Veraschen der Proben keine Kreuzkontamination auftritt, wurde zu Beginn ein Blank gemeinsam mit einer Probe im Ofen verascht und ein Blank separat im Ofen verascht. Aufgrund der Messergebnisse konnten dann Kreuzkontaminationen ausgeschlossen werden.

Die Proben wurden im Ofen bei 450°C 24h verascht. Die eingewogene Asche wurde in ein Teflonbecher transferiert, 20mL Königswasser (8mL 30% HCl und 30mL 68% HNO₃) hinzugegeben und drei Stunden reflux gekocht. Die so hergestellte (und für die hochempfindliche AMS-Messung zu konzentrierte) Aufschlusslösung wurde aufgehoben, um auch für weitere Analysen Aliquote entnehmen zu können. Dafür wurde das Königswasser bis zur

Trockene eingedampft und anschließend zweimal mit 10mL 7,2M HNO₃ eingedampft. Der Rückstand wurde in 7,2 M HNO₃ aufgenommen. In die für die ²³⁶U-Bestimmung entnommenen Aliquote wurde ²³³U-Spike hinzugefügt, um den absoluten Gehalt an ²³⁶U bestimmen zu können. In Tabelle 15 sind die Einwaagen der Filter, die zugehörigen Besaugungsdaten, die Einwaagen der Aschen, die Menge der Entnahme aus der Aufschlusslösung und die Konzentration des hinzugefügten ²³³U-Spikes dargestellt.

Tabelle 15: Zusammenschau der analysierten Luftfilter für die Uranmessung

	Jahr	EW Luftfilter [g]	Asche [g]	Entnahme aus Aufschlusslösung [%]	Entnahme [g] aus der Aufschlusslösung [g]	c(²³³ U) [at/EW]
Blank 1B		3,6081	0,00019	100		4,38E+08
Blank 2B		3,5998	0,00020	100		4,30E+08
Probe 1B	Mai/Juni 1966	3,7944	0,05635	100		4,38E+08
Blank 1C		3,5589	0,00015	9,97	1,8001 von 18,0467	4,67E+08
Blank 2C		3,5069	0,00021	10,10	1,7779 von 17,5995	4,63E+08
Probe 2C	Okt/Nov/Dez 1966	3,6025	0,04463	10,11	1,7779 von 17,5995	4,50E+08
Probe 3C	Jul/Aug/Sep 1966	3,6076	0,04900	10,05	1,7765 von 17,6782	4,50E+08
Probe 4C	Jul/Aug/Sep 1965	3,7772	0,04930	10,14	1,6780 von 16,5450	4,49E+08
Probe 5C	Okt/Nov/Dez 1965	3,7851	0,05687	10,03	1,8927 von 18,8760	4,65E+08
Probe 6C	Apr/Mai/Jun 1965	3,8429	0,05236	10,05	1,7997 von 17,9044	4,64E+08
Probe 7C	Jan/Feb/Mär 1965	3,6796	0,44890	10,15	1,8264 von 18,0019	4,65E+08
Probe 8C	Okt/Nov/Dez 1964	3,4978	0,55350	10,30	1,6176 von 15,7052	4,65E+08
Blank 1D		3,5217	0,00019	10,49	1,7088 von 16,2907	4,50E+08
Probe 9D	Jul/Aug/Sep 1964	3,6428	0,05459	10,28	1,6550 von 16,0917	4,48E+08
Probe 10D	Apr/Mai/Jun 1964	3,6156	0,06195	10,22	1,6685 von 16,3185	4,48E+08
Probe 11D	Jan/Feb/Mär 1964	3,5160	0,05750	10,19	1,3200 von 12,9511	4,46E+08
Probe 12D	Sep/Okt 1962	1,186	0,01030	10,45	1,7018 von 16,2907	4,45E+08

Nach dem Zusetzen des ^{233}U -Spikes wurde die Probe zur Gleichgewichtseinstellung 24h staubgeschützt stehen gelassen. Das Auflösen der Probe und die Abtrennung der Uranfraktion erfolgte wie bereits in den Vorversuchen beschrieben: Die Probe wurde in ein Kunststoffröhrchen überführt, es wurde dreimal mit wenig Königswasser nachgewaschen. Anschließend wurde der unlösliche Rückstand abzentrifugiert und die Probe wieder in einen Teflonbecher dekantiert. Der Rückstand wurde zweimal mit je 5mL Königswasser gewaschen; die Waschlösung wurde mit der Probe vereinigt. Die Probe wurde dann bis zur Trockene eingedampft, weiters dreimal mit je 10mL 7,2 M HNO_3 eingedampft und zuletzt in 15mL 7,2 M HNO_3 aufgenommen. Etwa 1g UTEVA B200-A Harz wurde in 7,2 M HNO_3 1h lang aufgeschlämmt und eine Säule (Durchmesser: 0,5cm, Länge: 6cm) halb hoch befüllt. Die Probe wurde auf die Säule aufgetragen. Der Teflonbecher wurde zweimal mit je 5mL 7,2 M HNO_3 gewaschen und diese Waschlösung wurde ebenfalls auf die Säule aufgetragen. Das Uran wurde anschließend mit 25mL 0,1 M HNO_3 eluiert und in einem Teflonbecher aufgefangen (Flussrate: 0,6-0,8 mL/min). Die Probe wurde bis zur Trockene eingedampft. Der Rückstand wurde dreimal mit je 2mL konz. HNO_3 und drei Tropfen H_2O_2 vorsichtig komplett bis zur Trockene abgeraucht. Dann wurde der Rückstand mit 5mL 3M HNO_3 aufgenommen und in ein 15ml Kunststoffröhrchen überführt. Es wurden 1mL prä nukleare Fe-Lösung (ca. 2mg/mL) hinzugefügt, vorsichtig mit konz. NH_3 ausgefällt bis der $\text{Fe}(\text{OH})_3$ -Niederschlag bestehen blieb (Uran wird hier mitgefällt) und 24h geschüttelt. Der Niederschlag wurde abzentrifugiert und zweimal mit 4mL Milli-Q (pH = 8,5; mit konz. NH_3 grob eingestellt) gewaschen. Anschließend wurde der feuchte Niederschlag mit einer Pipette in ein kleines Eppendorfgefäß überführt. Diese Probe wurde im Trockenschrank bei 90°C 20h getrocknet und dann vorsichtig in ein Quarzgefäß mit Deckel überführt. Das Quarzgefäß wurde im Glühofen platziert, zuerst vorsichtig bei 30°C/h auf 250°C erhitzt und dann bei 200°C/h auf 800°C erhitzt. Die Temperatur von 800°C wurde 4h lang gehalten. Im Anschluss wurde die Probe abgekühlt. Die kalzinierte Probe wurde in Aluminium Pins gepresst. Die Pins wurden in AMS-Zahnräder platziert und standen somit als Urandioxid (UO_2) eingebettet in Eisenoxid (Fe_2O_3) für die Messung bereit.

8.2. Aufarbeitung der Luftfilter für die Plutoniummessung

Von den Aufschlusslösungen wurden jeweils Aliquote für die Plutoniummessung entnommen. In die entnommenen Aliquote wurde ^{242}Pu -Spike hinzugefügt, um den absoluten Gehalt an ^{239}Pu und ^{240}Pu bestimmen zu können. In Tabelle 16 sind die Einwaagen der Filter, die zugehörigen Besaugungsdaten, die Einwaagen der Aschen, die entnommenen Mengen aus der Aufschlusslösung und die Konzentration des hinzugefügten ^{242}Pu -Spikes dargestellt. Als Blanks wurden hier nur die reinen Chemikalien der Methode verwendet und diese wurden parallel aufgearbeitet.

Tabelle 16: Zusammenschau der analysierten Luftfilter für die Plutoniummessung

	Jahr	EW Luftfilter [g]	Asche [g]	Entnahme aus Aufschlusslösung [%]	Entnahme [g] aus der Aufschlusslösung [g]	$c(^{242}\text{Pu})$ [at/EW]
Blank C/P				100		1,51E+08
Probe 2C/P	Okt/Nov/Dez 1966	3,6025	0,04463	8,15	2,2094 von 27,1220	1,71E+08
Probe 3C/P	Jul/Aug/Sep 1966	3,6076	0,04900	9,98	2,5412 von 25,4646	1,62E+08
Probe 4C/P	Jul/Aug/Sep 1965	3,7772	0,04930	10,02	2,7015 von 26,9513	1,62E+08
Probe 5C/P	Okt/Nov/Dez 1965	3,7851	0,05687	10,40	1,8591 von 17,8854	1,64E+08
Probe 6C/P	Apr/Mai/Jun 1965	3,8429	0,05236	10,29	1,8931 von 18,3918	1,29E+08
Probe 7C/P	Jan/Feb/Mär 1965	3,6796	0,44890	9,97	1,7578 von 17,6271	2,01E+08
Probe 8C/P	Okt/Nov/Dez 1964	3,4978	0,55350	5,82	1,0471 von 17,9751	1,98E+08
Blank D/P				100		1,82E+08
Probe 9D/P	Jul/Aug/Sep 1964	3,6428	0,05459	5,36	1,1068 von 20,6481	1,89E+08
Probe 10D/P	Apr/Mai/Jun 1964	3,6156	0,06195	5,39	0,8786 von 16,3152	2,01E+08
Probe 11D/P	Jan/Feb/Mär 1964	3,5160	0,05750	5,12	1,0181 von 19,8810	1,99E+08
Probe 12D/P	Sep/Okt 1962	1,186	0,01030	10,12	1,3984 von 13,8179	1,89E+08

Nach dem Zusetzen des ^{242}Pu -Spikes wurde die Probe in einem Teflonbecher 24h zur Gleichgewichtseinstellung staubgeschützt stehen gelassen. Das Auflösen der Probe und die Abtrennung der Plutoniumfraktion erfolgte wie bereits in den Vorversuchen beschrieben:

Die Probe wurde bis zur Trockene eingedampft, dann noch dreimal mit je 10mL 7,2 M HNO_3 eingedampft und schließlich in 20mL 7,2 M HNO_3 aufgenommen. Dann wurden 0,2g NaNO_2 zugefügt. Die Lösung wurde vorsichtig erhitzt bis die Entwicklung von NO_x (bräunliche Dämpfe) aufhörte. Das Pu lag nun als vierwertiger Hexanitratkomplex vor. Die auf Raumtemperatur abgekühlte Lösung wurde auf eine dreimal mit je 10mL 7,2M HNO_3 konditionierte Säule mit aufgeschlammten Dowex 1x2 (100-200 mesh, Cl^-) aufgetragen. Zuerst wurde zweimal mit je 15mL 7,2M HNO_3 gewaschen, um U, Am und Sr zu eluieren. Dann wurde zweimal mit je 15mL 32% HCl Th eluiert. In ein Becherglas wurden 5mL konz. HNO_3 vorgelegt und dann wurde das Pu mit 50mL 0,36M HCl – 0,018M HF in das Becherglas eluiert. Die Pu-Fraktion wurde anschließend bis fast zur Trockene eingedampft. Der Rückstand wurde dreimal mit je 5mL 65%iger HNO_3 und einigen Tropfen 30%iger H_2O_2 abgeraucht, um die Fluoride zu entfernen. Dann wurde der Rückstand mit 5mL 3M HNO_3 aufgenommen und in ein 15mL Kunststoffröhrchen überführt. Es wurden 1mL prä nukleare Fe-Lösung (ca. 2mg/mL) zugefügt, vorsichtig mit konz. NH_3 ausgefällt bis der $\text{Fe}(\text{OH})_3$ -Niederschlag bestehen geblieben ist (Plutonium wird hier mitgefällt) und 24h geschüttelt. Der Niederschlag wurde abzentrifugiert und zweimal mit 4mL Milli-Q ($\text{pH} = 8,5$; mit konz NH_3 grob eingestellt) gewaschen. Anschließend wurde der feuchte Niederschlag mit einer Pipette in ein kleines Eppendorfgefäß überführt. Diese Probe wurde im Trockenschrank bei 90°C 20h getrocknet und dann vorsichtig in ein Quarzgefäß mit Deckel überführt. Das Quarzgefäß wurde im Glühofen platziert, zuerst vorsichtig bei $30^\circ\text{C}/\text{h}$ auf 250°C erhitzt und dann bei $200^\circ\text{C}/\text{h}$ auf 800°C erhitzt. Die Temperatur von 800°C wurde 4h lang gehalten. Danach wurde die Probe abgekühlt. Die kalzinierte Probe wurde in Aluminium Pins gepresst. Die Pins wurden in AMS-Zahnräder platziert und standen somit für die AMS-Messung bereit.

8.3. Aufarbeitung der Lungenaschen für die Plutoniummessung

Die Lungenaschen, welche von P. Zima und W. Moser im Zuge ihrer Masterarbeiten bereits untersucht worden sind, wurden diesmal modifiziert nach der in den Vorversuchen beschriebenen Methode aufgearbeitet. Der grundlegende Unterschied bei dieser Arbeit bestand darin, dass die Lungenaschen mit konz. HNO_3 und konz. HF aufgeschlossen worden sind. Damit sollte wie bei der Methode von Irlweck eine fast vollständige Auflösung der Aschen

erreicht werden. Als Blank wurden die reinen Chemikalien der Prozedur parallel mit den Proben aufgearbeitet.

Die Lungenaschen wurden eingewogen, 10mL konz. HNO_3 hinzugefügt und ^{242}Pu -Spike hinzugegeben, um den absoluten Gehalt an ^{239}Pu und ^{240}Pu bestimmen zu können. In Tabelle 17 sind die Einwaagen der Lungenaschen, die zugehörigen Jahreszahlen und die Konzentration des hinzugefügten ^{242}Pu -Spikes dargestellt.

Tabelle 17: Zusammenschau der analysierten Lungenaschen für die Plutoniummessung

Probe	Jahr	EW Lungenasche [g]	$c(^{242}\text{Pu})$ [at/EW]
Blank 1AL			2,08E+08
Blank 2AL			2,08E+08
Probe 289	1962	1,0863	1,97E+08
Probe 373	1963	1,0425	1,99E+08
Probe 393	1963	1,0059	1,91E+08
Probe 246	1962	1,0320	2,07E+08
Probe 515	1964	1,0428	2,11E+08
Blank 1BL			2,17E+08
Probe 590/P	1965	1,0600	2,16E+08
Probe 603/P	1965	1,0698	2,12E+08
Probe 606/P	1965	1,0712	2,15E+08
Probe 617/P	1965	1,0138	2,14E+08
Probe 630/P	1965	1,0513	2,14E+08

Nach dem Zusetzen des ^{242}Pu -Spikes wurde die Probe zur Gleichgewichtseinstellung 24h staubgeschützt stehen gelassen. Dann wurde die Probe bis zur Trockene eingedampft, abermals 10mL konz. HNO_3 zugegeben und erneut eingedampft. Der Rückstand wurde zweimal mit je 7mL konz. HF , anschließend zweimal mit jeweils 10mL konz. HNO_3 eingedampft. Der Rückstand wurde dann in 10mL 7,2M HNO_3 aufgenommen und in ein Zentrifugenröhrchen überführt. Nach dem Zentrifugieren wurde die Probe (der Überstand) in ein Teflonbecher transferiert. Dann wurde der Rückstand zweimal mit 5mL 7,2M HNO_3 gewaschen und die Waschlösung wurde ebenfalls zur Probe zugegeben. Der Probe im Teflonbecher wurden dann 0,2g NaNO_2 beigelegt. Die Lösung wurde vorsichtig erhitzt bis die Entwicklung von NO_x (bräunliche Dämpfe) aufhörte. Das Pu lag nun als vierwertiger Hexanitratkomplex vor. Die auf Raumtemperatur abgekühlte Lösung wurde auf eine dreimal mit je 10mL 7,2M HNO_3 konditionierte Säule mit aufgeschlammten Dowex 1x2 (100-200 mesh, Cl^-) aufgetragen. Zuerst wurde zweimal mit je 15mL 7,2M HNO_3 gewaschen, um U, Am und Sr

zu eluieren, dann zweimal mit je 15mL 32% HCl Th eluiert. In ein Becherglas wurden 5mL konz. HNO_3 vorgelegt und dann wurde das Pu mit 50mL 0,36M HCl – 0,018M HF in den Teflonbecher eluiert. Die Pu-Fraktion wurde anschließend bis fast zur Trockene eingedampft. Der Rückstand wurde dreimal mit je 5mL 65%iger HNO_3 und einigen Tropfen 30%iger H_2O_2 abgeraucht, um die Fluoride zu entfernen. Dann wurde der Rückstand mit 5mL 3M HNO_3 aufgenommen und in ein 15mL Kunststoffröhrchen überführt. Es wurden 1mL prä nukleare Fe-Lösung (ca. 2mg/mL) hinzugefügt, vorsichtig mit konz. NH_3 ausgefällt, bis der Niederschlag bestehen geblieben ist und 24h geschüttelt. Der Niederschlag wurde abzentrifugiert und zweimal mit 4mL Milli-Q (pH = 8,5; mit konz. NH_3 grob eingestellt) gewaschen. Anschließend wurde der feuchte Niederschlag mit einer Pipette in ein kleines Eppendorfgefäß überführt. Die Probe wurde im Trockenschrank bei 90°C 20h getrocknet und dann vorsichtig in ein Quarzgefäß mit Deckel überführt. Das Quarzgefäß wurde im Glühofen platziert, zuerst vorsichtig bei 30°C/h auf 250°C erhitzt und dann bei 200°C/h auf 800°C erhitzt. Die Temperatur von 800°C wurde 4h lang gehalten und danach wurde die Probe abgekühlt. Die kalzinierte Probe wurde in Aluminium Pins gepresst. Die Pins wurden in AMS-Zahnräder platziert und standen somit für die AMS-Messung bereit.

9. Ergebnisse und Diskussion

Im Rahmen dieser Arbeit wurden die Atom- bzw. auch die Aktivitätskonzentrationen von ^{236}U , ^{239}Pu und ^{240}Pu und die Atomverhältnisse $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ und $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ in Luftfiltern und menschlichen Lungenaschen aus den frühen 60er-Jahren des letzten Jahrhunderts mittels AMS gemessen. Dabei wurden bestehende Arbeitsvorschriften modifiziert.

In den bisherigen Arbeiten von Zima und Moser war der „Bombenpeak“ bei den Messungen von ^{236}U in Lungenaschen gut sichtbar, nicht jedoch bei den Pu-Messungen (bei den alpha-spektroskopischen Messungen von Irlweck et al. war zumindest der Anstieg nach 1962 sehr wohl sichtbar; in diesem Fall waren die Proben durch Fusion vollständig in Lösung gebracht worden). Deswegen wurde nun versucht, die Lungenaschen mit konz. HF und konz. HNO_3 anstatt von 7,2M HNO_3 aufzuschließen, um zumindest einen größeren Anteil der Asche in Lösung zu bringen. Dabei wurden auch neue Aliquote derselben Proben, die schon Zima bzw. Moser untersucht haben, nochmals gemessen und die neu gewonnenen Werte wurden mit den bisherigen Ergebnissen verglichen.

9.1. Plutonium Luftfilter

In Tabelle 18 ist die Entnahme aus der Aufschlusslösung in Prozent, die Entnahme aus der Aufschlusslösung in g und das gemessene $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Atomerhältnis für alle gemessenen Proben angegeben.

In Tabelle 19 ist der Gehalt an ^{239}Pu und ^{240}Pu in Atomen pro g Asche, das Luftvolumen in m^3 , das durch die Filter gesaugt worden ist und der Gehalt an ^{239}Pu und ^{240}Pu in Atomen pro m^3 Luft angegeben. Die ^{239}Pu und ^{240}Pu Atome pro m^3 Luft wurden durch die Division des Gehaltes an ^{239}Pu und ^{240}Pu in Atomen pro Einwaage Asche durch das Luftvolumen in m^3 ermittelt. Durch die Gauß'sche Fehlerfortpflanzung wurde der resultierende Fehler ermittelt. Dabei wurde folgende Formel für die Fehlerfortpflanzung verwendet:

$$f_y = \sqrt{\left(\frac{\partial y}{\partial x_1} * f_1\right)^2 + \left(\frac{\partial y}{\partial x_2} * f_2\right)^2 + \dots}$$

f_y = Fehler der nicht direkt messbaren Größe

x = direkt messbare Größen

f = Fehler der direkt messbaren Größen

In die Fehlerrechnung wurde der Fehler der verwendeten Waage nicht miteinbezogen, da dieser Fehler um viele Größenordnungen kleiner war als die Fehler der Messungen. Die Konzentration des ^{242}Pu -Spikes wurde von der IAEA, der „International Atomic Energy Agency“, bestimmt und hat einen vernachlässigbar kleinen Fehler. Der Fehler des ^{233}U -Spikes beträgt 6×10^7 at/g und wurde berücksichtigt. Die zufälligen Fehler der AMS-Messungen schwanken für die Konzentration des ^{239}Pu zwischen 2% und 8% und für die Konzentration des ^{240}Pu zwischen 2% und 4%, wobei der Fehler für einen Messwert (Probe 6C/P) 9% beträgt. Diese Fehler wurden einbezogen. Die Messfehler für die Konzentration des ^{236}U schwanken zwischen 2% und 8%; nur bei den Proben 2C (21%), 4C (12%) und 5C (10%) lagen sie etwas darüber. Diese Fehler wurden allesamt einkalkuliert. Außerdem wurde der systematische Fehler des Luftdurchsatzes von 10% mitberücksichtigt.

Im Anhang befindet sich eine weitere Methode der Fehlerrechnung (lineares Fehlerfortpflanzungsgesetz) und die zugehörigen Tabellen für alle Messwerte (die Fehler berechnet mit der linearen Methode waren um ca. 25% höher als die hier angegebenen). Dabei wurde folgende Formel für die Fehlerfortpflanzung angewendet:

$$f_y = \left| \frac{\partial y}{\partial x_1} \right| * f_1 + \left| \frac{\partial y}{\partial x_2} \right| * f_2 + \dots$$

f_y = Fehler der nicht direkt messbaren Größe

x = direkt messbare Größen

f = Fehler der direkt messbaren Größen

9.1.1. Atomverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ Luftfilter

In Abbildung 14 ist der Verlauf für die $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Atomverhältnisse der Luftfilter über die Jahre 1962-1966 dargestellt. Für das Jahr 1963 standen leider keine Luftfilter zur Verfügung. Die gemessenen Verhältnisse befinden sich zwischen $0,164 \pm 0,007$ und $0,221 \pm 0,009$. Diese Werte entsprechen den in der Literatur publizierten Werten für das $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Verhältnis im globalen Fallout.

Das durchschnittliche $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Atomverhältnis im globalen Fallout aus den atmosphärischen Atomwaffentests beträgt $0,178 \pm 0,023$. (9)

Beide Plutoniumisotope entstammen dem globalen Fallout, weshalb ihr Verhältnis in dem betrachteten Zeitraum 1962-1966 keinen großen Schwankungen unterliegt.

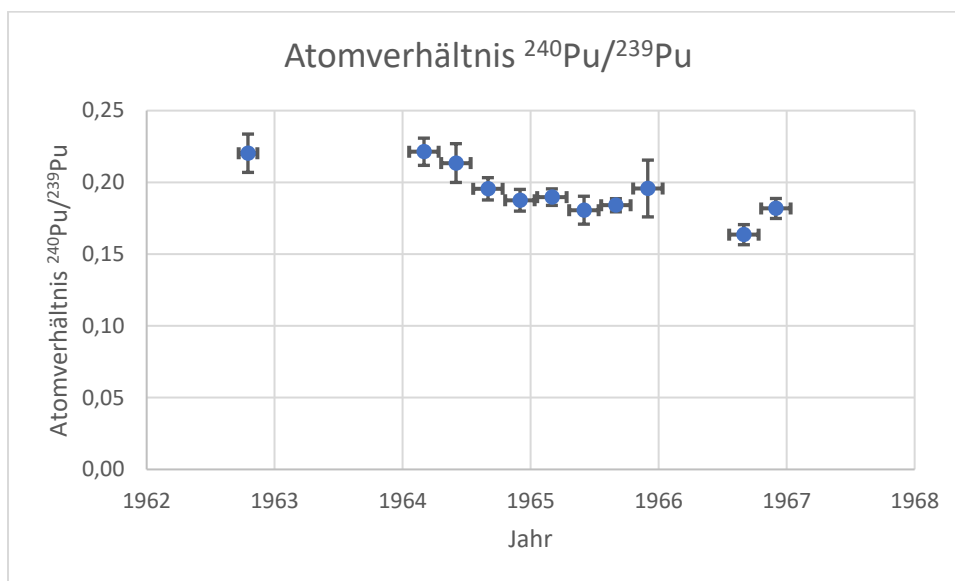


Abbildung 14: $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Atomverhältnisse der Luftfilter über die Jahre 1962-1966

Tabelle 18: Entnahme aus der Aufschlusslösung [%] [g] und das $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Atomverhältnis mit dem zugehörigen Fehler der untersuchten Luftfilter der Messstelle Wien Hohe Warte

Probe	Jahr	aus der Aufschlusslösung entnommen [%]	Entnahme [g] aus der Aufschlusslösung [g]	Atomverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	Fehler $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ [±]
Probe 2C/P	Okt/Nov/Dez 1966	8,15	2,2094 von 27,1220	0,182	0,007
Probe 3C/P	Jul/Aug/Sep 1966	9,98	2,5412 von 25,4646	0,164	0,007
Probe 4C/P	Jul/Aug/Sep 1965	10,02	2,7015 von 26,9513	0,184	0,005
Probe 5C/P	Okt/Nov/Dez 1965	10,40	1,8591 von 17,8854	0,196	0,020
Probe 6C/P	Apr/Mai/Jun 1965	10,29	1,8931 von 18,3918	0,181	0,010
Probe 7C/P	Jan/Feb/Mär 1965	9,97	1,7578 von 17,6271	0,190	0,006
Probe 8C/P	Okt/Nov/Dez 1964	5,82	1,0471 von 17,9751	0,188	0,008
Probe 9D/P	Jul/Aug/Sep 1964	5,36	1,1068 von 20,6481	0,196	0,008
Probe 10D/P	Apr/Mai/Jun 1964	5,39	0,8786 von 16,3152	0,213	0,014
Probe 11D/P	Jan/Feb/Mär 1964	5,12	1,0181 von 19,8810	0,221	0,009
Probe 12D/P	Sep/Okt 1962	10,12	1,3984 von 13,8179	0,220	0,013

Tabelle 19: Zusammenschau der Ergebnisse der Plutoniumuntersuchung für die Luftfilter der Messstelle Wien Hohe Warte

Probe	Jahr	^{239}Pu [at/g Asche]	Fehler ^{239}Pu [at/g Asche] [±]	^{240}Pu [at/g Asche]	Fehler ^{240}Pu [at/g Asche] [±]	Luftdurchsatz [m ³]	Fehler Luftdurchsatz [±%]	^{239}Pu [at/m ³]	Fehler ^{239}Pu [at/m ³]	^{240}Pu [at/m ³]	Fehler ^{240}Pu [at/m ³]
Probe 2C/P	Okt/Nov/Dez 1966	1,3E+10	3,7E+08	2,4E+09	6,2E+07	1,4E+03	1,0E+01	4,1E+05	4,2E+04	7,4E+04	7,6E+03
Probe 3C/P	Jul/Aug/Sep 1966	2,6E+10	8,3E+08	4,2E+09	1,2E+08	1,4E+03	1,0E+01	8,8E+05	9,3E+04	1,4E+05	1,5E+04
Probe 4C/P	Jul/Aug/Sep 1965	8,4E+10	1,7E+09	1,6E+10	2,4E+08	1,4E+03	1,0E+01	2,9E+06	2,9E+05	5,3E+05	5,4E+04

Probe 5C/P	Okt/Nov/Dez 1965	1,4E+10	7,7E+08	2,7E+09	2,3E+08	1,4E+03	1,0E+01	5,5E+05	6,3E+04	1,1E+05	1,4E+04
Probe 6C/P	Apr/Mai/Jun 1965	1,4E+11	5,7E+09	2,5E+10	8,6E+08	1,4E+03	1,0E+01	5,0E+06	5,4E+05	9,1E+05	9,6E+04
Probe 7C/P	Jan/Feb/Mär 1965	7,7E+09	2,0E+08	1,5E+09	2,3E+07	1,4E+03	1,0E+01	2,4E+06	2,5E+05	4,6E+05	4,6E+04
Probe 8C/P	Okt/Nov/Dez 1964	4,4E+09	1,5E+08	8,3E+08	1,7E+07	1,4E+03	1,0E+01	1,7E+06	1,8E+05	3,2E+05	3,2E+04
Probe 9D/P	Jul/Aug/Sep 1964	2,8E+11	8,2E+09	5,6E+10	1,5E+09	1,4E+03	1,0E+01	1,1E+07	1,1E+06	2,1E+06	2,2E+05
Probe 10D/P	Apr/Mai/Jun 1964	4,4E+11	2,1E+10	9,4E+10	3,8E+09	1,4E+03	1,0E+01	1,9E+07	2,1E+06	4,0E+06	4,4E+05
Probe 11D/P	Jan/Feb/Mär 1964	1,5E+11	5,0E+09	3,4E+10	9,5E+08	1,4E+03	1,0E+01	6,2E+06	6,5E+05	1,4E+06	1,4E+05
Probe 12D/P	Sep/Okt 1962	8,6E+10	4,1E+09	1,9E+10	7,2E+08	4,3E+02	1,0E+01	2,1E+06	2,3E+05	4,5E+05	4,8E+04

9.1.2. ^{239}Pu [at/m³], ^{240}Pu [at/m³] und Aktivitätssumme [Bq/m³]

In Tabelle 20 ist der Gehalt an ^{239}Pu und ^{240}Pu in Atomen pro m³ Luft angegeben. Über das Zerfallsgesetz wurden die Aktivitäten von ^{239}Pu und ^{240}Pu in Bq pro m³ Luft berechnet und die Summe dieser Aktivitäten gebildet. Die Summe der Aktivitäten ist ebenfalls in Tabelle 20 angegeben. Durch die Gauß'sche Fehlerfortpflanzung wurde der resultierende Fehler ermittelt.

Tabelle 20: ^{239}Pu [at/m³], ^{240}Pu [at/m³] und Aktivitätssumme [Bq/m³] für die Luftfilter der Messstelle Wien Hohe Warte

Probe	Jahr	^{239}Pu [at/m ³]	Fehler ^{239}Pu [at/m ³] [±]	^{240}Pu [at/m ³]	Fehler ^{240}Pu [at/m ³] [±]	Summe A [Bq/m ³]	Fehler Summe A [Bq/m ³] [±]
Probe 2C/P	Okt/Nov/Dez 1966	4,1E+05	4,2E+04	7,4E+04	7,6E+03	6,2E-07	6,3E-08
Probe 3C/P	Jul/Aug/Sep 1966	8,8E+05	9,3E+04	1,4E+05	1,5E+04	1,3E-06	1,3E-07
Probe 4C/P	Jul/Aug/Sep 1965	2,9E+06	2,9E+05	5,3E+05	5,4E+04	4,4E-06	4,5E-07
Probe 5C/P	Okt/Nov/Dez 1965	5,5E+05	6,3E+04	1,1E+05	1,4E+04	8,6E-07	9,6E-08
Probe 6C/P	Apr/Mai/Jun 1965	5,0E+06	5,4E+05	9,1E+05	9,6E+04	7,6E-06	7,9E-07
Probe 7C/P	Jan/Feb/Mär 1965	2,4E+06	2,5E+05	4,6E+05	4,6E+04	3,7E-06	3,8E-07
Probe 8C/P	Okt/Nov/Dez 1964	1,7E+06	1,8E+05	3,2E+05	3,2E+04	2,6E-06	2,7E-07
Probe 9D/P	Jul/Aug/Sep 1964	1,1E+07	1,1E+06	2,1E+06	2,2E+05	1,7E-05	1,7E-06
Probe 10D/P	Apr/Mai/Jun 1964	1,9E+07	2,1E+06	4,0E+06	4,4E+05	3,1E-05	3,2E-06
Probe 11D/P	Jan/Feb/Mär 1964	6,2E+06	6,5E+05	1,4E+06	1,4E+05	1,0E-05	1,0E-06
Probe 12D/P	Sep/Okt 1962	2,1E+06	2,3E+05	4,5E+05	4,8E+04	3,4E-06	3,6E-07

In Abbildung 15 wurde die Summe der Aktivitäten in fCi/m³ über die Jahre 1962-1966 aufgetragen. Dabei ist zu beachten, dass 1 Ci 3,7x10¹⁰ Bq beträgt. Nach der Umrechnung von Bq zu Ci wird durch 10⁻¹⁵ dividiert, um zur Einheit fCi zu gelangen (1 fCi/m³=3,7 mBq/ 100 m³).

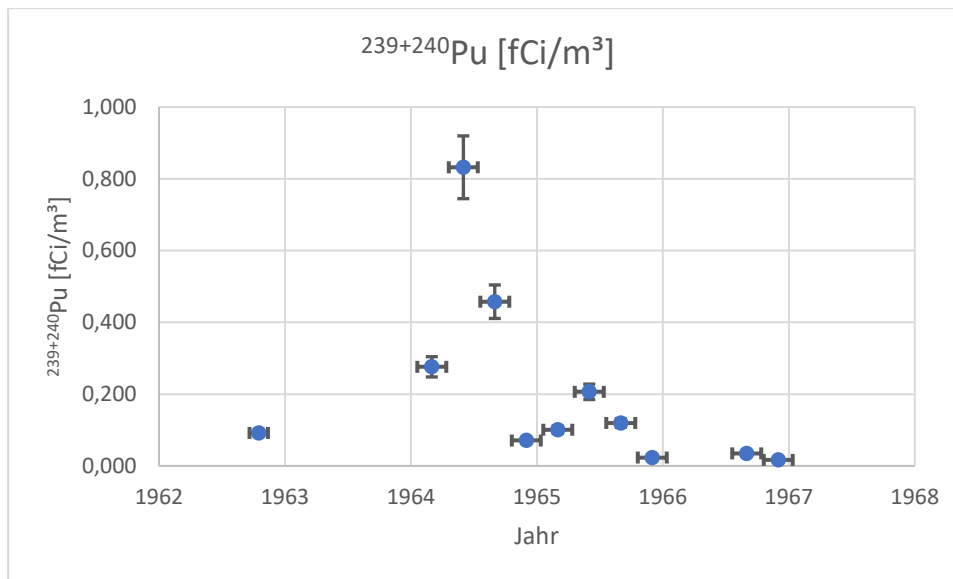


Abbildung 15: Summe der $^{239+240}\text{Pu}$ -Aktivitäten der Luftfilter in fCi/m³ über die Jahre 1962-1966

Im Jahr 1962 betrug die $^{239+240}\text{Pu}$ Aktivität $(0,092 \pm 0,0096)$ fCi/m³. Die letzten Atomwaffenversuchsserien der USA und der UdSSR bis zum 25. Dezember 1962 erhöhten die $^{239,240}\text{Pu}$ -Konzentrationen in der Atmosphäre immens. Die gemessenen Aktivitätswerte für $^{239,240}\text{Pu}$ liegen im Jahr 1964 für die Monate Jänner bis März im Mittel bei $(0,276 \pm 0,028)$ fCi/m³, für die Monate April bis Juni bei $(0,832 \pm 0,088)$ fCi/m³, für die Monate Juli bis September bei $(0,458 \pm 0,047)$ fCi/m³ und für die Monate Oktober bis Dezember bei $(0,071 \pm 0,007)$ fCi/m³. In den Monaten April bis Juni im Jahr 1964 wird das Maximum der gesamten vorhandenen Proben erreicht. Die Maxima werden durch den verstärkten Luftmassenaustausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre stets im Frühjahr erreicht. Im Jahr 1965 liegen die Aktivitätswerte für die Monate Jänner bis März im Mittel bei $(0,101 \pm 0,010)$ fCi/m³, für die Monate April bis Juni bei $0,206 \pm 0,022$ fCi/m³, für die Monate Juli bis September bei $(0,120 \pm 0,012)$ fCi/m³ und für die Monate Oktober bis Dezember bei $(0,023 \pm 0,003)$ fCi/m³. Das Maximum wird im Jahr 1965 wie im Jahr 1964 in den Monaten April bis Juni erreicht. Danach sinkt die Aktivitätssumme erneut bis Dezember 1965. Im Jahr 1966 liegen die Aktivitätswerte im Mittel für die Monate Juli bis September bei $(0,035 \pm 0,004)$ fCi/m³ und für die Monate Oktober bis Dezember bei $(0,017 \pm 0,002)$ fCi/m³. Auch wenn im Jahr 1966, aufgrund von fehlenden Luftfiltern, das Frühjahrsmaximum nicht erfasst werden konnte ist zu erkennen, dass in diesem Jahr die niedrigsten Werte gemessen worden sind. Sowohl die stetige Abnahme des Jahresmaximums als auch der anderen Messwerte ist auf das am 5. August 1963 unterzeichnete Moskauer Atomteststoppabkommen zurückzuführen. Irlweck et

al. haben für die gleichen Luftfilter für die Aktivität von $^{239(240)}\text{Pu}$ den Höchstwert im Frühjahr 1963 gemessen; diese betrug in etwa 1fCi/m^3 .

In Tabelle 21 wurden die Jahresmittelwerte der Aktivitätssummen gebildet, um die Ergebnisse mit den alpha-spektrometrischen Analysen der Luftfilter von Irlweck et al. und anderen in der Literatur publizierten Werten vergleichen zu können. (5)

Tabelle 21: Die Jahresmittelwerte der Aktivitätssummen von $^{239+240}\text{Pu}$ der analysierten Luftfilter der Messstelle Wien Hohe Warte im Vergleich zu den Werten anderer Städte [fCi/m^3]

Messstelle	Wien/Hohe Warte (AMS)	Wien/Hohe Warte (Irlweck et al.)	Chilton (UK)	Ispra (I)	New York (USA)
1962	0,1	0,3	0,4	0,5	0,7
1963	-	0,6	0,8	1,0	1,7
1964	0,4	0,3	0,5	0,6	0,9
1965	0,1	0,1	0,2	0,3	0,3
1966	0,03	0,05	0,1	0,1	0,1

Im Jahr 1962 wurde im Zuge dieser Arbeit nur ein Drittel der Aktivität im Vergleich zu Irlweck et al. gemessen. Das liegt an der Tatsache, dass für die vorliegende Arbeit nur Filter für die Monate September bis Oktober zur Verfügung gestanden sind, die das Jahresminimum im Jahr 1962 darstellen. Für die Jahre 1964-1966 waren die Mittelwerte aus beiden Untersuchungen durchaus vergleichbar. Gegenüber anderen Messstellen kann festgestellt werden, dass die Jahresmittelwerte der $^{239+240}\text{Pu}$ -Aktivität in Wien wesentlich geringer waren. Die höchsten Werte wurden in allen Messstellen im Jahr 1963 gemessen.

In Abbildung 16 wurde die Summe der Aktivitäten in Bq/m^3 über die Jahre 1962-1966 aufgetragen.

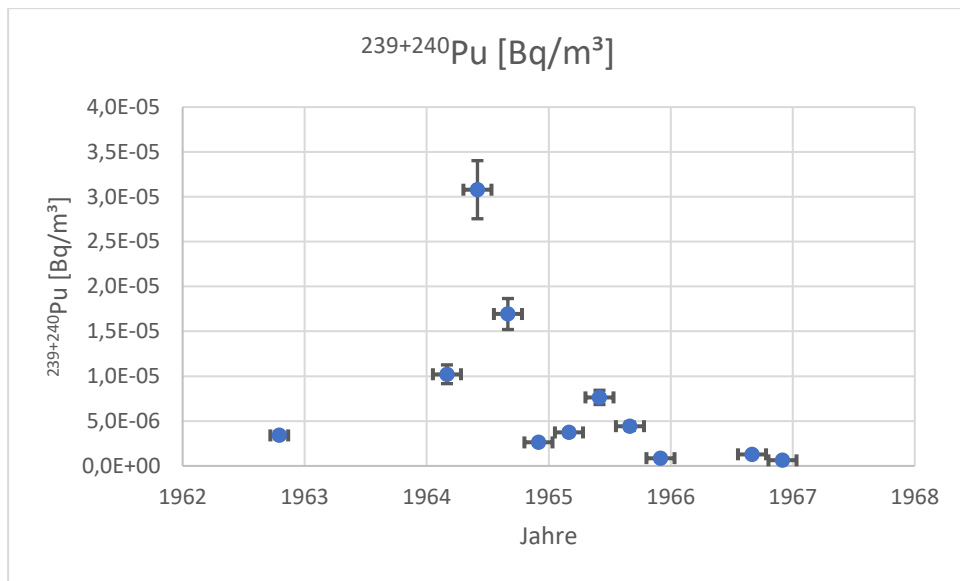


Abbildung 16: Summe der $^{239+240}\text{Pu}$ -Aktivitäten der Luftfilter in Bq/m^3 über die Jahre 1962-1966

In Abbildung 17 und Abbildung 18 wurden die ^{239}Pu Atome pro m^3 Luft und ^{240}Pu Atome pro m^3 Luft gegen die Jahre 1962-1966 aufgetragen.

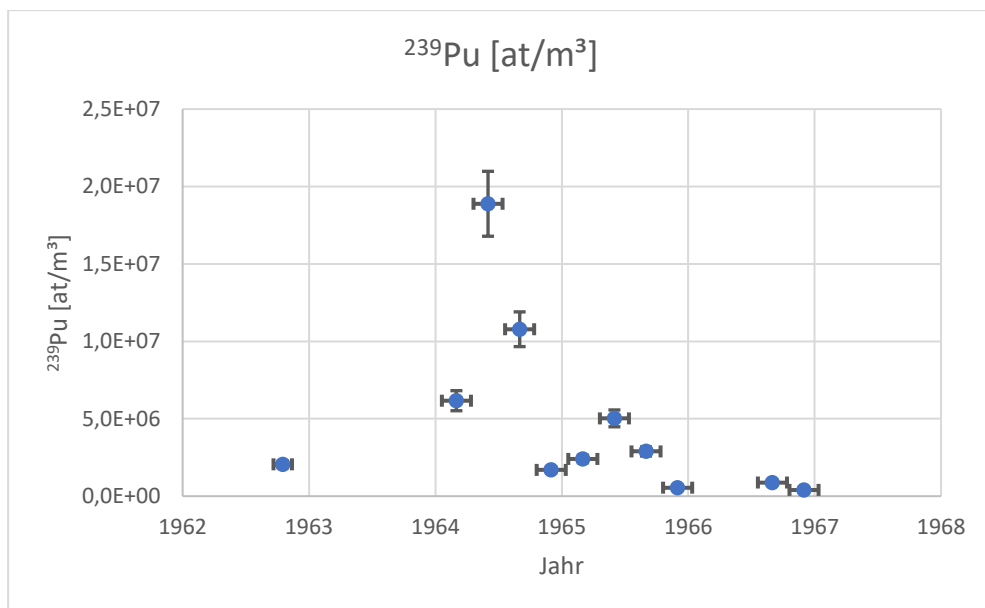


Abbildung 17: ^{239}Pu Atome pro m^3 Luft über die Jahre 1962-1966

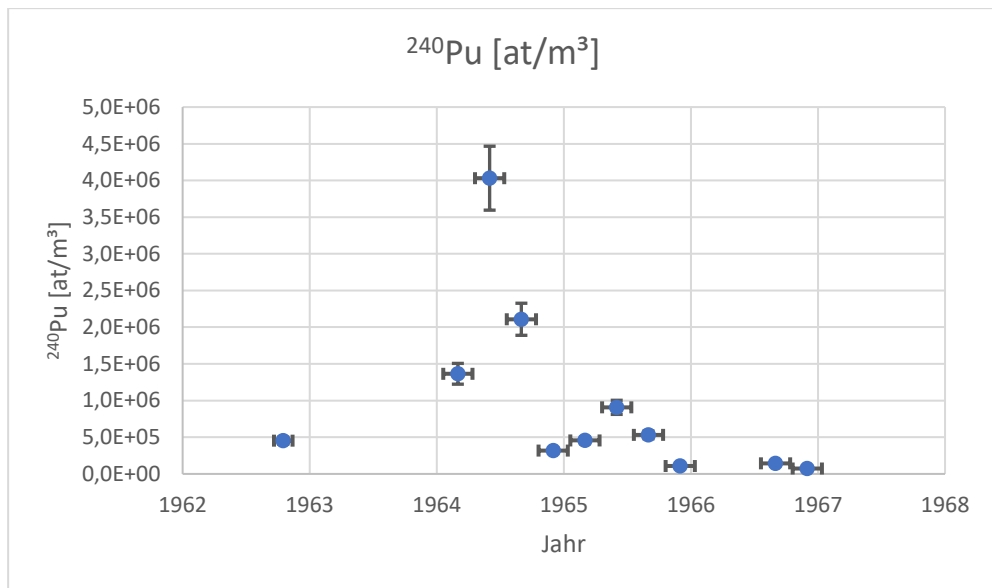


Abbildung 18: ^{240}Pu Atome pro m³ Luft über die Jahre 1962-1966

9.2. Uran Luftfilter

In Tabelle 22 ist die Entnahme aus der Aufschlusslösung in Prozent, die Entnahme aus der Aufschlusslösung in g und das gemessene $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Atomverhältnis für alle gemessenen Proben angegeben.

In Tabelle 23 ist der Gehalt an ^{236}U in Atomen pro g Asche, das Luftvolumen in m^3 und der Gehalt an ^{236}U in Atomen pro m^3 Luft angegeben. Die ^{236}U Atome pro m^3 Luft wurden durch die Division des Gehaltes an ^{236}U in Atomen pro Einwaage Asche durch das Luftvolumen in m^3 ermittelt. Der resultierende Fehler wurde durch die Gauß'sche Fehlerfortpflanzung ermittelt.

9.2.1. Atomverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ Luftfilter

In Abbildung 19 ist der Verlauf für die $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Atomverhältnisse der Luftfilter über die Jahre 1962-1966 dargestellt. Für das Jahr 1963 standen leider keine Luftfilter zur Verfügung.

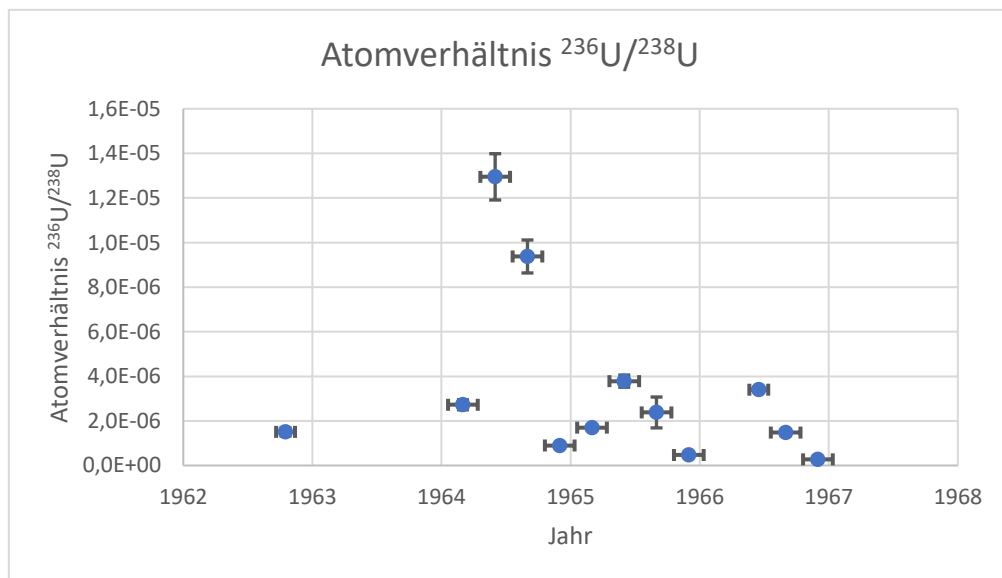


Abbildung 19: $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Atomverhältnisse der Luftfilter über die Jahre 1962-1966 dargestellt

Tabelle 22: Entnahme aus der Aufschlusslösung [%] [g] und das $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Atomverhältnis mit dem zugehörigen Fehler der untersuchten Luftfilter der Messstelle Wien Hohe Warte

Probe	Monat	aus der Aufschlusslösung entnommen [%]	Entnahme [g] aus der Aufschlusslösung [g]	Atomverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$	Fehler $^{236}\text{U}/^{238}\text{U} \pm$
Probe1B	Mai/Juni 1966	100		3,4E-06	9,5E-08
Probe2C	Okt/Nov/Dez 1966	10,11	1,7779 von 17,5995	2,8E-07	7,7E-08
Probe3C	Jul/Aug/Sep 1966	10,05	1,7765 von 17,6782	1,5E-06	1,4E-07
Probe4C	Jul/Aug/Sep 1965	10,14	1,6780 von 16,5450	2,4E-06	6,9E-07
Probe5C	Okt/Nov/Dez 1965	10,03	1,8927 von 18,8760	4,7E-07	3,3E-08
Probe6C	Apr/Mai/Jun 1965	10,05	1,7997 von 17,9044	3,8E-06	2,7E-07
Probe7C	Jan/Feb/Mär 1965	10,15	1,8264 von 18,0019	1,7E-06	7,7E-08
Probe8C	Okt/Nov/Dez 1964	10,30	1,6176 von 15,7052	9,0E-07	2,8E-08
Probe9D	Jul/Aug/Sep 1964	10,28	1,6550 von 16,0917	9,4E-06	7,4E-07
Probe10D	Apr/Mai/Jun 1964	10,22	1,6685 von 16,3185	1,3E-05	1,0E-06
Probe11D	Jan/Feb/Mär 1964	10,19	1,3200 von 12,9511	2,7E-06	2,3E-07
Probe12D	Sep/Okt 1962	10,45	1,7018 von 16,2907	1,5E-06	1,8E-07

Tabelle 23: Zusammenschau der Ergebnisse der Uranuntersuchung für die Luftfilter der Messstelle Wien Hohe Warte

Probe	Monat	^{236}U [at/g Asche]	Fehler ^{236}U [at/g Asche] $\pm$	Luftdurchsatz [m ³]	Fehler Luftdurchsatz $\pm$ [%]	^{236}U [at/m ³]	Fehler ^{236}U [at/m ³]
Probe1B	Mai/Juni 1966	3,1E+10	8,3E+08	1440	10	1,2E+06	1,2E+05
Probe2C	Okt/Nov/Dez 1966	5,6E+09	1,2E+09	1440	10	1,7E+05	4,0E+04
Probe3C	Jul/Aug/Sep 1966	1,7E+10	7,7E+08	1440	10	5,8E+05	6,4E+04
Probe4C	Jul/Aug/Sep 1965	3,6E+10	4,2E+09	1440	10	1,2E+06	1,9E+05
Probe5C	Okt/Nov/Dez 1965	6,5E+09	6,2E+08	1440	10	2,6E+05	3,5E+04
Probe6C	Apr/Mai/Jun 1965	5,7E+10	2,3E+09	1440	10	2,1E+06	2,2E+05

Probe7C	Jan/Feb/Mär 1965	3,0E+09	1,6E+08	1440	10	9,3E+05	1,1E+05
Probe8C	Okt/Nov/Dez 1964	1,5E+09	7,6E+07	1440	10	5,8E+05	6,5E+04
Probe9D	Jul/Aug/Sep 1964	9,8E+10	1,7E+09	1440	10	3,7E+06	3,8E+05
Probe10D	Apr/Mai/Jun 1964	1,7E+11	8,3E+09	1440	10	7,2E+06	8,0E+05
Probe11D	Jan/Feb/Mär 1964	6,8E+10	4,1E+09	1440	10	2,7E+06	3,2E+05
Probe12D	Sep/Okt 1962	3,2E+10	2,5E+09	432	10	7,7E+05	9,7E+04

Im Jahr 1962 wurde für die Monate September bis Oktober ein $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Atomverhältnis von $1,5 \times 10^{-6} \pm 1,8 \times 10^{-7}$ gemessen. Durch die letzten Atomwaffenversuchsserien der USA und der UdSSR bis zum 25. Dez 1962 erhöhte sich das Atomverhältnis; dies ist noch an den Messwerten der Monate April bis September im Jahr 1964 sichtbar. Das Atomverhältnis beträgt im Jahr 1964 für die Monate Jänner bis März $2,7 \times 10^{-6} \pm 2,3 \times 10^{-7}$ und erreicht für die Monate April bis Juni das Maximum der gesamten Messreihe mit einem Atomverhältnis von $1,3 \times 10^{-5} \pm 1,0 \times 10^{-6}$. Im Gegensatz zum $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ -Atomverhältnis, bei dem beide Isotope dem nuklearen Fallout entstammen, kann im $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Atomverhältnis eine Veränderung registriert werden, da das ^{236}U -Isotop dem nuklearen Fallout zuzuschreiben ist, während das ^{238}U -Isotop resuspendiertem Bodenmaterial entstammt. Für die Monate Juli bis September und Oktober bis Dezember nehmen die Verhältnisse im Jahr 1964 ab und betragen $9,4 \times 10^{-6} \pm 7,4 \times 10^{-7}$ und $9,0 \times 10^{-7} \pm 2,8 \times 10^{-8}$. Anfang des Jahres 1965 beträgt das Verhältnis $1,7 \times 10^{-6} \pm 7,7 \times 10^{-8}$ und erreicht wie gewohnt das Frühjahresmaximum in den Monaten April bis Juni mit einem Wert von $3,8 \times 10^{-6}$. Der Wert sinkt für die Monate Juli bis September auf $2,4 \times 10^{-6} \pm 6,9 \times 10^{-7}$. Das Jahresminimum für das Jahr 1965 wird in den Monaten Oktober bis Dezember erreicht und beträgt $4,7 \times 10^{-7} \pm 3,3 \times 10^{-8}$. Im Vergleich zu den Plutoniummessungen konnten hier auch Messungen für die Monate Mai und Juni gemacht werden, sodass das Frühjahresmaximum des Jahres 1966 registriert werden konnte. Das Verhältnis für die Monate Mai und Juni im Jahr 1966 beträgt $3,4 \times 10^{-6} \pm 9,5 \times 10^{-8}$, um daraufhin in den Monaten Juli bis September auf $1,5 \times 10^{-6} \pm 1,4 \times 10^{-7}$ abzusinken. Das Minimum für die gesamte Periode der Messung wird im Jahr 1966 in den Monaten Oktober bis Dezember erreicht und beträgt $2,8 \times 10^{-7} \pm 7,7 \times 10^{-8}$.

Die Atomverhältnisse liegen also zwischen $1,3 \times 10^{-5}$ und $2,8 \times 10^{-7}$ und entsprechen den in der Literatur publizierten Werten für Fallout-belastete Proben.

9.2.2. ^{236}U [at/m³] und Aktivität [Bq/m³]

In Tabelle 24 ist der Gehalt an ^{236}U in Atomen pro m³ Luft angegeben. Über das Zerfallsgesetz wurde die Aktivität von ^{236}U in Bq pro m³ Luft berechnet. Durch die Gauß'sche Fehlerfortpflanzung wurde der resultierende Fehler ermittelt. Sowohl die Aktivitäten als auch die Fehler wurden von Bq/m³ in aCi/m³ umgeformt. Dabei ist zu beachten, dass 1 Ci $3,7 \times 10^{10}$

Bq beträgt. Nach der Umrechnung von Bq zu Ci wird durch 10^{-18} dividiert, um zur Einheit aCi zu gelangen.

Tabelle 24 : ^{236}U [at/m³] und die ^{236}U -Aktivität [Bq/m³] [aCi/m³] für die Luftfilter der Messstelle Wien Hohe Warte

Probe	Monat	^{236}U [at/m ³]	Fehler ^{236}U [at/m ³] [±]	A ^{236}U [Bq/m ³]	Fehler A ^{236}U [Bq/m ³]	A ^{236}U [aCi/m ³]	Fehler A ^{236}U [aCi/m ³]
Probe1B	Mai/Juni 1966	1,2E+06	1,2E+05	1,1E-09	1,2E-10	0,030	0,003
Probe2C	Okt/Nov/Dez 1966	1,7E+05	4,0E+04	1,6E-10	3,8E-11	0,004	0,001
Probe3C	Jul/Aug/Sep 1966	5,8E+05	6,4E+04	5,5E-10	6,0E-11	0,015	0,002
Probe4C	Jul/Aug/Sep 1965	1,2E+06	1,9E+05	1,2E-09	1,8E-10	0,031	0,005
Probe5C	Okt/Nov/Dez 1965	2,6E+05	3,5E+04	2,4E-10	3,3E-11	0,006	0,001
Probe6C	Apr/Mai/Jun 1965	2,1E+06	2,2E+05	2,0E-09	2,1E-10	0,053	0,006
Probe7C	Jan/Feb/Mär 1965	9,3E+05	1,1E+05	8,8E-10	9,9E-11	0,024	0,003
Probe8C	Okt/Nov/Dez 1964	5,8E+05	6,5E+04	5,4E-10	6,1E-11	0,015	0,002
Probe9D	Jul/Aug/Sep 1964	3,7E+06	3,8E+05	3,5E-09	3,5E-10	0,094	0,010
Probe10D	Apr/Mai/Jun 1964	7,2E+06	8,0E+05	6,7E-09	7,5E-10	0,182	0,020
Probe11D	Jan/Feb/Mär 1964	2,7E+06	3,2E+05	2,5E-09	3,0E-10	0,069	0,008
Probe12D	Sep/Okt 1962	7,7E+05	9,7E+04	7,2E-10	9,1E-11	0,020	0,002

In Abbildung 20 wurden die Aktivitäten von ^{236}U in aCi/m³ über die Jahre 1962-1966 aufgetragen.

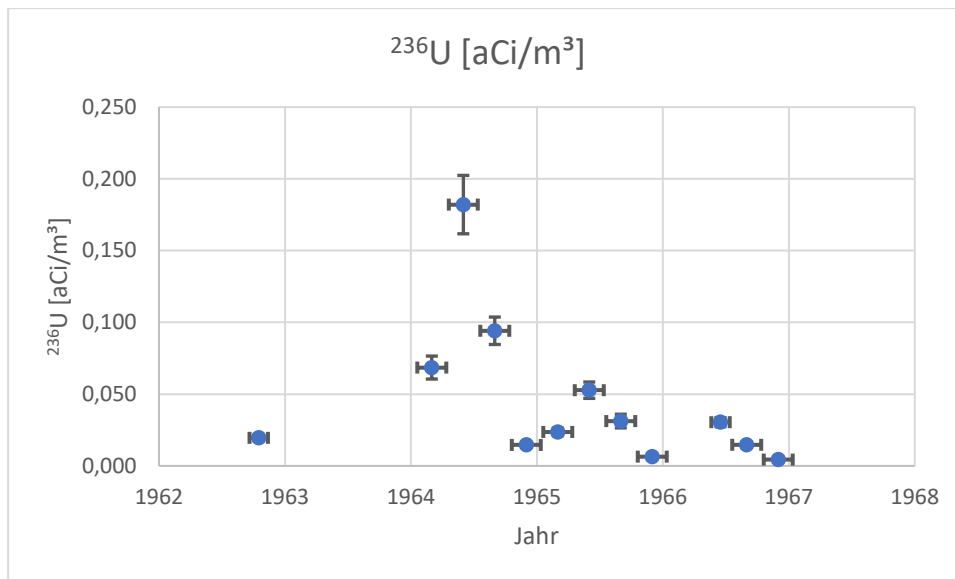


Abbildung 20: Aktivitäten von ^{236}U der Luftfilter in aCi/m³ über die Jahre 1962-1966

Das Maximum der Aktivität wird wie gewohnt im Jahr 1964 in den Monaten April bis Juni erreicht und beträgt $(0,182 \pm 0,020)$ aCi/m³. Das Minimum wird Ende 1966 in den Monaten Oktober bis Dezember erreicht und beträgt $(0,004 \pm 0,001)$ aCi/m³. Der Jahresmittelwert der Aktivität für die gemessenen Proben beträgt für das Jahr 1962 $0,002$ aCi/m³, für das Jahr 1964 $0,090$ aCi/m³, für das Jahr 1965 $0,029$ aCi/m³ und für das Jahr 1966 $0,017$ aCi/m³. Das Aktivitätsverhältnis $^{239+240}\text{Pu}/^{236}\text{U}$ beträgt für die gesamte Messperiode 4070 ± 720 . Irlweck et al. haben für die gleichen Luftfilter für die Aktivität von $^{239(240)}\text{Pu}$ den Höchstwert im Frühjahr 1963 gemessen. Nimmt man den höchsten gemessenen Wert für die $^{239(240)}\text{Pu}$ -Aktivität von Irlweck et al. aus dem Frühjahr 1963, welche in etwa 1000 aCi/m³ betrug, so kann über das Aktivitätsverhältnis von $^{239+240}\text{Pu}/^{236}\text{U}$ für die Aktivität von ^{236}U im Frühjahr 1963 ein Wert von $0,25$ aCi/m³ geschätzt werden; dieser Wert ist wie erwartet höher als der Maximalwert im Jahr 1964.

In Abbildung 21 wurde die Aktivität von ^{236}U in Bq/m³ über die Jahre 1962-1966 aufgetragen. In Abbildung 22 wurden die ^{236}U Atome pro m³ Luft gegen die Jahre 1962 bis 1967 aufgetragen.

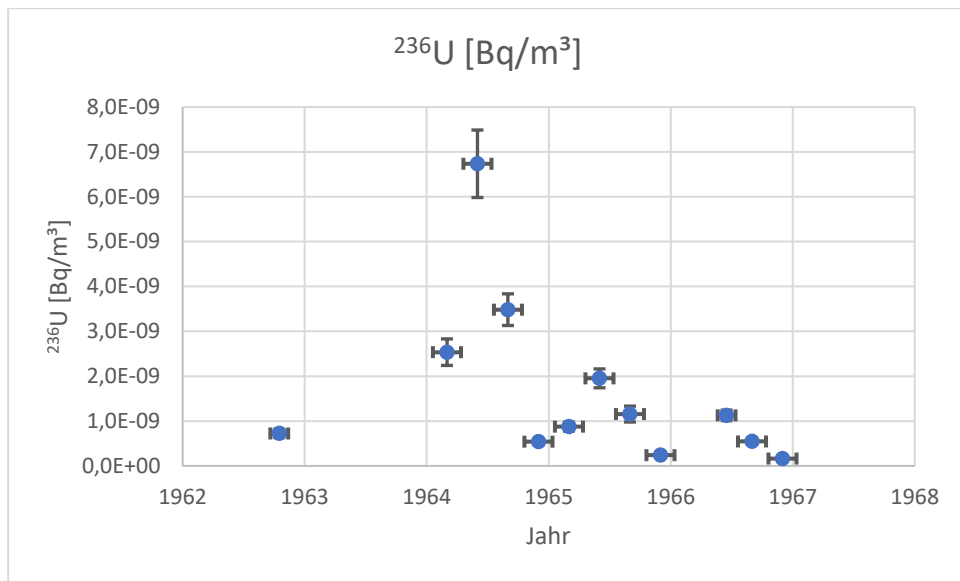


Abbildung 21: Aktivität von ^{236}U in Bq/m³ über die Jahre 1962-1966

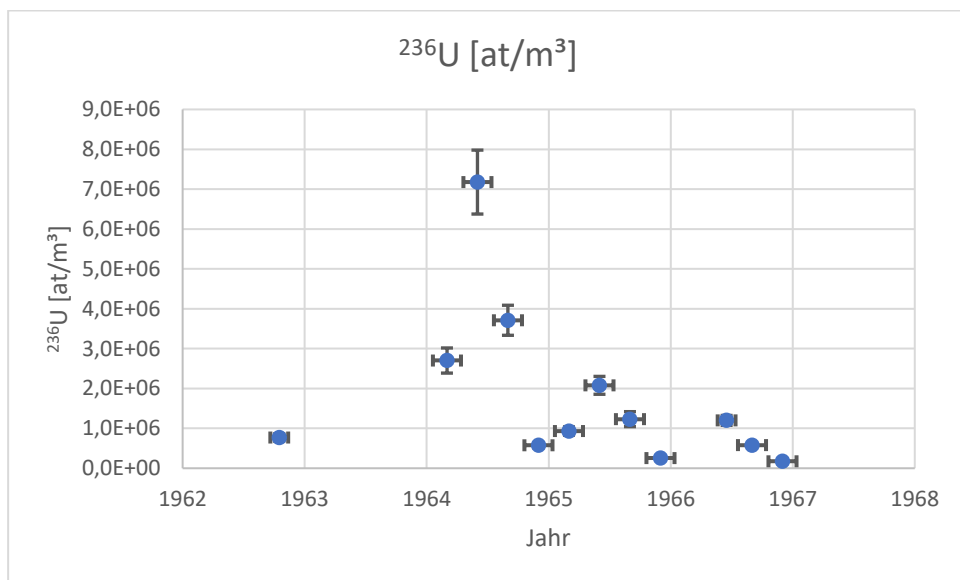


Abbildung 22: ^{236}U Atome pro m³ Luft gegen die Jahre 1962 bis 1967

9.3. Plutonium Lungenasche

In Tabelle 25 ist der Gehalt an ^{239}Pu und ^{240}Pu in Atomen pro g Asche und das $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Atomverhältnis mit den zugehörigen Fehlern angegeben. Zum Vergleich sind die von P. Zima und W. Moser unter Verwendung etwas anderer Arbeitsvorschriften gemessenen Werte für dieselben Proben angegeben. Die mit 2x gekennzeichneten Proben wurden einmal nach einer Arbeitsvorschrift für sowohl Uran als auch Plutonium enthaltende AMS-Proben und einmal nach einer von Uran unabhängigen Plutoniumprozedur aufgearbeitet. Die mit 3x gekennzeichnete Probe wurde einmal für die gemeinsame Uran- und Plutoniummessung und zweimal nur für die Plutoniummessung aufgearbeitet. Der fehlergewichtete Mittelwert und der äußere bzw. innere Fehler dieser Proben wurde berechnet und jeweils der größere der beiden angegeben. Diese Aufbereitungsprozeduren sind in der Masterarbeit von W. Moser (2) beschrieben.

In Abbildung 23 sind die $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Atomverhältnisse für die sowohl von P. Zima und W. Moser als auch im Zuge dieser Arbeit vermessen Lungenaschen dargestellt.

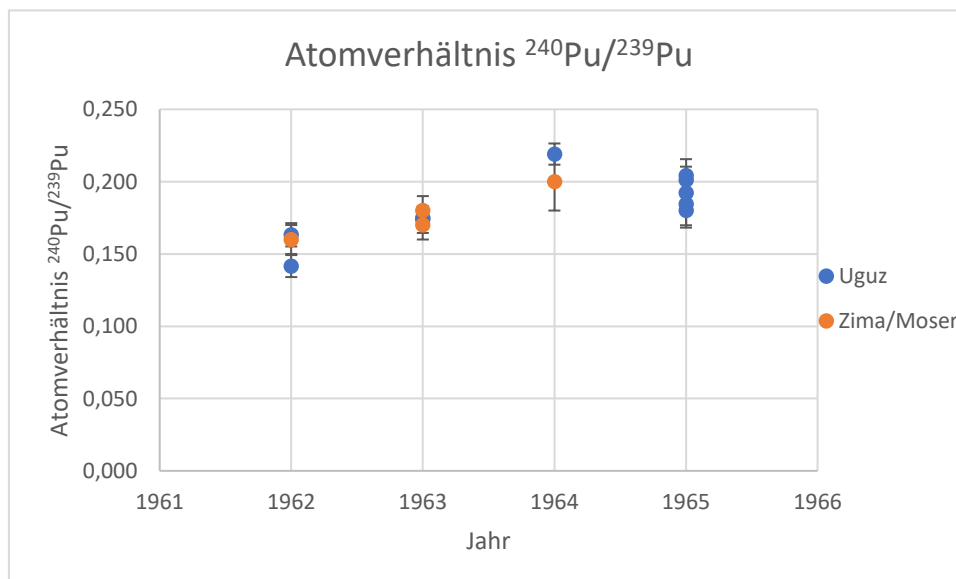


Abbildung 23: $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Atomverhältnisse für die sowohl von P. Zima und W. Moser als auch im Zuge dieser Arbeit vermessen Lungenaschen

Tabelle 25: Zusammenschau der Ergebnisse der Plutoniummessung für die analysierten Lungenaschen

Probe		Jahr	^{239}Pu [at/g Asche]	Fehler ^{239}Pu [at/g Asche] [±]	^{240}Pu [at/g Asche]	Fehler ^{240}Pu [at/g Asche] [±]	Atomverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	Fehler $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ [±]
Probe 289		1962	8,7E+08	4,0E+07	1,4E+08	2,5E+06	0,163	0,008
Probe 373		1963	5,5E+08	2,7E+07	9,6E+07	2,3E+06	0,174	0,009
Probe 393		1963	6,8E+08	2,2E+07	1,2E+08	2,8E+06	0,175	0,007
Probe 246		1962	1,8E+08	7,9E+06	2,6E+07	8,3E+05	0,142	0,008
Probe 515		1964	9,5E+08	2,7E+07	2,1E+08	3,7E+06	0,219	0,007
Probe 289 (2x)	Zima/Moser	1962	1,1E+09	5,7E+07	1,7E+08	9,5E+06	0,160	0,010
Probe 373 (2x)	Zima/Moser	1963	5,2E+08	3,4E+07	9,0E+07	5,7E+06	0,170	0,010
Probe 393 (3x)	Zima/Moser	1963	7,7E+08	8,1E+07	1,5E+08	6,2E+06	0,180	0,010
Probe 515	Zima/Moser	1964	1,1E+09	7,7E+07	2,2E+08	8,9E+06	0,200	0,020
Probe 590/P		1965	3,8E+08	2,8E+07	6,9E+07	1,9E+06	0,185	0,015
Probe 603/P		1965	4,6E+08	2,6E+07	8,3E+07	2,9E+06	0,180	0,012
Probe 606/P		1965	5,1E+08	2,6E+07	9,8E+07	3,0E+06	0,192	0,011
Probe 617/P		1965	7,2E+08	2,9E+07	1,4E+08	3,4E+06	0,201	0,009
Probe 630/P		1965	1,3E+09	7,1E+07	2,7E+08	3,8E+06	0,204	0,011

Innerhalb der Fehlergrenzen stimmen die im Zuge dieser Arbeit erhaltenen Messergebnisse trotz der verschiedenen Methoden mit den Messergebnissen von P. Zima und W. Moser für Aliquote derselben Proben überein. Die $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Atomverhältnisse befinden sich für alle Messergebnisse zwischen $0,142 \pm 0,008$ und $0,219 \pm 0,007$. Diese Werte entsprechen den in der Literatur publizierten Werten für das $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Atomverhältnis im globalen Fallout. Beide Plutoniumisotope entstammen dem globalen Fallout, weshalb ihr Verhältnis in dem betrachteten Zeitraum 1962-1966 keinen großen Schwankungen unterliegt.

In Abbildung 24 und in Abbildung 25 sind die ^{239}Pu und ^{240}Pu Atome pro g Asche gegen die Jahreszahl aufgetragen. Die Messergebnisse von P. Zima und W. Moser sind abermals in orange zum Vergleich abgebildet.

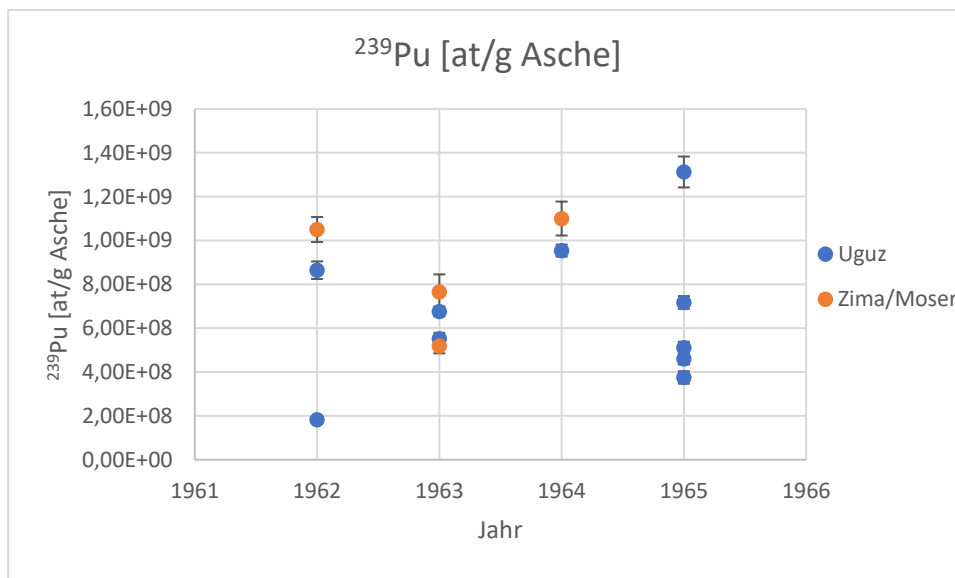


Abbildung 24: ^{239}Pu Atome pro g Asche über die Jahre 1962-1965

Die im Zuge dieser Arbeit verwendete Methode für den Aufschluss der Lungenaschen liefert ähnliche Messergebnisse für Aliquote derselben Proben wie die Methoden, die von P. Zima und W. Moser verwendet wurden. Der „Bombenpeak“ oder zumindest ein starker Anstieg im Jahr 1963 ist bei den Plutoniummessungen der Lungenaschen im Gegensatz zu den Luftfiltern nicht sichtbar. Die natürlichen Schwankungen zwischen den Proben im selben Jahr sind dahingegen viel größer. Im Jahr 1965 ist durch die hohe Anzahl an Proben zu erkennen, dass die natürlichen Schwankungen zwischen den Proben im selben Jahr sehr groß sind. Die Werte für das Jahr 1965 liegen zwischen $(1,3 \times 10^9 \pm 7,1 \times 10^7)$ at/g Asche und $(3,8 \times 10^8 \pm 2,8 \times 10^7)$ at/g Asche. Eventuell bedarf es einer deutlich höheren Probenanzahl, um den Bombenpeak in diesen Jahren sichtbar zu machen.

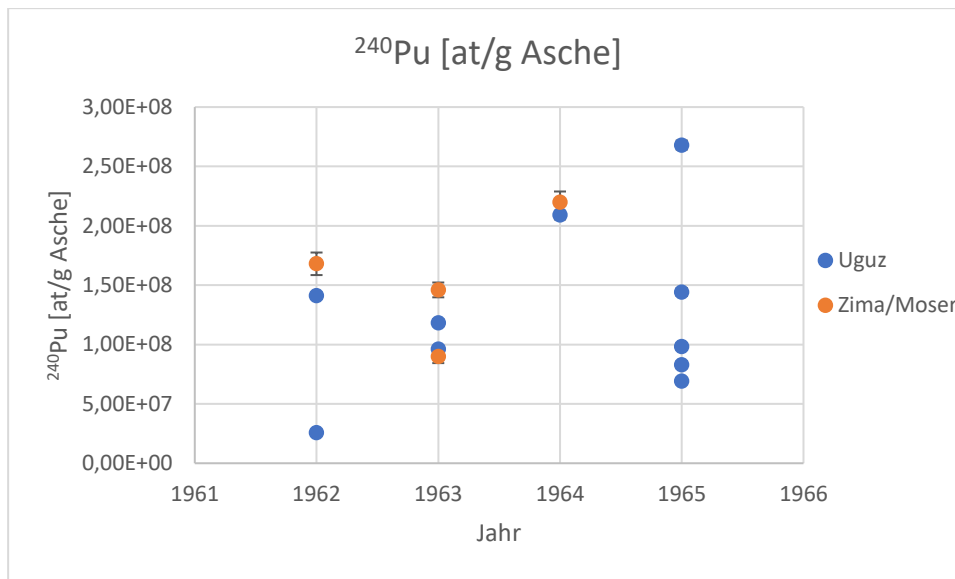


Abbildung 25: ^{240}Pu Atome pro g Asche über die Jahre 1962-1965

Das gleiche Bild wie bei den ^{239}Pu -Daten ist ebenfalls für ^{240}Pu ersichtlich. Der niedrigste Wert wurde für das Jahr 1962 im Zuge der vorliegenden Arbeit gemessen und beträgt $(2,6 \times 10^7 \pm 8,3 \times 10^5)$ at/g Asche. Der höchste Werte wurde für das Jahr 1965 gemessen und beträgt $(2,7 \times 10^8 \pm 3,8 \times 10^6)$ at/g Asche.

10.Ausblick

Bei der Uranuntersuchung der Luftfilter konnte der „Bombenpeak“ im Jahr 1964 deutlich sichtbar gemacht werden. Allerdings ist aus den alpha-spektrometrischen Pu-Messungen der gleichen Luftfilter von Irlweck et al. abzuleiten, dass im Jahr 1963 ein deutlich höheres Maximum gemessen werden kann. Da keine Luftfilter von der Messtelle Wien Hohe Warte für das Jahr 1963 für diese Arbeit zur Verfügung standen, wurden Luftfilter von der Höhenstation „Weißsee“, Salzburg, jeweils für die Jahre 1963, 1964, und 1965 aufgearbeitet. Diese Filter wurden von Keck et al. auf die langlebige Gesamt-Beta-Aktivität der Luft hin untersucht und können aufgrund der geringen geographischen Distanz zu Wien, mit den Luftfiltern der Messtelle Wien Hohe Warte verglichen werden. (50) Allerdings ist bei der chemischen Aufbereitung dieser Filter Vorsicht geboten, da nicht alle Filter wie erwartet aus Zellulose bestehen. Beim Veraschen der Filter im Ofen ereignete sich eine kleine Explosion. Aus diesem Grund wird angenommen, dass ein Teil dieser Filter aus Cellulosenitrat, auch Schießbaumwolle genannt, bestehen. Die aufgearbeiteten und fertig gepressten Filter aus den Jahren 1963, 1964 und 1965 konnten bis zum Abgabetermin dieser Masterarbeit noch nicht gemessen werden. Eine Liste dieser Filter mit den zugehörigen Luftvolumina befindet sich im Anhang.

Des Weiteren wurden für die Lungenaschenproben (Probe 590, Probe 603, Probe 606, Probe 617 und Probe 630) Uranmessungen durchgeführt. Da aber die Zählrate für diese Proben bei der ersten Messung zu gering war, muss eine weitere Messung für diese Proben durchgeführt werden. Aus diesem Grund sind diese Proben in der vorliegenden Arbeit nicht enthalten.

11. Literaturverzeichnis

1. Philipp Zima. U-236 in Lungenaschen. Masterarbeit, Universität Wien; 2017.
2. Wanda Moser. U-236, Pu-239 und Pu-240 in menschlichen Lungenaschen. Masterarbeit, Universität Wien; 2018.
3. P Parekh P, Semkow T, Torres M, K Haines D, M Cooper J, M Rosenberg P, et al. Radioactivity in Trinitite six decades later. J Environ Radioact. 2006;85:103–20.
4. Experimental and theoretical approaches to actinide chemistry / edited by John K. Gibson and Wibe A. de Jong (Lawrence Berkeley National Laboratory, California, United States). Experimental and theoretical approaches to actinide chemistry. Hoboken, NJ, USA; 2018.
5. Irlweck K, Friedmann C, Schönfeld T. Die Plutoniumkonzentration der bodennahen Atmosphäre in Wien in den Jahren 1962–1979. Mitteilungen der Österreichischen Sanitätsverwaltung. 1981;82:81–4.
6. De Cesare M, De Cesare N, Onofrio, K Fifield L, Gialanella L, Terrasi F. Mass and abundance ²³⁶U sensitivities at CIRCE. Nucl Instruments Methods Phys Res Sect B Beam Interact with Mater Atoms. 2015;361.
7. Lal R, Fifield LK, Tims S, Wasson R. ²³⁹Pu fallout across continental Australia: Implications on ²³⁹Pu use as a soil tracer. J Environ Radioact. 2017;178–179.
8. Nations U, Committee S, Radiation A. Sources and Effects of Ionizing Radiation, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR) 2000 Report, Volume I [Internet]. Vol. I. 2000. Available from: https://www.un-ilibrary.org/environment-and-climate-change/sources-and-effects-of-ionizing-radiation-united-nations-scientific-committee-on-the-effects-of-atomic-radiation-unscear-2000-report-volume-i_49c437f9-en
9. Eigl R, Fröhlich (née Srnčík) M, Steier P, Wallner G. ²³⁶U/²³⁸U and ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu isotopic ratios in small (2 L) sea and river water samples. J Environ Radioact. 2012;116C:54–8.
10. Kutschera W, Collon P, Friedmann H, Golser R, Hille P, Priller A, et al. Vera: A new AMS facility in Vienna. Nucl Instruments Methods Phys Res Sect B Beam Interact with Mater Atoms. 1997;123:47–50.
11. Vockenhuber C, Golser R, Kutschera W, Priller A, Steier P, Winkler S, et al.

- Accelerator mass spectrometry of the heaviest long-lived radionuclides with a 3-MV tandem accelerator. *Pramana*. 2002;59:1041–51.
12. Sakaguchi A, Kawai K, Steier P, Quinto F, Mino K, Tomita J, et al. First results on ^{236}U levels in global fallout. *Sci Total Environ*. 2009;407:4238–42.
 13. Buchholz B, Brown TA, Hamilton T, Hutcheon I, Marchetti AA, E. Martinelli R, et al. Investigating uranium isotopic distributions in environmental samples using AMS and MC-ICPMS. *Nucl Instruments Methods Phys Res Sect B Beam Interact with Mater Atoms*. 2007;259:733–8.
 14. Richter S, Alonso A, De Bolle W, Wellum R, Taylor P. Isotopic “fingerprints” for natural uranium ore samples. *Int J Mass Spectrom - INT J MASS SPECTROM*. 1999;193:9–14.
 15. Wilcken KM, Fifield LK, Barrows T, Tims S, Gladkis L. Nucleogenic ^{36}Cl , ^{236}U and ^{239}Pu in uranium ores. *Nucl Instruments Methods Phys Res Sect B Beam Interact with Mater Atoms*. 2008;
 16. Holleman AF. *Anorganische Chemie. Band 2, Nebengruppenelemente, Lanthanoide, Actinoide, Transactinoide*. 103. Aufla. Berlin Boston: De Gruyter; 2017.
 17. Lieser KH. *Nuclear and radiochemistry: Fundamentals and Applications*. Second, re. Berlin: Wiley-VCH,; 2001. 1 online resource (477 p.).
 18. Lehto J, Hou X. *Chemistry and Analysis of Radionuclides: Laboratory Techniques and Methodology*. John Wiley & Sons; 2011.
 19. Solti, Zsolt, Magill, Joseph, Dreher, Raymond. Karlsruhe Nuclide Chart 10th edition 2018~. *EPJ Nucl Sci Technol [Internet]*. 2019;5:6. Available from: <https://doi.org/10.1051/epjn/2019004>
 20. De Laeter JR, Bohlke J, De Bièvre P, Hidaka H, Peiser HS, Rosman KJR, et al. Atomic weights of the elements: Review 2000. *Pure Appl Chem*. 2003;75:683–800.
 21. Srncik Michaela. Investigation of the ^{236}U occurrence in the environment. Dissertation, Universität Wien; 2011.
 22. Hotchkis M, Child D, Fink D, Jacobsen GE, Lee PJ, Mino N, et al. Measurement of ^{236}U in environmental media. *Nucl Instruments Methods Phys Res Sect B Beam Interact with Mater Atoms*. 2000;172:659–65.
 23. Fröhlich (née Srncik M, Steier P, Wallner G, Fifield LK. European roe deer

- antlers as an environmental archive for fallout ^{236}U and ^{239}Pu . *J Environ Radioact.* 2015;151P3.
24. E Ketterer M, D Groves A, J Strick B, Asplund C, Jones V. Deposition of U-236 from atmospheric nuclear testing in Washington state (USA) and the Pechora region (Russian Arctic). *J Environ Radioact.* 2013;118C:143–9.
 25. P Mironov V, L Matusevich J, P Kudrjashov V, F Boulyga S, Sabine Becker J. Determination of irradiated reactor uranium in soil samples in Belarus using U-236 as irradiated uranium tracer. *J Environ Monit.* 2003;4:997–1002.
 26. Sicius H. Radioaktive Elemente: Actinoide : Eine Reise durch das Periodensystem [Internet]. Wiesbaden; 2015. (essentials). Available from: <http://dx.doi.org/10.1007/978-3-658-09829-2>
 27. MacDonald M, E Fieser M, Bates J, Ziller J, Furche F, Evans W. Identification of the +2 Oxidation State for Uranium in a Crystalline Molecular Complex, $[\text{K}(2.2.2\text{-Cryptand})][(\text{C}_5\text{H}_4\text{SiMe}_3)_3\text{U}]$. *J Am Chem Soc.* 2013;135.
 28. Housecroft CE. Anorganische Chemie. 2., aktual. München [u.a.]: Pearson Studium; 2006. (Pearson Studium - Chemie).
 29. <http://www.world-nuclear.org/> [Internet]. [cited 2019 Jul 4]. Available from: <http://www.world-nuclear.org/>
 30. Global Fissile Material Report 2013 [Internet]. 2010. Available from: <http://fissilematerials.org/library/gfmr13.pdf>
 31. Evaluation of nuclear criticality safety data and limits for actinides in transport [Internet]. 2003. Available from: <https://www.irs.fr/EN/Research/publications-documentation/Publications/DSU/SEC/Documents/A03146.pdf>
 32. Harding P. 12 - Uranium enrichment. In: Hore-Lacy I, editor. Uranium for Nuclear Power [Internet]. Woodhead Publishing; 2016. p. 321–51. Available from: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/B9780081003077000120>
 33. Steier P, Bichler M, Keith Fifield L, Golser R, Kutschera W, Priller A, et al. Natural and anthropogenic ^{236}U in environmental samples. *Nucl Instruments Methods Phys Res Sect B Beam Interact with Mater Atoms.* 2008;266:2246–50.
 34. Yamamoto M, Komura K, Sakanoue M. ^{241}Am and plutonium in Japanese

- rice-field surface soils. J Radiat Res. 1983;24:237–49.
35. Binder HH. Lexikon der chemischen Elemente : das Periodensystem in Fakten, Zahlen und Daten ; mit vielen tabellarischen Zusammenstellungen. Stuttgart [u.a.]: Hirzel; 1999.
 36. Hoffman D, Lawrence F, L. Mewherter J, M. Rourke F. Detection of Plutonium-244 in Nature. Nature. 1971;234:132–4.
 37. Lopez-Lora M, Chamizo E, Villa-Alfageme M, Hurtado-Bermudez S, Casacuberta N, Garcia-Leon M. Isolation of (236)U and (239,240)Pu from seawater samples and its determination by Accelerator Mass Spectrometry. Talanta. 2018 Feb;178:202–10.
 38. Holleman AF, Und Nils Wiberg E, Fischer G. Lehrbuch der Anorganischen Chemie. 102., star. Berlin • New York: Walter de Gruyter; 2007.
 39. Greenwood NN. Chemie der Elemente. 1. Aufl.. Weinheim [u.a.]: VCH-Verl.-Ges.; 1988.
 40. Brauer G. Handbuch der präparativen anorganischen Chemie : in drei Bänden : 2. 3., umgear. Stuttgart: Enke; 1978. XII S., S. [609]-1406, III., graph. Darst.
 41. Bergan TD. Radioactive fallout in Norway from atmospheric nuclear weapons tests. J Environ Radioact. 2002;60(1):189–208.
 42. Liste von Kernwaffentests [Internet]. [cited 2019 Jul 4]. Available from: https://de.wikipedia.org/wiki/Liste_von_Kernwaffentests
 43. Sykora I, Froehlich K. Chapter 3 Radionuclides as Tracers of Atmospheric Processes. In: Froehlich K, editor. Environmental Radionuclides: Tracers and Timers of Terrestrial Processes. Elsevier; 2009. p. 51–88. (Radioactivity in the Environment; vol. 16).
 44. Obodovskiy I. Chapter 45 - Population and Personnel Irradiated due to Nuclear Weapon Tests. In: Obodovskiy I, editor. Radiation. Elsevier; 2019. p. 565–72.
 45. Steier P, Dellinger F, Forstner O, Golser R, Knie K, Kutschera W, et al. Analysis and application of heavy isotopes in the environment. Nucl Instruments Methods Phys Res Sect B Beam Interact with Mater Atoms. 2010;268(7):1045–9.
 46. Winkler SR, Steier P, Buchriegler J, Lachner J, Pitters J, Priller A, et al. He stripping for AMS of 236U and other actinides using a 3MV tandem accelerator. Nucl Instruments Methods Phys Res Sect B Beam Interact

with Mater Atoms. 2015;361:458–64.

47. Eigl R, Steier P, Winkler SR, Sakata K, Sakaguchi A. First study on (236)U in the Northeast Pacific Ocean using a new target preparation procedure for AMS measurements. J Environ Radioact. 2016 Oct;162–163:244–50.
48. <https://isotopenforschung.univie.ac.at/vera/> [Zugriff am 02.07.2019] [Internet]. Available from: <https://isotopenforschung.univie.ac.at/vera/>
49. Irlweck K, Pichlmayer F. Uranium content in surface air in Vienna during the years 1963/64 and 1974 - 1978. Austria; 1982.
50. Keck G, Nathan AZ. Vergleichsmessungen der langlebigen Gesamt-Beta-Aktivität der Luft in zwei verschiedenen Höhenlagen der Alpen. Naturwissenschaften. 1964;51(14):332–3.

12. ANHANG

12.1. Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Bestimmung des Gehalts an ^{236}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu und der Verhältnisse $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ bzw. $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ in Zellulose-Luftfiltern aus den Jahren 1962-1965 von der Messstelle Wien Hohe Warte. Aufbauend auf den Masterarbeiten von P. Zima und W. Moser, in denen menschliche Lungenaschen von Verstorbenen der Jahre 1961 bis 1965 aus dem Großraum Wien untersucht worden sind, sollten die Radionuklide in der Luft in der vorliegenden Arbeit direkt bestimmt werden, ohne dass (wie bei der Aufnahme von Radionukliden in die Lunge) biologische Prozesse eine Rolle spielen. Des Weiteren wurde der Gehalt an ^{239}Pu und ^{240}Pu sowie das $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Verhältnis an ausgewählten Lungenaschen nach Aufschluss mit konzentrierter Flusssäure und Salpetersäure untersucht.

Bis zum Vertrag über das Verbot von Kernwaffenversuchen in der Atmosphäre, im Weltraum und unter Wasser am 5. August 1963 wurden durch Atomwaffentests und anderen Kernexplosionen besorgniserregende Mengen an Radioaktivität in die Erdatmosphäre befördert. Die Radionuklide verteilten sich, hauptsächlich an Aerosole adsorbiert, weltweit und gelangten durch Fallout und Washout an die Erdoberfläche. Dabei sind die anthropogen eingetragenen Mengen der ausgewählten Radionuklide ^{236}U , ^{239}Pu und ^{240}Pu um viele Größenordnungen höher als die natürlichen Vorkommen. Die untersuchten Proben wurden nach chemischer Aufbereitung mittels Beschleunigermassenspektrometer im VERA Laboratorium (Vienna Environmental Research Accelerator, Fakultät für Physik der Universität Wien) analysiert.

Die gemessenen $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Atomverhältnisse für die Zellulose-Luftfilter befinden sich für die Jahre 1962-1966 zwischen $0,164 \pm 0,007$ und $0,221 \pm 0,009$ und entsprechen den in der Literatur publizierten Werten von $0,178 \pm 0,023$, die für Proben erwartet werden, welche durch globalen Fallout belastet wurden. Anhand der Luftfilter, durch die ein bestimmtes Luftvolumen durchgesaugt worden ist, wurde auf die Konzentration von ^{239}Pu und ^{240}Pu in der Luft geschlossen. Das Maximum ist im Jahr 1964 (Filter aus 1963 sind leider nicht mehr vorhanden) in den Monaten April bis Juni und beträgt $1,89 \times 10^7 \pm 4,03 \times 10^6 \text{ at/m}^3$ für ^{239}Pu und $4,03 \times 10^6 \pm 4,36 \times 10^5 \text{ at/m}^3$ für ^{240}Pu . Nach dem Moskauer Atomstoppabkommen nimmt die Konzentration der Plutoniumisotope in der Atmosphäre allmählich ab. Die Konzentrationen in Wien in den Monaten Oktober bis Dezember im Jahr 1966 betragen $4,06 \times 10^5 \pm 4,22 \times 10^4 \text{ at/m}^3$

für ^{239}Pu und $7,38 \times 10^4 \pm 7,63 \times 10^3 \text{ at/m}^3$ für ^{240}Pu . Die $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ - Atomverhältnisse für die Luftfilter liegen zwischen $1,29 \times 10^{-5} \pm 1,04 \times 10^{-6}$ und $2,76 \times 10^{-7} \pm 7,67 \times 10^{-8}$ und entsprechen den in der Literatur publizierten Werten für Fallout-belastete Proben. Die $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ - Atomverhältnisse für die Lungenaschen befinden sich für die gesamte Messreihe zwischen $0,142 \pm 0,008$ und $0,219 \pm 0,007$. Die Konzentrationen in den Lungenaschen liegen für ^{239}Pu zwischen $1,82 \times 10^8 \pm 7,87 \times 10^6$ und $1,31 \times 10^9 \pm 7,05 \times 10^7 \text{ at/g Asche}$ und für ^{240}Pu zwischen $2,58 \times 10^7 \pm 8,33 \times 10^5$ und $2,68 \times 10^8 \pm 3,82 \times 10^6 \text{ at/g Asche}$. Es konnte gezeigt werden, dass alle bisher verwendeten Aufbereitungsverfahren innerhalb der Fehlergrenzen vergleichbare Werte liefern; die große Streuung der Ergebnisse für Proben aus demselben Jahr liegt in der natürlichen Variabilität von biologischem Probenmaterial begründet.

12.2. Abstract

The aim of this master's thesis was the determination of the concentration of ^{236}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu as well as the atomic ratio of $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ and $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ in cellulose air filters from the years 1962 to 1965. These were collected in Vienna Hohe Warte, Austria, after drawing a certain volume of air through the cellulose filters. Based on the master's theses of P. Zima and W. Moser, in which human lung tissue ashes from deceased residents of Vienna from the years 1961 to 1965 were analysed, in this thesis the airborne radionuclides were determined directly (without disturbances of biological processes as in the case of lung samples). Furthermore, the concentration of ^{239}Pu and ^{240}Pu as well as the $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atomic ratio from selected lung tissue ashes were determined after digesting the tissue with concentrated hydrofluoric acid and nitric acid.

Up to the Partial Nuclear Test Ban Treaty (PTBT) in 1963 alarming amounts of radioactivity were released into the atmosphere during nuclear weapon tests and other nuclear explosions. The radionuclides, mainly adsorbed on the surface of aerosols, dispersed all over the globe and were released into the environment through fallout and washout processes. The man-made amounts of the selected radionuclides ^{236}U , ^{239}Pu and ^{240}Pu released into the environment are by many orders of magnitude higher than the natural occurring amounts of these radionuclides. After chemical processing the samples were analysed with accelerator mass spectrometry at VERA (Vienna Environmental Research Accelerator, physics department of the University of Vienna).

The measured $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atomic ratios of the cellulose air filters from the years 1962 to 1966 range from $0,164 \pm 0,007$ to $0,221 \pm 0,009$ and correspond with the already published values of $0,178 \pm 0,023$ for nuclear fallout contaminated samples. The concentrations of ^{239}Pu and ^{240}Pu in the air have a maximum in the year 1964 (filters from 1963 were not available) for the months April to June with a value of $1,89 \times 10^7 \pm 4,03 \times 10^6$ at/m³ for ^{239}Pu and $4,03 \times 10^6 \pm 4,36 \times 10^5$ at/m³ for ^{240}Pu . After the Nuclear Test Ban Treaty the measured concentrations of plutonium isotopes in the atmosphere are decreasing gradually, reaching a minimum at the end of 1966. The measured values for the plutonium concentrations in the air during October to December 1966 are $4,06 \times 10^5 \pm 4,22 \times 10^4$ at/m³ for ^{239}Pu and $7,38 \times 10^4 \pm 7,63 \times 10^3$ at/m³ for ^{240}Pu . The range of the measured $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ atomic ratio $1,29 \times 10^{-5} \pm 1,04 \times 10^{-6}$ to $2,76 \times 10^{-7} \pm$

$7,67 \times 10^{-8}$ for the air filters corresponds with the expected level of the ratio of global fallout. The measured $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atomic ratios for the selected human lung ashes are between $0,142 \pm 0,008$ and $0,219 \pm 0,007$. The concentrations for the selected human lung tissue ashes range from $1,82 \times 10^8 \pm 7,87 \times 10^6$ to $1,31 \times 10^9 \pm 7,05 \times 10^7$ at/g ash for ^{239}Pu and $2,58 \times 10^7 \pm 8,33 \times 10^5$ and $2,68 \times 10^8 \pm 3,82 \times 10^6$ at/g ash for ^{240}Pu , respectively. It was ascertained that all up to now used chemical procedures gave the same results within uncertainty ranges. The large scatter of data from lung samples from within the same year is due to the natural variability of biological samples.

12.3. Hochreine Chemikalien und ihre Hersteller

Salzsäure Supra-Qualität (ROTIPURAN® Supra 30 %)	Firma: Carl Roth GmbH + Co. KG
Salpetersäure 65% Suprapur®	Firma: Merck KGaA
Salpetersäure Supra-Qualität (ROTIPURAN® Supra 69 %)	Firma: Carl Roth GmbH + Co. KG
Ammoniaklösung Supra-Qualität (ROTIPURAN® Supra 20 %)	Firma: Carl Roth GmbH + Co. KG
Ammoniaklösung 20% NORMATOM®, für die Spurenanalytik von Metallen	Firma: VWR International GmbH
Wasserstoffperoxid Supra-Qualität	-

12.4. Probenliste Luftfilter

Probe 1B Mai/Juni 1966 (Insgesamt 10 Filter)

¼ Mo. 2. Mai/ Di 3. Mai	¼ Fr. 27. Mai/ Sa. 28. Mai
¼ Mo. 2. Mai/ Di 3. Mai	¼ Mo. 30. Mai/ Di. 31. Mai
¼ Do. 5. Mai/ Fr. 6. Mai	¼ Mi. 1. Juni/ Do. 2. Juni
¼ Do. 5. Mai/ Fr. 6. Mai	¼ Do. 2. Juni/ Fr. 3. Juni
¼ Sa. 7. Mai/ So 8. Mai	¼ Mo. 6. Juni/ Di. 7. Juni
¼ Sa. 7. Mai/ So 8. Mai	¼ Di. 7. Juni/ Mi. 8. Juni
¼ So. 8. Mai/ Mo. 9. Mai	¼ Di. 7. Juni/ Mi. 8. Juni
¼ Di. 10. Mai/ Mi. 11. Mai	¼ Do. 9. Juni/ Fr. 10. Juni
¼ Di. 10. Mai/ Mi. 11. Mai	¼ So. 12. Juni/ Mo. 13. Juni
¼ Fr. 13. Mai/ Sa. 14. Mai	¼ Di. 14. Juni/ Mi. 15. Juni
¼ Fr. 13. Mai/ Sa. 14. Mai	¼ Di. 14. Juni/ Mi. 15. Juni
¼ So. 15. Mai/ Mo 16. Mai	¼ Do. 16. Juni/ Fr. 17. Juni
¼ Di. 17. Mai/ Mi 18. Mai	¼ Do. 16. Juni/ Fr. 17. Juni
¼ Mi. 18. Mai/ Do 19. Mai	¼ Fr. 17. Juni/ Sa. 18. Juni
¼ Mi. 18. Mai/ Do 19. Mai	¼ Di. 21. Juni/ Mi. 22. Juni
¼ So. 22. Mai/ Mo. 23. Mai	¼ Mi. 22. Juni/ Do. 23. Juni
¼ So. 22. Mai/ Mo. 23. Mai	¼ Mi. 22. Juni/ Do. 23. Juni
¼ Mo. 23. Mai/ Di. 24. Mai	¼ Fr. 24. Juni/ Sa. 25. Juni
¼ Mi. 25. Mai/ Do. 26. Mai	¼ So 26. Juni/ Mo. 27. Juni
¼ Mi. 25. Mai/ Do. 26. Mai	¼ Mi. 29. Juni/ Do. 30. Juni

Probe 2C Oktober/November/Dezember 1966 (Insgesamt 10 Filter)

Mo. 10. Oktober/ Di. 11. Oktober	Di. 8. November/ Mi. 9. November
Di. 18. Oktober/ Mi. 19. Oktober	Mi. 9. November/ Do. 10. November
So. 30. Oktober/ Mo. 31. Oktober	Do. 17. November/ Fr. 18. November
Mo. 21. November/ Di. 22. November	Do. 15. Dezember/ Fr. 16. Dezember
Fr. 9. Dezember/ Sa. 10. Dezember	So. 18. Dezember/ Mo. 19. Dezember

Probe 3C Juli/August/September 1966 (Insgesamt 10 Filter)

¼ Fr. 1. Juli/ Sa. 2. Juli	¼ Mo 15. August/ Di. 16. August
¼ Mo. 4. Juli/ Di. 5. Juli	¼ Di. 16. August/ Mi. 17. August
¼ Do. 7. Juli/ Fr. 8. Juli	¼ Do 18. August/ Fr. 10. August
¼ Fr. 8. Juli/ Sa. 9. Juli	¼ Mo. 22. August/ Di. 23. August
¼ Mo. 11. Juli/ Di. 12. Juli	¼ Di. 23. August/ Mi. 24. August
¼ Mi. 13. Juli/ Do. 14. Juli	¼ Fr. 26. August/ Sa. 27. August
¼ Fr. 15. Juli/ Sa. 16. Juli	¼ Di. 30. August/ Mi. 31. August
¼ Mo. 18. Juli/ Di. 19. Juli	¼ Fr. 2. September/ Sa. 3. September
¼ Di. 19. Juli/ Mi. 20. Juli	¼ Do. 8. September/ Fr. 9. September
¼ Fr. 22. Juli/ Sa. 23. Juli	¼ Fr. 9. September/ Sa. 10. September

¼ Mo. 25. Juli/ 26. Juli	¼ Di. 13. September/ Mi 14. September
¼ Di. 26. Juli/ Mi. 27. Juli	¼ Do. 15. September/ Fr. 16. September
¼ Mi. 27. Juli/ Do. 28. Juli	¼ Fr. 16. September/ Sa. 17. September
¼ Sa. 30. Juli/ So. 31. Juli	¼ Mo. 19. September/ Di. 20. September
¼ Mo. 1. August/ Di. 2. August	¼ Do. 22. September/ Fr. 23. September
¼ Di. 2. August/ Mi. 3. August	¼ Fr. 23. September/ Sa. 24. September
¼ Do. 4. August/ Fr. 5. August	¼ So. 25. September/ Mo. 26. September
¼ Mo. 8. August/ Di. 9. August	¼ Mo. 26. September/ Di. 27. September
¼ Di. 9. August/ Mi. 10. August	¼ Di. 27. September/ Mi. 28. September
¼ Do. 11. August/ Fr. 12. August	¼ Fr. 30. September/ Sa. 1. Oktober

Probe 4C Juli/August/September 1965 (Insgesamt 10 Filter)

¼ Sa. 2. Juli/ So. 4. Juli	¼ So 15. August/ Mo. 16. August
¼ Sa. 2. Juli/ So. 4. Juli	¼ Mo. 16. August/ Di. 17. August
¼ Mi. 7. Juli/ Do. 8. Juli	¼ Di. 17. August/ Mi. 18. August
¼ Do. 8. Juli/ Fr. 9. Juli	¼ Fr. 20. August/ Sa. 21. August
¼ So. 11. Juli/ Mo. 12. Juli	¼ Mo. 23. August/ Di. 24. August
¼ Mo. 12. Juli/ Di. 13. Juli	¼ Fr. 27. August/ Sa. 28. August
¼ Do. 15. Juli/ Fr. 16. Juli	¼ Sa. 28. August/ So. 29. August
¼ Mo. 19. Juli/ Di. 20. Juli	¼ Mo. 30. August/ Di. 31. August
¼ Do. 22. Juli/ Fr. 23. Juli	¼ Di. 31. August/ Mi. 1. September
¼ Fr. 23. Juli/ Sa. 24. Juli	¼ Di. 31. August/ Mi. 1. September
¼ Mo. 26. Juli/ Di. 27. Juli	¼ Do. 9. September/Fr. 10. September
¼ Di. 27. Juli/ Mi. 28. Juli	¼ Do. 9. September/Fr. 10. September
¼ Sa 31. Juli/ So. 1. August	¼ Do. 9. September/Fr. 10. September
¼ So. 1. August/ Mo. 2. August	¼ Do. 9. September/Fr. 10. September
¼ Di. 3. August/ Mi. 4. August	¼ So. 12. September/ Mo. 13. September
¼ Do. 5. August/ Fr. 6. August	¼ So. 12. September/ Mo. 13. September
¼ So. 8. August/ Mo. 9. August	¼ Sa. 18. September/ So. 19. September
¼ Mo. 9. August/ Di. 10 August	¼ Sa. 18. September/ So. 19. September
¼ Mi. 11. August/ Do. 12. August	¼ Sa. 25. September/ So. 26. September
¼ Fr. 13. August/ Sa. 14. August	¼ Sa. 25. September/ So. 26. September

Probe 5C Oktober/November/Dezember 1965 (insgesamt 10 Filter)

¼ Fr. 15. Oktober/ Sa. 16. Oktober	¼ Sa. 20. November/ so. 21. November
¼ Fr. 15. Oktober/ Sa. 16. Oktober	¼ Sa. 20. November/ so. 21. November
¼ Di. 19. Oktober/ Mi. 20. Oktober	¼ Di. 23. November/ Mi. 24. November
¼ Di. 19. Oktober/ Mi. 20. Oktober	¼ Di. 23. November/ Mi. 24. November
¼ Mi. 3. November/ Do. 4. November	¼ Sa. 25. November/ So. 26. November
¼ Mi. 3. November/ Do. 4. November	¼ Sa. 25. November/ So. 26. November
¼ Fr. 5. November/ Sa. 6. November	¼ Sa. 25. November/ So. 26. November
¼ Fr. 5. November/ Sa. 6. November	¼ Mi. 1. Dezember/ Do. 2. Dezember
¼ So. 7. November/ Mo. 8. November	¼ Do. 2. Dezember/ Fr. 3. Dezember
¼ So. 7. November/ Mo. 8. November	¼ So. 5. Dezember/ Mo. 6. Dezember

¼ Di. 9. November/ Mi. 10. November	¼ Mo. 6. Dezember/ Di. 7. Dezember
¼ Di. 9. November/ Mi. 10. November	¼ Do. 9. Dezember/ Fr. 10. Dezember
¼ Fr. 12. November/ Sa. 13. November	¼ Fr. 10. Dezember/ Sa. 11. Dezember
¼ Fr. 12. November/ Sa. 13. November	¼ Mo. 13. Dezember/ Di. 14. Dezember
¼ Sa. 13. November/ So. 14. November	¼ Mi. 15. Dezember/ Do. 16. Dezember
¼ Sa. 13. November/ So. 14. November	¼ So. 19. Dezember/ Mo. 20. Dezember
¼ Di. 16. November/ Mi. 17. November	¼ So. 26. Dezember/ Mo. 27. Dezember
¼ Di. 16. November/ Mi. 17. November	¼ Mo. 27. Dezember/ Di. 28. Dezember
¼ Fr. 19. November/ Sa. 20. November	¼ Mi. 29. Dezember/ So. 30. Dezember
¼ Fr. 19. November/ Sa. 20. November	¼ Do. 30. Dezember/ Fr. 31. Dezember

Probe 6C April/Mai/Juni 1965 (insgesamt 10 Filter)

¼ Di 30. März/ Mi 31. März 1965	¼ Fr. 21. Mai/ Sa. 22. Mai 1965
¼ Mi. 7. April/ Do. 8. April 1965	¼ Sa. 22. Mai/ So. 23. Mai 1965
¼ Mi. 7. April/ Do. 8. April 1965	¼ Sa. 22. Mai/ So. 23. Mai 1965
¼ Do. 8. April/ Fr. 9. April 1965	¼ Fr. 28. Mai/ Sa. 29. Mai 1965
¼ So. 11. April/ Mo. 12. April 1965	¼ Mo. 31. Mai/ Di. 1. Juni 1965
¼ Mo. 12. April/ Di. 13. April 1965	¼ Mo. 31. Mai/ Di. 1. Juni 1965
¼ Do. 15. April/ Fr. 16. April 1965	¼ Mi 2. Juni/ Do. 3. Juni 1965
¼ So. 18. April/ Mo. 15. April 1965	¼ Fr. 4. Juni/ Sa. 5. Juni 1965
¼ Mo. 19. April/ Di. 20. April 1965	¼ Sa. 5. Juni/ So. 6. Juni 1965
¼ Do. 22. April/ Fr. 23. April 1965	¼ Di. 8. Juni/ Mi. 9. Juni 1965
¼ Sa. 24. April/ So. 25. April 1965	¼ Sa. 12. Juni/ So. 13. Juni 1965
¼ Di. 27. April/ Mi. 28. April 1965	¼ So 13. Juni/ Mo. 14. Juni 1965
¼ Fr. 30 April/ Sa. 1. Mai 1965	¼ Mi. 16. Juni/ Do. 17. Juni 1965
¼ Sa. 1. Mai/ So. 2. Mai 1965	¼ So. 20. Juni/ Mo. 21. Juni 1965
¼ Mi-. 5. Mai/ Do. 6. Mai 1965	¼ Di. 22. Juni/ Mi. 23. Juni 1965
¼ Mi. 12. Mai/ Do. 13. Mai 1965	¼ Do. 24. Juni/ Fr. 25. Juni 1965
¼ Do. 13. Mai/ Fr. 14. Mai 1965	¼ Fr 25. Juni/ Sa. 26. Juni 1965
¼ Do. 13. Mai/ Fr. 14. Mai 1965	¼ Sa. 26. Juni/ So. 27. Juni 1965
¼ Mo. 17. Mai/ Di. 18. Mai 1965	¼ Di. 29. Juni/ Mi. 30. Juni 1965
¼ Mo. 17. Mai/ Di. 18. Mai 1965	¼ Di. 29. Juni/ Mi. 30. Juni 1965

Probe 7C Jan/Feb/März 1965 (insgesamt 10 Filter)

¼ Mi. 6. Jänner/ Do. 7. Jänner 1965	¼ Do. 18. Februar/ Fr. 19. Februar 1965
¼ Fr. 8. Jänner/ Sa. 9. Jänner 1965	¼ Fr. 19. Februar/ Sa. 20. Februar 1965
¼ Mo. 11. Jänner/ Di. 12. Jänner 1965	¼ Sa. 20. Februar/ So. 21. Februar 1965
¼ Do. 14. Jänner/ Fr. 15. Jänner 1965	¼ Mo. 22. Februar/ Di. 23. Februar 1965
¼ Fr. 15. Jänner/ Sa. 16. Jänner 1965	¼ Di. 23. Februar/ Mi. 24. Februar 1965
¼ Sa. 16. Jänner/ So. 17. Jänner 1965	¼ Mi. 24. Februar/ Do. 25. Februar 1965
¼ Mo. 18. Jänner/ Di. 19. Jänner 1965	¼ Sa. 27. Februar/ So. 28. Februar 1965
¼ Di. 19. Jänner/ Mi. 20. Jänner 1965	¼ Di. 2. März/ Mi. 3. März 1965
¼ Fr. 22. Jänner/ Sa. 23. Jänner 1965	¼ Mi. 3. März/ Do. 4. März 1965
¼ Sa. 23. Jänner/ So. 24. Jänner 1965	¼ Sa. 6. März/ So. 7. März 1965

¼ So. 24. Jänner/ Mo. 25. Jänner 1965	¼ So. 7. März/ Mo. 8. März 1965
¼ Di. 26. Jänner/ Mi. 27. Jänner 1965	¼ Mo. 8. März/ Di. 9. März 1965
¼ Do. 28. Jänner/ Fr. 29. Jänner 1965	¼ Mi. 10. März/ Do. 11. März 1965
¼ Sa. 30. Jänner/ So. 31. Jänner 1965	¼ Do. 11. März/ Fr. 12. März 1965
¼ Mi. 3. Februar/ Do. 4. Februar 1965	¼ Fr. 12. März/ Sa. 13. März 1965
¼ Sa. 6. Februar/ So. 7. Februar 1965	¼ So. 14. März/ Mo. 15. März 1965
¼ Mo. 8. Februar/ Di. 9. Februar 1965	¼ Di. 16. März/ Mi. 17. März 1965
¼ Do. 11. Februar/ Fr. 12. Februar 1965	¼ Fr. 19. März/ Sa. 20. März 1965
¼ Fr. 12. Februar/ Sa. 13. Februar 1965	¼ Mo. 22. März/ Di. 23. März 1965
¼ Di. 16. Februar/ Mi. 17. Februar 1965	¼ Mi. 24. März/ Do. 25. März 1965

Probe 8C Okt/Nov/Dez 1964 (Insgesamt 10 Filter)

¼ Do. 1. Oktober/ Fr. 2. Oktober 1964	¼ Fr. 13. November/ Sa. 14. November 1964
¼ Fr. 2. Oktober/ Sa. 3. Oktober 1964	¼ So. 15. November/ Mo. 16. November 1964
¼ Mo. 5. Oktober/ Di. 6. Oktober 1964	¼ Mo. 16. November/ Di. 17. November 1964
¼ Do. 8. Oktober/ Fr. 9. Oktober 1964	¼ Mi. 18. November/ Do. 19. November 1964
¼ Sa. 10. Oktober/ So. 11. Oktober 1964	¼ So. 22. November/ Mo. 23. November 1964
¼ Di. 13. Oktober/ Mi. 14. Oktober 1964	¼ Fr. 27. November/ Sa. 28. November 1964
¼ Mi. 14. Oktober/ Do. 15. Oktober 1964	¼ Mo. 30. November/ Di. 1. Dezember 1964
¼ Fr. 16. Oktober/ Sa. 17. Oktober 1964	¼ Di. 1. Dezember/ Mi. 2. Dezember 1964
¼ Mo. 19. Oktober/ Di. 20. Oktober 1964	¼ Do. 3. Dezember/ Fr. 4. Dezember 1964
¼ Do. 22. Oktober/ Fr. 23. Oktober 1964	¼ Fr. 4. Dezember/ Sa. 5. Dezember 1964
¼ Fr. 23. Oktober/ Sa. 24. Oktober 1964	¼ Mo. 7. Dezember/ Di. 8. Dezember 1964
¼ Mo. 26. Oktober/ Di. 27. Oktober 1964	¼ Do. 10. Dezember/ Fr. 11. Dezember 1964
¼ Do. 29. Oktober/ Fr. 30. Oktober 1964	¼ So. 13. Dezember/ Mo. 14. Dezember 1964
¼ Sa. 31. Oktober/ So. 1. November 1964	¼ Di. 15. Dezember/ Mi. 16. Dezember 1964
¼ So. 1. November/ Mo. 2. November 1964	¼ Fr. 18. Dezember/ Sa. 19. Dezember 1964
¼ Di. 3. November/ Mi. 4. November 1964	¼ Sa. 19. Dezember/ So. 20. Dezember 1964
¼ Fr. 6. November/ Sa. 7. November 1964	¼ Di. 22. Dezember/ Mi. 23. Dezember 1964
¼ Sa. 7. November/ So. 8. November 1964	¼ Do. 24. Dezember/ Fr. 25. Dezember 1964
¼ Mo. 9. November/ Di. 10. November 1964	¼ Fr. 25. Dezember/ Sa. 26. Dezember 1964
¼ Di. 10. November/ Mi. 11. November 1964	¼ Mi. 30. Dezember/ Do. 31. Dezember 1964

Probe 9D Jul/Aug/Sep (Insgesamt 10 Filter)

¼ Mo 6. Juli/ Di. 7. Juli 1964	¼ Mo. 17. August/ Di. 18. August 1964
¼ Di. 7. Juli/ Mi. 8. Juli 1964	¼ Di. 18. August/ Mi. 19. August 1964
¼ Do. 9. Juli/ Fr. 10. Juli 1964	¼ Fr. 21. August/ Sa. 22. August 1964
¼ Fr. 10. Juli/ Sa. 11. Juli 1964	¼ So. 23. August/ Mo. 24. August 1964

¼ Mo. 13. Juli/ Di. 14. Juli 1964	¼ Mo. 24. August/ Di. 26. August 1964
¼ Mi. 15. Juli/ Do. 16. Juli 1964	¼ Mi. 26. August/ Do. 27. August 1964
¼ Do. 16. Juli/ Fr. 17. Juli 1964	¼ Do. 27. August/ Fr. 28. August 1964
¼ Sa. 18. Juli/ So. 19. Juli 1964	¼ So. 30. August/ Mo. 31. August 1964
¼ Di. 21. Juli/ Mi. 22. Juli 1964	¼ Di 1. September/ Mi. 2. September 1964
¼ Fr. 24. Juli/ Sa. 25. Juli 1964	¼ Mi. 2. September/ Do. 3. September 1964
¼ Sa. 25. Juli/ So. 26. Juli 1964	¼ Fr. 4. September / Sa. 5. September 1964
¼ Mo. 27. Juli/ Di 28. Juli 1964	¼ Di. 8. September/ Mi. 9. September 1964
¼ Do. 30. Juli/ Fr. 31. Juli 1964	¼ Do. 10. September/ Fr. 11. September 1964
¼ Fr. 31. Juli/ Sa. 1. August 1964	¼ So. 13. September/ Mo. 14. September 1964
¼ Do. 6. August/ Fr. 7. August 1964	¼ Mi 16. September/ Do. 17. September 1964
¼ Fr. 7. August/ Sa. 8. August 1964	¼ Do. 17. September/ Fr. 18. September 1964
¼ Sa. 8. August/ So. 9 August 1964	¼ Sa. 19. September/ So. 20. September 1964
¼ Di. 11. August/ Mi. 12. August 1964	¼ Mi. 23. September/ Do. 24. September 1964
¼ Fr. 14. August/ Sa. 15. August 1964	¼ Fr. 25. September/ Sa. 26. September 1964
¼ Sa. 15. August/ So. 16. August 1964	¼ Sa. 26. September/ So. 27. September 1964

Probe 10D Apr/Mai/Juni 1964 (insgesamt 10 Filter)

¼ Do. 2. April/ Fr. 3. April 1964	¼ Di. 19. Mai/ Mi. 20. Mai 1964
¼ Sa. 4. April/ So. 5. April 1964	¼ Fr. 22. Mai/ Sa. 23. Mai 1964
¼ Di. 7. April/ Mi. 8. April 1964	¼ Sa. 23. Mai/ So. 24. Mai 1964
¼ Fr. 10. April/ Sa. 11. April 1964	¼ Mo. 25. Mai/ Di. 26. Mai 1964
¼ Mo. 13. April/ Di. 14. April 1964	¼ Di. 26. Mai/ Mi. 27. Mai 1964
¼ Di. 14. April/ Mi. 15. April 1964	¼ Fr. 29. Mai/ Sa. 30. Mai 1964
¼ Do. 16. April/ Fr. 17. April 1964	¼ Mo. 1. Juni/ Di. 2. Juni 1964
¼ Fr. 17. April/ Sa. 18. April 1964	¼ Mi. 3. Juni/ Do. 4. Juni 1964
¼ So. 19. April/ 20. April 1964	¼ Sa. 6. Juni/ So. 7. Juni 1964
¼ Do. 23. April/ Fr. 24. April 1964	¼ So. 7. Juni/ Mo. 8. Juni 1964
¼ Sa. 25. April/ So. 26. April 1964	¼ Di. 9. Juni/ Mi. 10 Juni 1964
¼ So. 26. April/ Mo. 27. April 1964	¼ Mi. 10. Juni/ Do. 11. Juni 1964
¼ Mi. 29. April/ Do. 30. April 1964	¼ Sa. 13. Juni/ So. 14. Juni 1964
¼ Sa. 2. Mai/ So. 3. Mai 1964	¼ Mo. 15. Juni/ Di. 16 Juni 1964
¼ Do. 7. Mai/ Fr. 8. Mai 1964	¼ Di. 16 Juni/ Mi. 17. Juni 1964
¼ Fr. 8. Mai/ Sa. 9. Mai 1964	¼ Do. 18. Juni/ Fr. 19. Juni 1964
¼ So. 10. Mai/ Mo. 11. Mai 1964	¼ Fr. 19. Juni/ Sa. 20. Juni 1964
¼ Mi. 13. Mai/ Do. 14. Mai 1964	¼ Mo. 22. Juni/ Di. 23. Juni 1964
¼ Sa. 16. Mai/ So. 17. Mai 1964	¼ Mi. 24. Juni/ Do. 25. Juni 1964
¼ So. 17. Mai/ Mo. 18. Mai 1964	¼ Sa. 27. Juni/ So. 28. Juni 1964

Probe 11D Jan/Feb/Mär 1964 (Insgesamt 10 Filter)

¼ Mi. 8. Jänner/ Do. 9. Jänner 1964	¼ Mi. 19. Februar/ Do. 20. Februar 1964
¼ Mi. 8. Jänner/ Do. 9. Jänner 1964	¼ Mi. 19. Februar/ Do. 20. Februar 1964
¼ So. 12. Jänner/ Mo. 13. Jänner 1964	¼ Di. 25. Februar/ Mi. 26. Februar 1964
¼ So. 12. Jänner/ Mo. 13. Jänner 1964	¼ Di. 25. Februar/ Mi. 26. Februar 1964

¼ Mi. 15. Jänner/ Do. 16. Jänner 1964	¼ Mo. 2. März/ Di. 3. März 1964
¼ Mi. 15. Jänner/ Do. 16. Jänner 1964	¼ Di. 3. März/ Mi. 4. März 1964
¼ Di. 21. Jänner/ Mi. 22. Jänner 1964	¼ Fr. 6. März/ Sa. 7. März 1964
¼ Di. 21. Jänner/ Mi. 22. Jänner 1964	¼ So 8. März/ Mo. 9. März 1964
¼ Fr. 24. Jänner/ Sa. 25. Jänner 1964	¼ Mo. 9. März/ Di. 10. März 1964
¼ Fr. 24. Jänner/ Sa. 25. Jänner 1964	¼ Mi. 11. März/ Do. 12. März 1964
¼ Do. 30. Jänner/ Fr. 31. Jänner 1964	¼ Sa. 14. März/ So. 15. März 1964
¼ Do. 30. Jänner/ Fr. 31. Jänner 1964	¼ So. 15. März/ Mo. 16. März 1964
¼ So. 2. Februar/ Mo. 3. Februar 1964	¼ Di. 17. März/ Mi. 18. März 1964
¼ So. 2. Februar/ Mo. 3. Februar 1964	¼ Mi. 18. März/ Do. 19. März 1964
¼ Sa. 8. Februar/ So. 9. Februar 1964	¼ Sa. 21. März/ So. 22. März 1964
¼ Sa. 8. Februar/ So. 9. Februar 1964	¼ Mo. 23. März/ Di. 24. März 1964
¼ Di. 11. Februar/ Mi. 12. Februar 1964	¼ Di. 24. März/ Mi. 25. März 1964
¼ Di. 11. Februar/ Mi. 12. Februar 1964	¼ Do. 26. März/ Fr. 27. März 1964
¼ So. 16. Februar/ Mo. 17. Februar 1964	¼ So. 29. März/ Mo. 30. März 1964
¼ So. 16. Februar/ Mo. 17. Februar 1964	¼ Mo. 30. März/ Di. 31. März 1964

Probe 12D Sep/Okt 1962 (Insgesamt 3 Filter)

Di. 23. Oktober/ Mi. 24. Okt 1962
Sa. 20. Oktober/ So. 21. Oktober 1962
Fr. 21. September/ Sa. 22. September 1962

Salzburg 1963 (Insgesamt 10 Filter)

¼ 02.01.63	¼ 07.02.63
¼ 03.01.63	¼ 08.02.63
¼ 06.01.63	¼ 09.02.63
¼ 12.01.63	¼ 10.02.63
¼ 15.01.63	¼ 11.02.63
¼ 18.01.63	¼ 25.02.63
¼ 20.01.63	¼ 26.02.63
¼ 21.01.63	¼ 27.02.63
¼ 23.01.63	¼ 28.02.63
¼ 24.01.63	¼ 01.03.63
¼ 26.01.63	¼ 01.03.63
¼ 27.01.63	¼ 01.03.63
¼ 29.01.63	¼ 01.03.63
¼ 30.01.63	¼ 02.03.63
¼ 01.02.63	¼ 02.03.63
¼ 02.02.63	¼ 02.03.63
¼ 03.02.63	¼ 02.03.63
¼ 04.02.63	¼ 03.03.63
¼ 05.02.63	¼ 03.03.63
¼ 06.02.63	¼ 03.03.63

Salzburg 1964 (Insgesamt 10 Filter)

(Korr. Volumen (in m³) bezieht sich auf den gesamten Filter)

¼ 01.09.64	Korrigiertes Volumen: 73,86
¼ 02.09.64	Korrigiertes Volumen: 78,57
¼ 04.09.64	Korrigiertes Volumen: 77,60
¼ 05.09.64	Korrigiertes Volumen: 77,34
¼ 07.09.64	Korrigiertes Volumen: 6939
¼ 08.09.64	Korrigiertes Volumen: 66,95
¼ 10.09.64	Korrigiertes Volumen: 54,90
¼ 13.09.64	Korrigiertes Volumen: 25,75
¼ 16.09.64	Korrigiertes Volumen: 18,19
¼ 19.09.64	Korrigiertes Volumen: 75,00
¼ 22.09.64	Korrigiertes Volumen: 71,30
¼ 25.09.64	Korrigiertes Volumen: 75,40
¼ 28.09.64	Korrigiertes Volumen: 76,40
¼ 01.10.64	Korrigiertes Volumen: 76,20
¼ 02.10.64	Korrigiertes Volumen: 76,00
¼ 04.10.64	Korrigiertes Volumen: 75,90
¼ 05.10.64	Korrigiertes Volumen: 77,00
¼ 07.10.64	Korrigiertes Volumen: 74,60
¼ 08.10.64	Korrigiertes Volumen: 74,60
¼ 10.10.64	Korrigiertes Volumen: 72,70
¼ 11.10.64	Korrigiertes Volumen: 74,50
¼ 13.10.64	Korrigiertes Volumen: 75,40
¼ 16.10.64	Korrigiertes Volumen: 75,20
¼ 22.10.64	Korrigiertes Volumen: 71,60
¼ 25.10.64	Korrigiertes Volumen: 81,30
¼ 29.10.64	Korrigiertes Volumen: 74,50
¼ 01.11.64	Korrigiertes Volumen: 74,60
¼ 03.11.64	Korrigiertes Volumen: 75,00
¼ 05.11.64	Korrigiertes Volumen: 74,30
¼ 07.11.64	Korrigiertes Volumen: 71,50
¼ 09.11.64	Korrigiertes Volumen: 66,50
¼ 11.11.64	Korrigiertes Volumen: 42,00
¼ 13.11.64	Korrigiertes Volumen: 75,00
¼ 17.11.64	Korrigiertes Volumen: 82,50
¼ 21.11.64	Korrigiertes Volumen: 74,50
¼ 25.11.64	Korrigiertes Volumen: 75,00
¼ 27.11.64	Korrigiertes Volumen: 75,50
¼ 28.11.64	Korrigiertes Volumen: 74,50
¼ 29.11.64	Korrigiertes Volumen: 75,20
¼ 30.11.64	Korrigiertes Volumen: 75,20

Salzburg 1965 (Insgesamt 10 Filter)

¼ 08.04.65	Korrigiertes Volumen: 37,50
¼ 10.04.65	Korrigiertes Volumen: 70,00
¼ 11.04.65	Korrigiertes Volumen: 68,50
¼ 12.04.65	Korrigiertes Volumen: 70,50
¼ 14.04.65	Korrigiertes Volumen: 69,00
¼ 16.04.65	Korrigiertes Volumen: 68,00
¼ 18.04.65	Korrigiertes Volumen: 68,00
¼ 20.04.65	Korrigiertes Volumen: 66,00
¼ 22.04.65	Korrigiertes Volumen: 66,00
¼ 24.04.65	Korrigiertes Volumen: 65,50
¼ 26.04.65	Korrigiertes Volumen: 58,00
¼ 28.04.65	Korrigiertes Volumen: 48,00
¼ 30.04.65	Korrigiertes Volumen: 75,00
¼ 01.05.65	Korrigiertes Volumen: 75,50
¼ 02.05.65	Korrigiertes Volumen: 77,50
¼ 04.05.65	Korrigiertes Volumen: 74,50
¼ 05.05.65	Korrigiertes Volumen: 75,50
¼ 06.05.65	Korrigiertes Volumen: 74,50
¼ 09.05.65	Korrigiertes Volumen: 74,50
¼ 09.05.65	Korrigiertes Volumen: 75,50
¼ 13.05.65	Korrigiertes Volumen: 75,00
¼ 16.05.65	Korrigiertes Volumen: 75,50
¼ 18.05.65	Korrigiertes Volumen: 110,83
¼ 21.05.65	Korrigiertes Volumen: 83,00
¼ 24.05.65	Korrigiertes Volumen: 73,00
¼ 29.05.65	Korrigiertes Volumen: 62,00
¼ 01.06.65	Korrigiertes Volumen: 47,50
¼ 02.06.65	Korrigiertes Volumen: 40,50
¼ 04.06.65	Korrigiertes Volumen: 28,00
¼ 05.06.65	Korrigiertes Volumen: 72,00
¼ 06.06.65	Korrigiertes Volumen: 75,00
¼ 08.06.65	Korrigiertes Volumen: 75,50
¼ 09.06.65	Korrigiertes Volumen: 76,00
¼ 10.06.65	Korrigiertes Volumen: 74,50
¼ 12.06.65	Korrigiertes Volumen: 73,60
¼ 14.06.65	Korrigiertes Volumen: 75,00
¼ 16.06.65	Korrigiertes Volumen: 74,50
¼ 18.06.65	Korrigiertes Volumen: 73,50
¼ 20.06.65	Korrigiertes Volumen: 75,50
¼ 21.06.65	Korrigiertes Volumen: 75,00

12.5. Ergebnisse der linearen Fehlerfortpflanzung

Probe	Jahr	239-Pu [at/g Asche]	Fehler 239- Pu [at/g Asche] [±]	240-Pu [at/g Asche]	Fehler 240-Pu [at/g Asche] [±]	Luftdurchsatz [m³]	Fehler Luftdurchsatz [±%]	239Pu [at/m³]	Fehler 239- Pu[at/m³]	240Pu [at/m³]	Fehler 240- Pu [at/m³]
Probe 2C/P	Okt/Nov/Dez 1966	1,3E+10	3,7E+08	2,4E+09	6,2E+07	1440	10	4,1E+05	5,2E+04	7,4E+04	9,3E+03
Probe 3C/P	Jul/Aug/Sep 1966	2,6E+10	8,3E+08	4,2E+09	1,2E+08	1440	10	8,8E+05	1,2E+05	1,4E+05	1,9E+04
Probe 4C/P	Jul/Aug/Sep 1965	8,4E+10	1,7E+09	1,6E+10	2,4E+08	1440	10	2,9E+06	3,5E+05	5,3E+05	6,1E+04
Probe 5C/P	Okt/Nov/Dez 1965	1,4E+10	7,7E+08	2,7E+09	2,3E+08	1440	10	5,5E+05	8,5E+04	1,1E+05	2,0E+04
Probe 6C/P	Apr/Mai/Jun 1965	1,4E+11	5,7E+09	2,5E+10	8,6E+08	1440	10	5,0E+06	7,1E+05	9,1E+05	1,2E+05
Probe 7C/P	Jan/Feb/Mär 1965	7,7E+09	2,0E+08	1,5E+09	2,3E+07	1440	10	2,4E+06	3,0E+05	4,6E+05	5,3E+04
Probe 8C/P	Okt/Nov/Dez 1964	4,4E+09	1,5E+08	8,3E+08	1,7E+07	1440	10	1,7E+06	2,3E+05	3,2E+05	3,8E+04
Probe 9D/P	Jul/Aug/Sep 1964	2,8E+11	8,2E+09	5,6E+10	1,5E+09	1440	10	1,1E+07	1,4E+06	2,1E+06	2,7E+05
Probe 10D/P	Apr/Mai/Jun 1964	4,4E+11	2,1E+10	9,4E+10	3,8E+09	1440	10	1,9E+07	2,8E+06	4,0E+06	5,7E+05
Probe 11D/P	Jan/Feb/Mär 1964	1,5E+11	5,0E+09	3,4E+10	9,5E+08	1440	10	6,2E+06	8,2E+05	1,4E+06	1,7E+05
Probe 12D/P	Sep/Okt 1962	8,6E+10	4,1E+09	1,9E+10	7,2E+08	432	10	2,1E+06	3,0E+05	4,5E+05	6,3E+04

Probe	Jahr	239-Pu [at/m ³]	Fehler 239- Pu [at/m ³] [±]	240-Pu [at/m ³]	Fehler 240- Pu [at/m ³] [±]	Summe A [Bq/m ³]	Fehler Summe A [at/m ³] [±]
Probe 2C/P	Okt/Nov/Dez 1966	4,1E+05	4,2E+04	7,4E+04	7,6E+03	6,2E-07	7,9E-08
Probe 3C/P	Jul/Aug/Sep 1966	8,8E+05	9,3E+04	1,4E+05	1,5E+04	1,3E-06	1,7E-07
Probe 4C/P	Jul/Aug/Sep 1965	2,9E+06	2,9E+05	5,3E+05	5,4E+04	4,4E-06	5,2E-07
Probe 5C/P	Okt/Nov/Dez 1965	5,5E+05	6,3E+04	1,1E+05	1,4E+04	8,6E-07	1,4E-07
Probe 6C/P	Apr/Mai/Jun 1965	5,0E+06	5,4E+05	9,1E+05	9,6E+04	7,6E-06	1,1E-06
Probe 7C/P	Jan/Feb/Mär 1965	2,4E+06	2,5E+05	4,6E+05	4,6E+04	3,7E-06	4,5E-07
Probe 8C/P	Okt/Nov/Dez 1964	1,7E+06	1,8E+05	3,2E+05	3,2E+04	2,6E-06	3,4E-07
Probe 9D/P	Jul/Aug/Sep 1964	1,1E+07	1,1E+06	2,1E+06	2,2E+05	1,7E-05	2,2E-06
Probe 10D/P	Apr/Mai/Jun 1964	1,9E+07	2,1E+06	4,0E+06	4,4E+05	3,1E-05	4,5E-06
Probe 11D/P	Jän/Feb/Mär 1964	6,2E+06	6,5E+05	1,4E+06	1,4E+05	1,0E-05	1,3E-06
Probe 12D/P	Sep/Okt 1962	2,1E+06	2,3E+05	4,5E+05	4,8E+04	3,4E-06	4,9E-07

Probe	Monat	236-U [at/g Asche]	Fehler 236- U [at/g Asche] [±]	Luftdurchsatz [m3]	Fehler Luftdurchsatz [±%]	236U [at/m³]	Fehler 236- U[at/m³]
Probe1B	Mai/Juni 1966	3,1E+10	8,3E+08	1440	10,00	1,2E+06	1,5E+05
Probe2C	Okt/Nov/Dez 1966	5,6E+09	1,2E+09	1440	10,00	1,7E+05	5,4E+04
Probe3C	Jul/Aug/Sep 1966	1,7E+10	7,7E+08	1440	10,00	5,8E+05	8,4E+04
Probe4C	Jul/Aug/Sep 1965	3,6E+10	4,2E+09	1440	10,00	1,2E+06	2,7E+05
Probe5C	Okt/Nov/Dez 1965	6,5E+09	6,2E+08	1440	10,00	2,5E+05	5,0E+04
Probe6C	Apr/Mai/Jun 1965	5,7E+10	2,3E+09	1440	10,00	2,1E+06	2,9E+05
Probe7C	Jan/Feb/Mär 1965	3,0E+09	1,6E+08	1440	10,00	9,3E+05	1,4E+05
Probe8C	Okt/Nov/Dez 1964	1,5E+09	7,6E+07	1440	10,00	5,8E+05	8,7E+04
Probe9D	Jul/Aug/Sep 1964	9,8E+10	1,7E+09	1440	10,00	3,7E+06	4,4E+05
Probe10D	Apr/Mai/Jun 1964	1,7E+11	8,3E+09	1440	10,00	7,2E+06	1,1E+06
Probe11D	Jän/Feb/Mär 1964	6,8E+10	4,1E+09	1440	10,00	2,7E+06	4,3E+05
Probe12D	Sep/Okt 1962	3,2E+10	2,5E+09	432	10,00	7,7E+05	1,4E+05

Probe	Monat	236-U [at/m ³]	Fehler 236- U [at/m ³] [±]	A 236-U [Bq/m ³]	Fehler A 236-U [Bq/m ³]	A 236-U [aCi/m ³]	Fehler A 236-U [aCi/m ³]
Probe1B	Mai/Juni 1966	1,2E+06	1,5E+05	1,1E-09	1,4E-10	0,030	0,004
Probe2C	Okt/Nov/Dez 1966	1,7E+05	5,4E+04	1,6E-10	5,1E-11	0,004	0,001
Probe3C	Jul/Aug/Sep 1966	5,8E+05	8,4E+04	5,4E-10	7,9E-11	0,015	0,002
Probe4C	Jul/Aug/Sep 1965	1,2E+06	2,7E+05	1,2E-09	2,5E-10	0,031	0,007
Probe5C	Okt/Nov/Dez 1965	2,5E+05	5,0E+04	2,4E-10	4,7E-11	0,006	0,001
Probe6C	Apr/Mai/Jun 1965	2,1E+06	2,9E+05	2,0E-09	2,7E-10	0,053	0,007
Probe7C	Jan/Feb/Mär 1965	9,3E+05	1,4E+05	8,8E-10	1,3E-10	0,024	0,004
Probe8C	Okt/Nov/Dez 1964	5,8E+05	8,7E+04	5,4E-10	8,1E-11	0,015	0,002
Probe9D	Jul/Aug/Sep 1964	3,7E+06	4,4E+05	3,5E-09	4,1E-10	0,094	0,011
Probe10D	Apr/Mai/Jun 1964	7,2E+06	1,1E+06	6,7E-09	1,0E-09	0,182	0,027
Probe11D	Jän/Feb/Mär 1964	2,7E+06	4,3E+05	2,5E-09	4,1E-10	0,069	0,011
Probe12D	Sep/Okt 1962	7,7E+05	1,4E+05	7,2E-10	1,3E-10	0,020	0,003

12.6. α -Spektren der Proben für die Ausbeutebestimmung

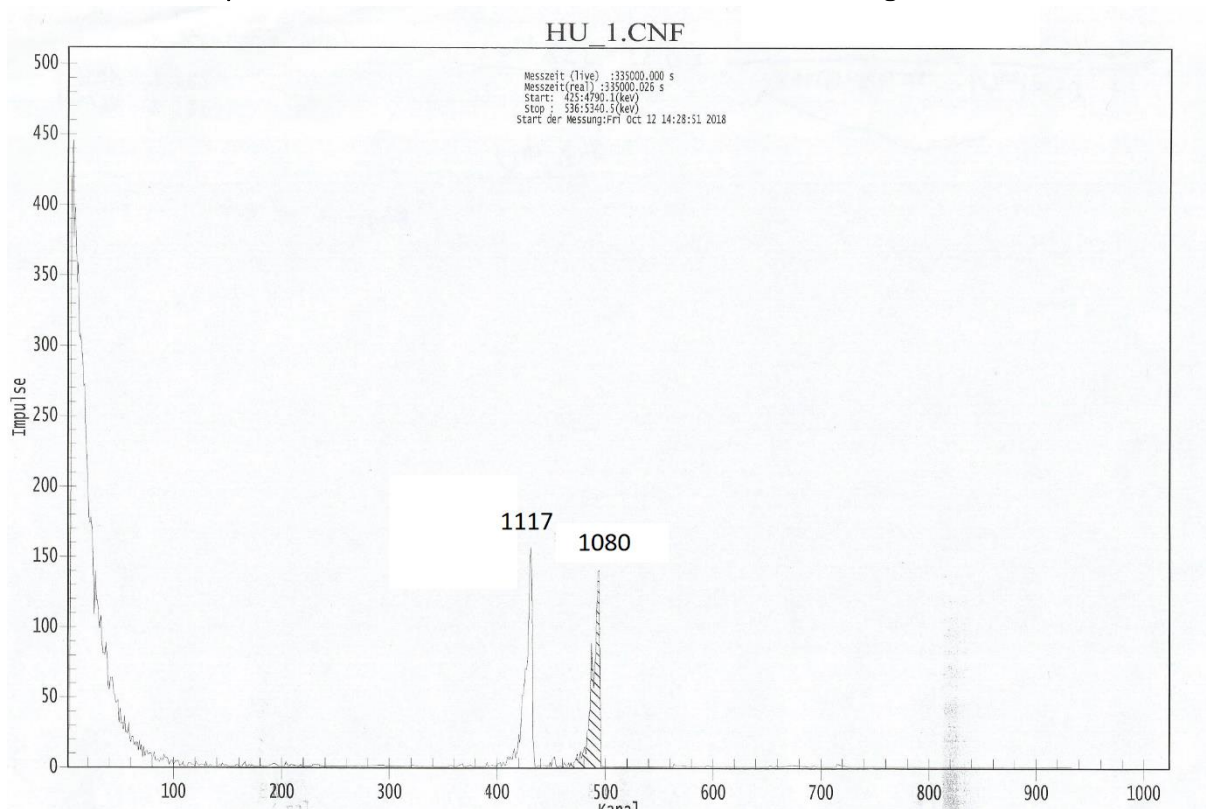


Abbildung 2: α -Spektrum Probe 1

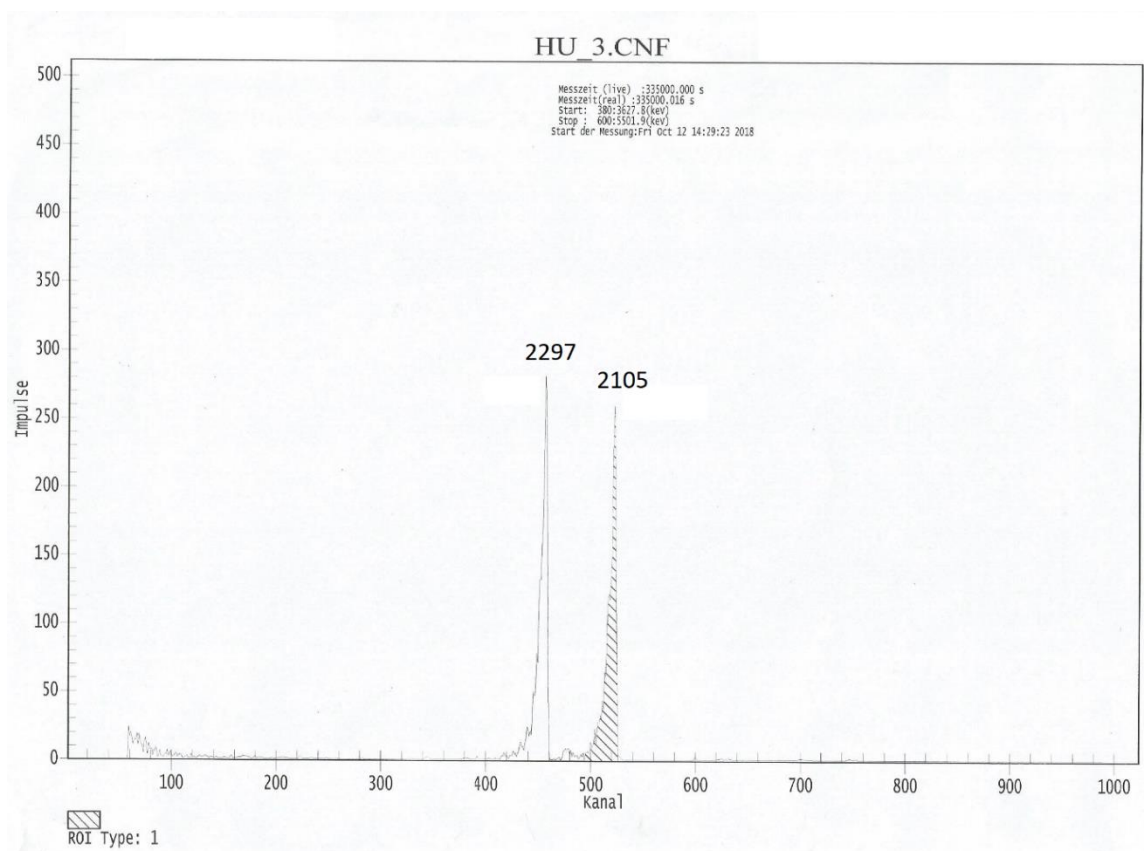


Abbildung 3: α -Spektrum Probe 2

12.7. Ergebnisse der S2 Picofox Spurenelementanalyse



S2 PICOFOX - TRACE ELEMENT ANALYSIS

Listed at 10.09.2018 13:36:29

User: Administrator	Serial number: 422530915
Project: 180907_Uguz.rtx	Sample: Probe 1
ID-No.:	Disc: 6447
Quant. type: Liquid	Spectrum: Probe 1_2
Meas.date: 07.09.2018 12:18:05	Live time: 400 s
Count rate: 19771 cps	Dead time: 5.1 %
Voltage: 50 kV	Current: 1000 µA
Excitation: Mo K radiation	Anode: Mo
Filter: Mo 9,00 µm	Optic: Monochromator 17,500

Method: Sediment_neu_normal fit (Profile bayes normal fit)

Comment:

Element	Line	Conc./ mg/l	Sigma/ mg/l	RSD/ %	LLD/ mg/l	Net area	Backgr.	Chi
K	K12	57.72	0.27	0.5	0.12	150798	10957	5.14
Ca	K12	259.28	0.75	0.3	0.07	1007891	9272	17.11
Cr	K12	0.358	0.013	3.8	0.024	3826	7373	1.71
Mn	K12	2.912	0.023	0.8	0.020	37908	7469	1.67
Fe	K12	82.41	0.23	0.3	0.02	1362218	7512	27.79
Co	K12	Not det.			0.01	1	7235	15.46
Ni	K12	1.782	0.013	0.7	0.010	42818	6847	2.27
Cu	K12	4.272	0.021	0.5	0.009	115285	6950	3.69
Zn	K12	26.568	0.080	0.3	0.008	833282	7704	28.38
Rb	K12	0.263	0.004	1.4	0.005	14192	6815	1.12
Sr	K12	0.863	0.006	0.7	0.005	46749	7050	6.33
Sn	L1	1.48	0.15	10.4	0.31	1456	10365	4.82
Ba	L1	4.577	0.063	1.4	0.081	13760	6537	0.92
Pt (IS)	L1	10.000	0.038	0.4	0.009	292018	7834	2.39
Pb	L1	22.960	0.071	0.3	0.009	719598	8586	15.44

Abbildung 4: S2 Picofox Ergebnisse für die Probe 1



S2 PICOFOX - TRACE ELEMENT ANALYSIS

Listed at 10.09.2018 13:36:53

User: Administrator
 Project: 180907_Uguz.rtx
 ID-No.:
 Quant. type: Liquid
 Meas.date: 07.09.2018 12:25:35
 Count rate: 16175 cps
 Voltage: 50 kV
 Excitation: Mo K radiation
 Filter: Mo 9,00 µm

Serial number: 422530915
 Sample: Probe 2
 Disc: 6443
 Spectrum: Probe 2_3
 Live time: 400 s
 Dead time: 4.3 %
 Current: 1000 µA
 Anode: Mo
 Optic: Monochromator 17,500

Method: Sediment_neu_normal fit (Profile bayes normal fit)

Comment:

Element	Line	Conc./ mg/l	Sigma/ mg/l	RSD/ %	LLD/ mg/l	Net area	Backgr.	Chi
K	K12	31.18	0.15	0.5	0.08	111687	8612	4.24
Ca	K12	145.14	0.40	0.3	0.05	773494	7303	12.92
Cr	K12	0.226	0.009	3.9	0.016	3316	5947	1.03
Mn	K12	1.669	0.014	0.8	0.013	29791	6119	2.68
Fe	K12	49.63	0.13	0.3	0.01	1124836	6269	27.29
Co	K12	Not det.			0.01	1	6166	13.94
Ni	K12	1.077	0.008	0.8	0.007	35460	5975	1.93
Cu	K12	2.705	0.013	0.5	0.006	100051	6262	3.35
Zn	K12	16.117	0.046	0.3	0.006	693029	7151	30.89
Rb	K12	0.158	0.002	1.5	0.003	11737	6213	1.27
Sr	K12	0.517	0.004	0.7	0.003	38396	6125	6.10
Sn	L1	0.726	0.099	13.6	0.201	978	8153	4.41
Ba	L1	2.437	0.039	1.6	0.052	10044	5140	0.99
Pt (IS)	L1	10.000	0.032	0.3	0.007	400348	7565	3.79
Pb	L1	13.675	0.040	0.3	0.006	587581	8349	14.28

Abbildung 5: S2 Picofox Ergebnisse für die Probe 2



S2 PICOFOX - TRACE ELEMENT ANALYSIS

Listed at 10.09.2018 13:35:26

User: Administrator
Project: 180910_Uguz.rtx
ID-No.:
Quant. type: Liquid
Meas.date: 10.09.2018 12:03:44
Count rate: 2968 cps
Voltage: 50 kV
Excitation: Mo K radiation
Filter: Mo 9,00 µm

Serial number: 422530915
Sample: Probe_3
Disc:
Spectrum: Probe_3_2
Live time: 400 s
Dead time: 0.8 %
Current: 1000 µA
Anode: Mo
Optic: Monochromator 17,500

Method: Sediment_neu_normal fit (Profile bayes normal fit)

Comment:

Element	Line	Conc./ mg/l	Sigma/ mg/l	RSD/ %	LLD/ mg/l	Net area	Backgr.	Chi
K	K12	0.206	0.014	6.6	0.024	828	1018	0.85
Ca	K12	0.559	0.013	2.3	0.015	3337	843	0.75
Cr	K12	[0.005]	0.003	49.6	0.005	83	796	2.78
Mn	K12	Not det.			0.004	8	839	1.22
Fe	K12	0.162	0.003	2.0	0.004	4111	889	0.98
Co	K12	Not det.			0.003	1	946	1.53
Ni	K12	0.004	0.001	29.9	0.003	158	1022	0.79
Cu	K12	0.004	0.001	33.2	0.003	153	1209	0.61
Zn	K12	0.089	0.002	2.1	0.002	4278	1445	0.83
Rb	K12	Not det.			0.001	1	1338	0.90
Sr	K12	0.020	0.001	4.2	0.001	1636	1384	1.53
Sn	L1	Not det.			0.060	1	915	2.11
Ba	L1	Not det.			0.018	1	734	1.37
Pt (IS)	L1	10.000	0.030	0.3	0.003	448343	1541	5.66
Pb	L1	Not det.			0.002	1	1555	2.70

Abbildung 6: S2 Picofox Ergebnisse für die Probe 3