

Institut für Neurowissenschaften und Medizin
Nuklearchemie (INM-5)

**Bestimmung langlebiger kosmogener (^{10}Be , ^{26}Al)
und anthropogener (^{137}Cs , $^{238,239,240}\text{Pu}$) Radio-
nuklide in Umweltproben mittels α -, γ - und
Beschleuniger-Massen-Spektrometrie zur Unter-
suchung geologischer Vorgänge**

Hendrik Wiesel

Inhaltsverzeichnis

1.	Motivation.....	1
2.	Zielsetzung.....	2
3.	Einleitung.....	4
3.1	Kosmogene Radionuklide	6
3.1.1	Allgemeines.....	6
3.1.2	Kosmische Strahlung.....	6
3.1.3	Kosmogene Nuklide und Produktionsmechanismen.....	10
3.1.4	Produktionsraten für kosmogene Radionuklide	15
3.1.5	Quarz als ideales Targetmaterial	17
3.1.6	Oberflächen-Datierungsmethode	19
3.1.7	Darstellung im Einheitsdiagramm.....	22
3.1.8	Der Begriff der Erosion.....	24
3.2	Das Element Plutonium	24
3.2.1	Historie.....	25
3.2.2	Vorkommen in der Umwelt.....	26
3.2.3	Isotope	28
3.2.4	Physikalische und chemische Eigenschaften	29
3.2.5	Oxidationszustände und Redoxeigenschaften.....	31
3.2.6	Spaltbarkeit.....	33
3.2.7	Globaler Fallout und Eintrag.....	35
3.2.8	²³⁸ Pu-Eintrag in der Umwelt	41
3.3	¹³⁷Cs in der Umwelt	43
3.4	¹³⁷Cs versus ²³⁹⁺²⁴⁰Pu als Umwelttracer	44
3.5	Verteilung von Fallout-Plutonium und Cäsium in Böden.....	45
4.	Messmethoden.....	46
4.1	Bestimmung von ^{239,240,242}Pu mittels AMS.....	47

4.2	^{238}U-Pilotstrahl zur Findung aller Pu-AMS-Parameter	51
4.3	Messung von ^{238}Pu mittels α -Spektrometrie	52
4.4	Messung von ^{137}Cs mittels γ -Spektrometrie	54
5.	Probenentnahme	57
5.1	Überblick	57
5.2	Probenentnahme im Queen Maud Land (Antarktis)	58
5.3	Probenentnahme im Oranje-Freistaat (Südafrika)	60
6.	Experimentelles	66
6.1	Allgemeines	66
6.2	^{10}Be - und ^{26}Al -Bestimmung in quarzhaltigen Gesteinsproben	67
6.3	^{137}Cs -Bestimmung in Böden	68
6.4	$^{239,240,(242)}\text{Pu}$ -Bestimmung in Böden	69
6.5	^{238}Pu -Bestimmung in Böden	71
7.	Ergebnisse	72
7.1	^{238}U -Pilotstrahl als Vorbereitung zur Pu-Messung	72
7.2	Bestimmung der ^{10}Be- und ^{26}Al-Konzentrationen von Nunataks im Queen Maud Land (Antarktis)	74
7.2.1	^{10}Be -Konzentrationen aus der Aufarbeitung nach Altmaier et al.	74
7.2.2	^{10}Be - und ^{26}Al -Konzentrationen aus der Aufarbeitung nach Kohl und Nishiizumi	76
7.3.	Bestimmung der ^{137}Cs- und $^{239,240}\text{Pu}$-Gehalte in den Agroökosystemen Tweespruit, Kroonstad und Harrismith (Südafrika)	80
7.3.1	^{137}Cs -Verlust der untersuchten Böden in den Agroökosystemen Tweespruit, Harrismith und Kroonstad	81
7.3.2	$^{239+240}\text{Pu}$ -Verlust der untersuchten Böden im Agroökosystem Tweespruit	84
7.3.3	$^{239+240}\text{Pu}$ -Verlust der untersuchten Böden im Agroökosystem Harrismith	86
7.3.4	$^{239+240}\text{Pu}$ -Verlust der untersuchten Böden im Agroökosystem Kroonstad	88
7.3.5	$^{239+240}\text{Pu}$ -Eintrag im Unterboden (20-40 cm)	90
7.3.6	^{137}Cs und $^{239+240}\text{Pu}$ als Umwelttracer	90

7.3.7	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Isotopenverhältnisse in Böden.....	92
7.3.8	^{238}Pu -Eintrag in Böden.....	93
7.3.10	Methodenoptimierung.....	94
8.	Diskussion.....	95
8.1	Rekonstruktion der Eisbedeckungsgeschichte zweier Nunataks im Queen Maud Land, Antarktis.....	95
8.2	Bedeutung des $^{239+240}\text{Pu}$- und ^{137}Cs-Verlustes in landwirtschaftlich genutzten Böden am Beispiel von drei Agroökosystemen im Oranje-Freistaat, Südafrika..	102
8.3	^{238}Pu-Eintrag in Umweltproben.....	107
8.4	Optimierung der Plutoniumaufarbeitungsmethode nach Everett et al. (2009)....	108
8.5	Fehlerdiskussion.....	109
9.	Zusammenfassung.....	111
10.	Literaturverzeichnis.....	116
11.	Anhang.....	132
11.1	^{137}Cs-Messprotokolle.....	132
11.2	AMS-Messergebnisse.....	145
11.2.1	Plutonium CologneAMS AMS-Messdaten.....	145
11.2.2	Plutonium ANU AMS-Messdaten.....	146
11.2.3	CologneAMS vs. ANU AMS: $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Verhältnisse - Zusammenfassung ...	147
11.3	Relative $^{239+240}\text{Pu}$- und ^{137}Cs-Verluste in Oberböden.....	148
11.4	Anleitungen zum Methodenteil.....	149
11.4.1	Anleitung zur Isolierung von Beryllium und Aluminium aus quarzhaltigen Gesteinsproben nach (Altmaier 2000).....	149
11.4.2	Anleitung zur Isolierung von Beryllium und Aluminium aus quarzhaltigen Gesteinsproben nach (Kohl und Nishiizumi 1992).....	150
11.4.3	Anleitung zur Isolierung von Plutonium aus Bodenproben zur anschließenden Elektrodeposition und α -Messung.....	152
12.	Abkürzungsverzeichnis.....	155
13.	Danksagung.....	156

Jül-4363
Juni 2013
ISSN 0944-2952

