

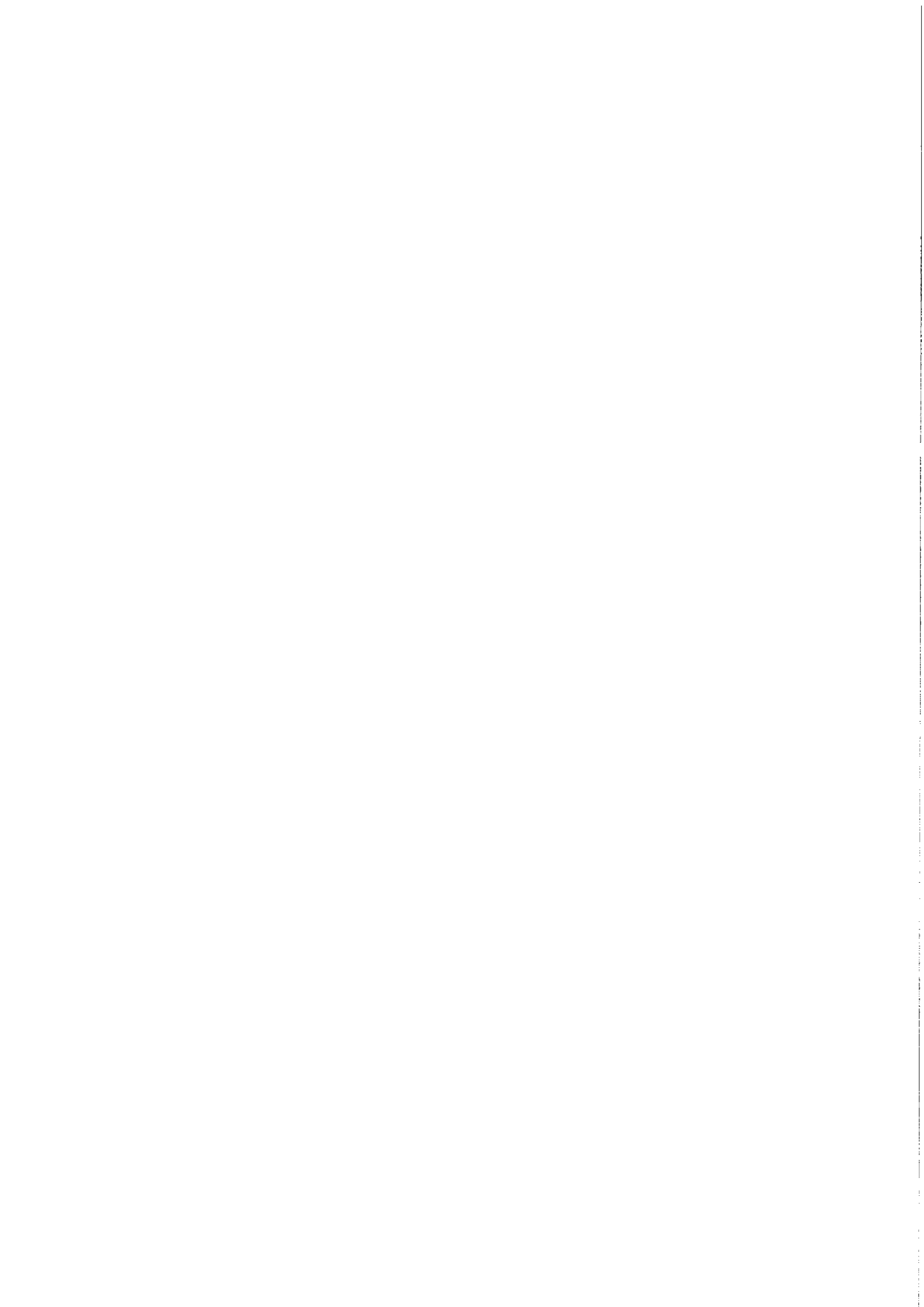


KfK 2892  
Dezember 1979

# **Die Plutonium-Kontamination des Altrheins: Die Kontamination der Sedimente**

M. Pimpl, H. Schüttelkopf, M. Afsar  
Hauptabteilung Sicherheit  
Projekt Nukleare Sicherheit

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Hauptabteilung Sicherheit

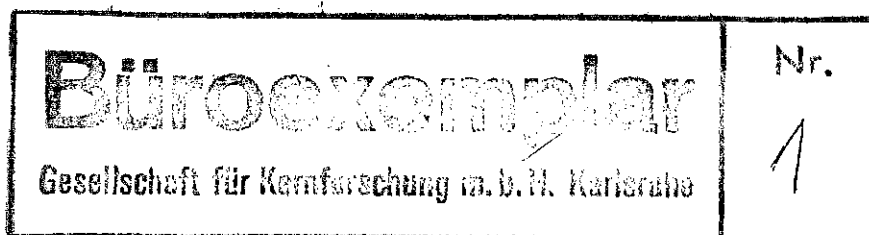
Projekt Nukleare Sicherheit

KfK 2892

Die Plutonium-Kontamination des Altrheins:

Die Kontamination der Sedimente

M. Pimpl, H. Schüttelkopf, M. Afsar



Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt  
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003

Die Plutonium-Kontamination des Altrheins:  
Die Kontamination der Sedimente

---

Zusammenfassung:

Die Verteilung von Pu-238 und Pu-239+240 in den Sedimenten des Altrheins, der vom Kernforschungszentrum Karlsruhe als Vorfluter benutzt wird, wurde gemessen. Querprofile, Tiefenprofile und Längsprofile wurden aufgenommen. Die Querprofile unterscheiden sich, ob der Altrhein sich in einer Flußbiegung bewegt oder auf einer geraden Strecke in der Mitte des Flußbettes. Die Sedimente sind bis zu der untersten Schicht, die im Mittel in 70 cm Tiefe liegt, gleichförmig mit Plutonium kontaminiert. Die Kontamination der Längsprofile hängt ab von Verengungen im Altrhein, der Breite des Flusses und dem Abstand von der Einleitungsstelle des Abwassers. Insgesamt wurden im Altrhein 94 % des mit dem Abwasser emittierten Plutoniums wiedergefunden.

The Plutonium Contamination of the "Altrhein":  
The Contamination of the Sediments

---

Summary:

The distribution of Pu-238 and Pu-239+240 in the sediments of the "Altrhein", a former branch of the river Rhine which serves as a main canal for liquid effluents from the Nuclear Research Center, was measured. Transverse, longitudinal and depth profiles were taken. The transverse profiles are different: either the "Altrhein" moves in a bend or he moves on a straight line in the middle of the river-bed. The sediments are homogenously contaminated with plutonium up to the lowest layer which is in about 70 cm depth. The contamination of the longitudinal profiles depends on the straitening of the "Altrhein", on the width of the river, and on the distance from the location of discharge of the waste water. In the "Altrhein" 94 % of plutonium, in total, emitted with the waste water, were refound.

## Inhaltsverzeichnis:

|   | Seite |
|---|-------|
| 1. Einleitung   | 1     |
| 2. Probenahme, Probenvorbereitung und Analyse der Proben                          | 1     |
| 3. Ergebnisse der Messungen   | 4     |
| 3.1 Der erste und zweite Vorversuch   | 4     |
| 3.2 Die Plutoniumkontamination der Sedimente aus den ersten 3 km des Altrheins    | 4     |
| 3.3 Die Plutoniumkontamination in den Querprofilen                                | 4     |
| 3.4 Die Plutoniumkontamination in den Längsprofilen                               | 14    |
| 3.5 Die Plutoniumkontamination in den Tiefenprofilen                              | 14    |
| 3.6 Die Plutoniumkontamination in der tiefsten Schlammschicht                     | 19    |
| 3.7 Zusätzliche Informationen über den untersuchten Linkenheimer Altrhein         | 19    |
| 3.8 Die Plutoniumkonzentration im Abwasser des Kernforschungszentrums Karlsruhe   | 19    |
| 4. Diskussion der Ergebnisse  | 24    |
| 4.1 Die Vorversuche   | 24    |
| 4.2 Die Messung der Plutoniumkontamination der Sedimente im Linkenheimer Altrhein | 24    |
| 4.2.1 Die Plutoniumverteilung in den Querprofilen                                 | 25    |
| 4.2.2 Die Plutoniumverteilung in den Tiefenprofilen                               | 26    |
| 4.2.3 Die Plutoniumverteilung in den Längsprofilen                                | 34    |
| 4.3 Die im Altrhein deponierte Plutoniumaktivität                                 | 45    |
| 5. Zusammenfassung der Ergebnisse   | 48    |

## 1. EINLEITUNG

Im Rahmen des Projektes Nukleare Sicherheit wird in der Hauptabteilung Sicherheit/Radioökologie das Forschungsthema PNS 4812, "Das physikalische und chemische Verhalten biologisch besonders wirksamer Radionuklide", untersucht. Ziel des Forschungsvorhabens ist es, die Strahlenbelastung der Umgebungsbevölkerung zu beurteilen, nachdem eine Freisetzung hoher Plutoniumaktivitäten aus einer kerntechnischen Anlage erfolgt ist. Dieses Forschungsprogramm umfaßt daher das Studium des Verhaltens von Plutonium in terrestrischen und aquatischen Ökosystemen und die Zielsetzung einer aktiven Beeinflussung und Reduktion der einmal erfolgten Kontamination.

In diesem Bericht wird das Verhalten von Plutonium in einem aquatischen Ökosystem - dem Altrhein - untersucht. Der Altrhein dient dem Kernforschungszentrum und der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe als Vorfluter. In ihn werden die geklärten und gereinigten Abwässer, die nur noch sehr niedrige Konzentrationen von Radionukliden enthalten, eingeleitet. Diese Abwässer enthalten auch die Plutoniumisotope Pu-238, Pu-239 und Pu-240. Diese Einleitung extrem niedriger Plutoniumaktivitäten wird herangezogen, um die Kontamination der Sedimente des Altrheins zu studieren, um die Transferfaktoren Wasser/Fisch und Wasser/Pflanze zu messen und um den Mechanismus der Kontamination eines langsamfließenden Flußsystems zu erfassen. In diesem Bericht wird über die Kontamination der Sedimente des Altrheins berichtet.

## 2. PROBENAHME, PROBENVORBEREITUNG UND ANALYSE DER PROBEN

Für diesen Bericht wurden Sediment- und Abwasserproben auf Plutonium analysiert. Die Sedimentproben wurden mit einem Metallschöpfer an einer 3 m langen Stange aus der jeweils interessierenden Schicht der Sedimente genommen. Mit wenigen Ausnahmen erfolgte die Probenahme von einem Boot aus. Insgesamt wurde jeweils eine 2 l-Weithalsflasche aus Kautex mit dem mehr oder weniger dünnflüssigen Sediment gefüllt. Nach Absetzen des Sediments enthielt eine Flasche etwa 1800 ml Schlick und etwa 200 ml überstehendes Wasser.

Das geklärte Abwasser des Kernforschungszentrums Karlsruhe und der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe wird aus 450 m<sup>3</sup> und 600 m<sup>3</sup> fassenden Endbecken diskontinuierlich in den Altrhein eingeleitet. Zur Bestimmung des monatlichen Plutoniumausstoßes werden aus jedem Endbecken, das innerhalb eines Monats entleert wird, aliquote Anteile des Abwassers genommen und zu einer monatlichen Mischprobe gesammelt. Diese Mischprobe wird zur Plutoniumanalyse verwendet.

Die Sedimentproben werden über Nacht bei 110 °C getrocknet, gewogen und gemahlen. Nach dem Sieben, 0,8 mm Maschenweite, wird die Sedimentprobe fünf Stunden bei 650 °C verascht. Nach dem Abkühlen wird die Asche mit HNO<sub>3</sub>, 65 %ig, angefeuchtet und weitere vier bis fünf Stunden bei 650 °C verascht und gewogen. Als Behälter werden große Porzellanschalen oder Quarzglasschalen verwendet. 1 l der Abwasser-Mischprobe wird auf 100 ml mit Salpetersäure eingedampft und zur Analyse verwendet.

Zur Analyse der Sedimente werden 100 g der erhaltenen Asche mit 350 ml 8 M HNO<sub>3</sub> eine halbe Stunde ausgekocht. Durch Zentrifugieren wird der Rückstand von der Salpetersäurelösung getrennt. Der Rückstand wird mit 300 ml 8 M HNO<sub>3</sub> bedeckt, und es wird abermals eine halbe Stunde gekocht. Nach abermaligem Zentrifugieren werden die Lösungen vereinigt und in der Siedehitze mit 5 g NaNO<sub>2</sub> behandelt. Die folgende analytische Abtrennung der Plutoniumfraktion umfaßt eine Extraktion mit Trioctylphosphinoxid, eine Rückextraktion mit Ascorbinsäure/HCl, eine LaF<sub>3</sub>-Mitfällung des Plutoniums und einen Anionenaustausch. Das Eluat wird eingedampft und durch Elektroplattierung ein für die  $\alpha$ -Spektrometrie geeignetes Präparat hergestellt. Die Analyse der Abwasserproben verläuft analog.

Die  $\alpha$ -Spektrometrie wird mit Ortec BPY 55-350 SQ/R-Detektoren durchgeführt. Sechs vorhandene Detektoren sind angeschlossen an eine Nuclear-Data-Anlage 6620. Die verwendete Meßzeit liegt zwischen 300 und 1000 min; die erreichten Nachweisgrenzen liegen im Bereich von 0,1 fCi/g bzw. 10 fCi/l. Die Ausbeutebestimmung erfolgt durch am Anfang der Probe zugesetztes Pu-236. Ein typisches  $\alpha$ -Spektrum ist in Abb. 1 wiedergegeben.



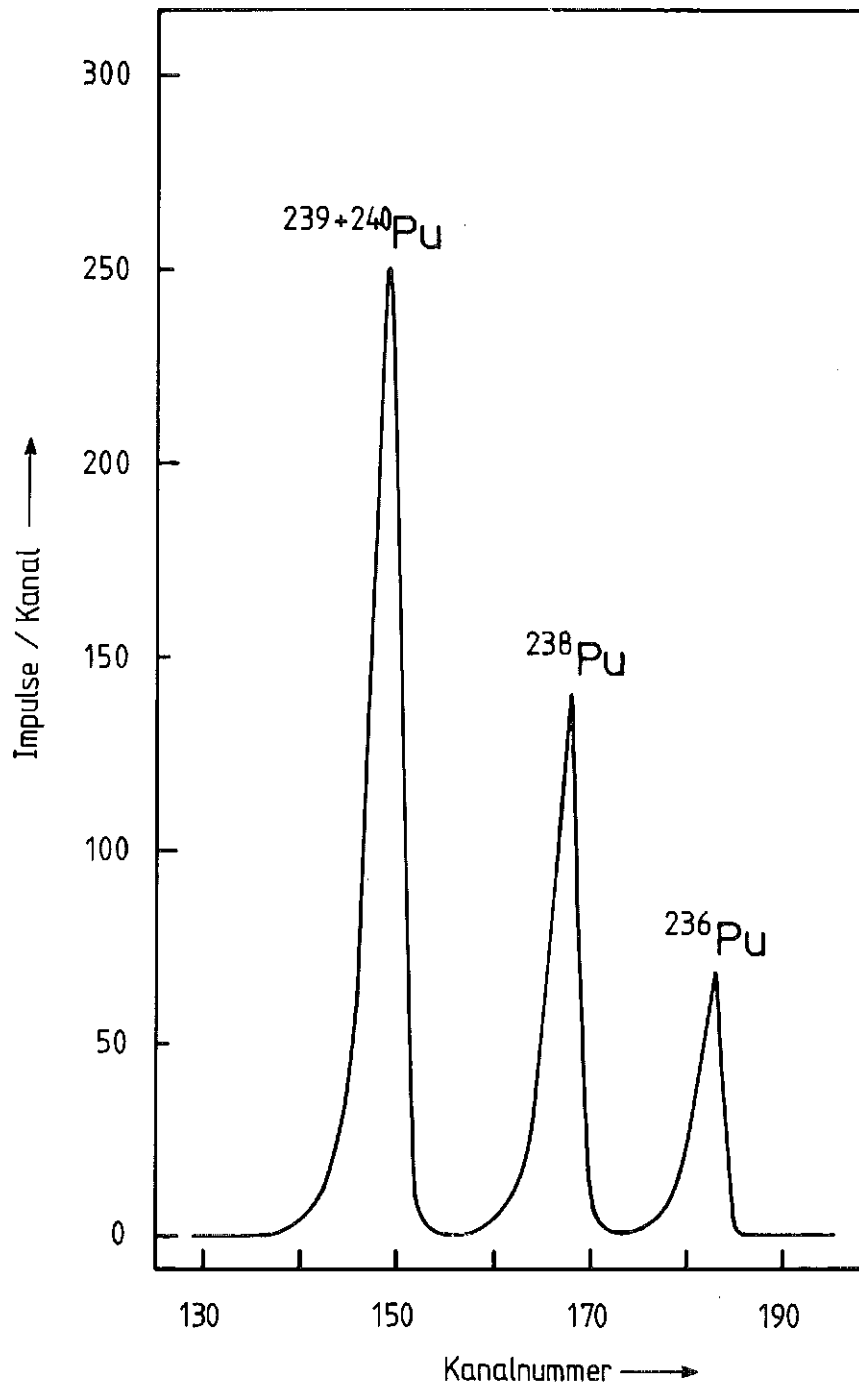


Abb. 1:  $\alpha$ -Spektrum des Pu-Präparates, erhalten bei der Analyse von 100 g Sedimentasche von Probenahme-Position 18.  
 $^{239+240}\text{Pu}$ : 32,1 fCi/g trocken;  $^{238}\text{Pu}$ : 16,1 fCi/g trocken

### 3. ERGEBNISSE DER MESSUNGEN

#### 3.1 Der erste und zweite Vorversuch

Im Juni 1977 wurden zwischen der Abwassereinleitung und 2 km flußabwärts erstmals Sedimentproben aus der Mitte des Altrheins genommen. Die Abstände der Probenahme von der Einleitungsstelle des Abwassers betragen 10, 20, 50, 100, 200, 500, 1000 und 2000 m. Gleichzeitig wurde eine Probe flußaufwärts der Abwassereinleitung genommen, um den Fallout-Untergrund der Plutoniumkontamination des Altrheins zu messen. Im November 1978 wurde ein Längsprofil der Plutoniumkontamination der Altrheinsedimente zwischen der Abwassereinleitungsstelle und der Einmündung des Altrheins in den Rhein gemessen. Die Probenahmepositionen sind aus Abb. 2 zu entnehmen. Die Ergebnisse der Plutoniumkontamination sind in Abb. 3 wiedergegeben.

#### 3.2 Die Plutoniumkontamination der Sedimente aus den ersten 3 km des Altrheins

Aus den Vorversuchen geht hervor, daß die Plutoniumkontamination der Sedimente auf den ersten 3,4 km am höchsten ist. Daher wurde dieser Teil des Altrheins einer sorgfältigeren Untersuchung unterzogen. Insgesamt wurden an 23 Positionen Proben genommen. Die Probenahmepositionen sind in Abb. 4 wiedergegeben. An jeder der Probenahmepositionen wurden zwischen drei und neun Proben auf Querprofilen zum Fluß entnommen. Die Probenahme erfolgte auch hier aus der obersten Sedimentschicht. Die Ergebnisse der Plutoniumkontamination der Sedimente sind schematisch dargestellt in der Abb. 5.

#### 3.3 Die Plutoniumkontamination in den Querprofilen

In den Abbn. 6 bis 10 werden die Plutoniumkonzentrationen in den Sedimenten der Querprofile schematisch der Altrhein-Breite gegenübergestellt.

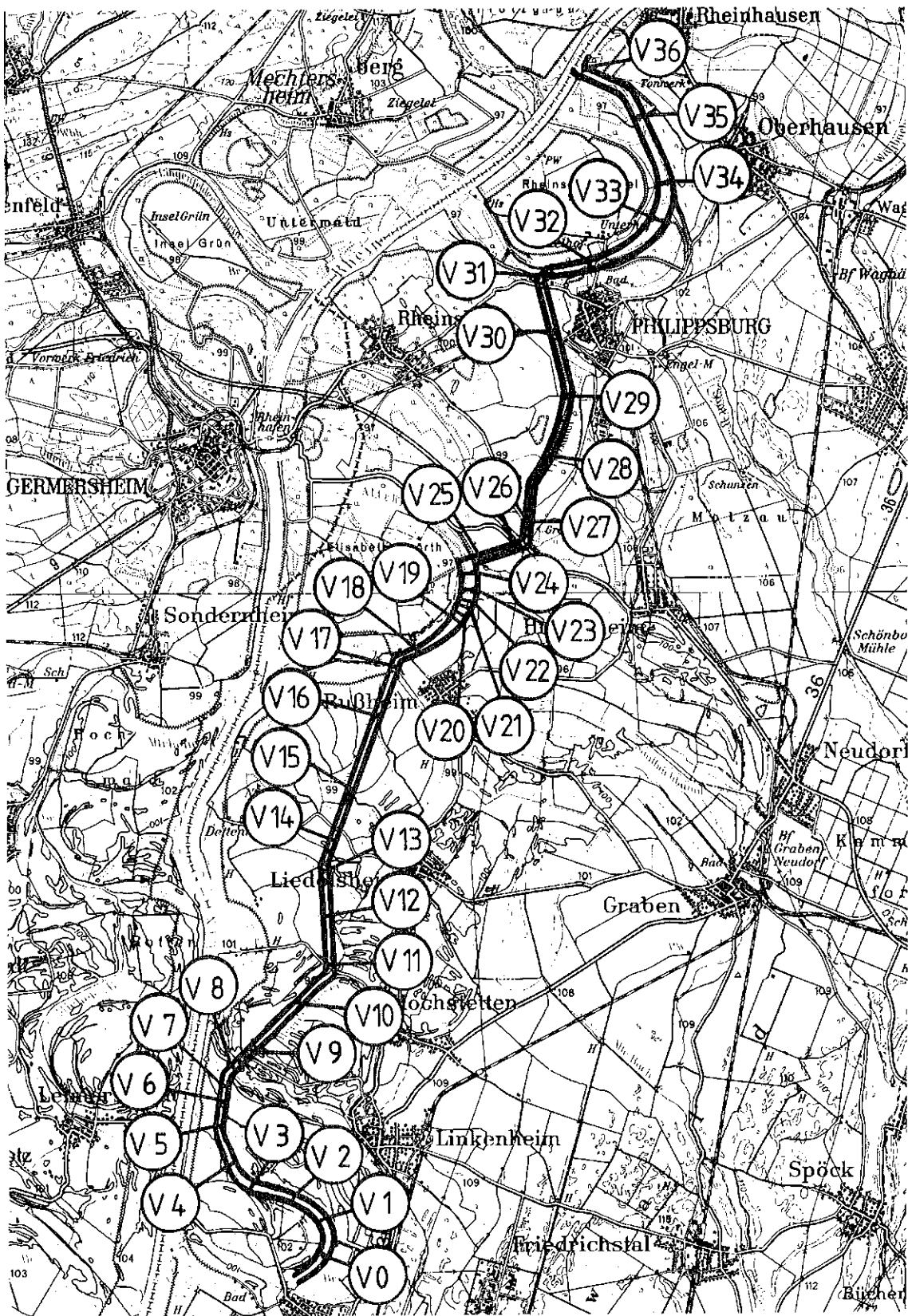


Abb. 2: Lage der Probenahme-positionen am Altrhein zur Messung eines Längsprofils der Pu-Kontamination der Sedimente zwischen der Einleitung der KfK-Abwässer in den Altrhein und der Mündung in den Rhein im November 1978. Maßstab: 1:100000.

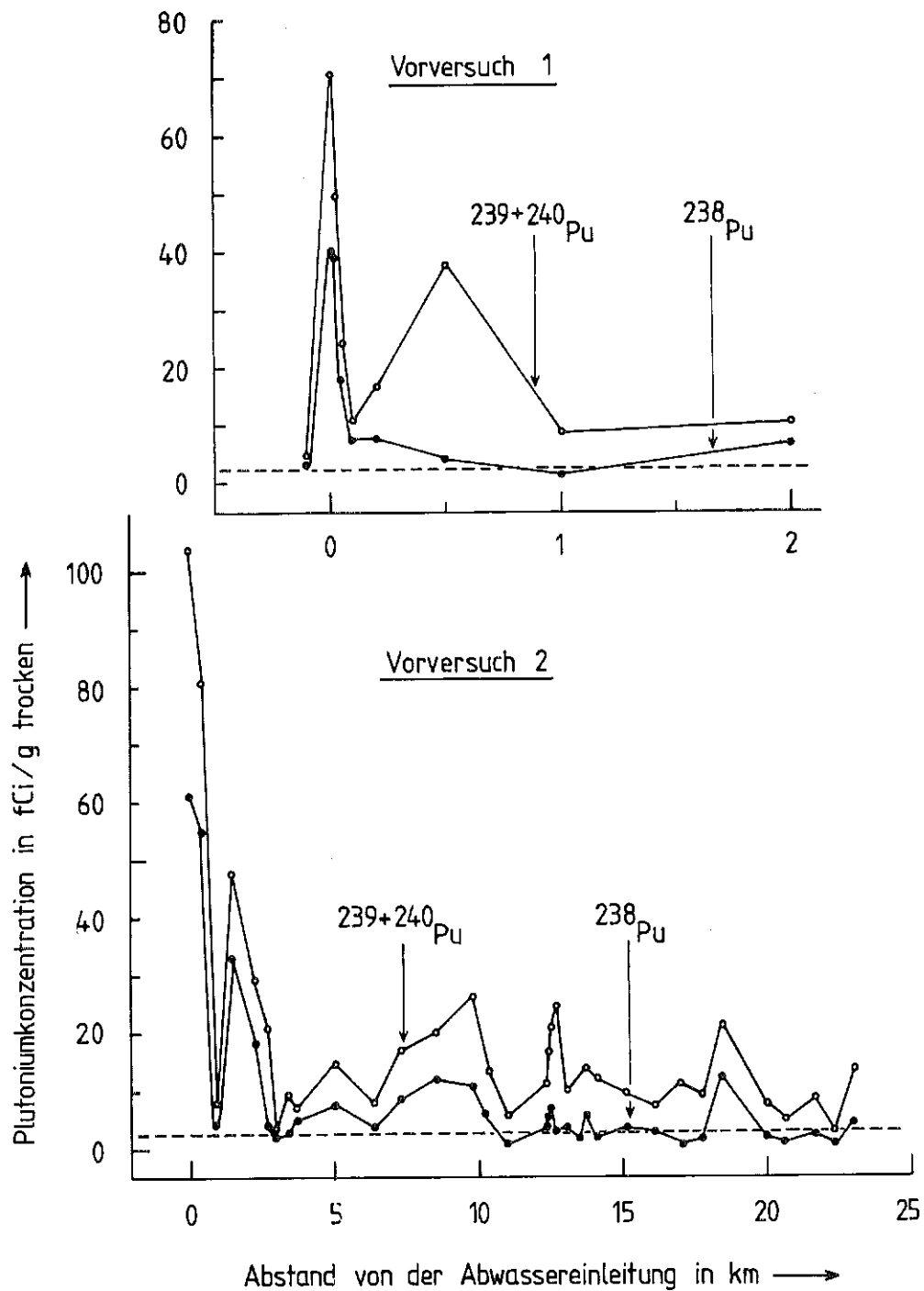


Abb. 3:  $^{239}+^{240}\text{Pu}$ - und  $^{238}\text{Pu}$ -Konzentrationen in den Sedimenten des Altrheines, genommen bei den Vorversuchen im Juni 1977 und im November 1978. ---Nullpegel entsprechend dem Waffenfallout.

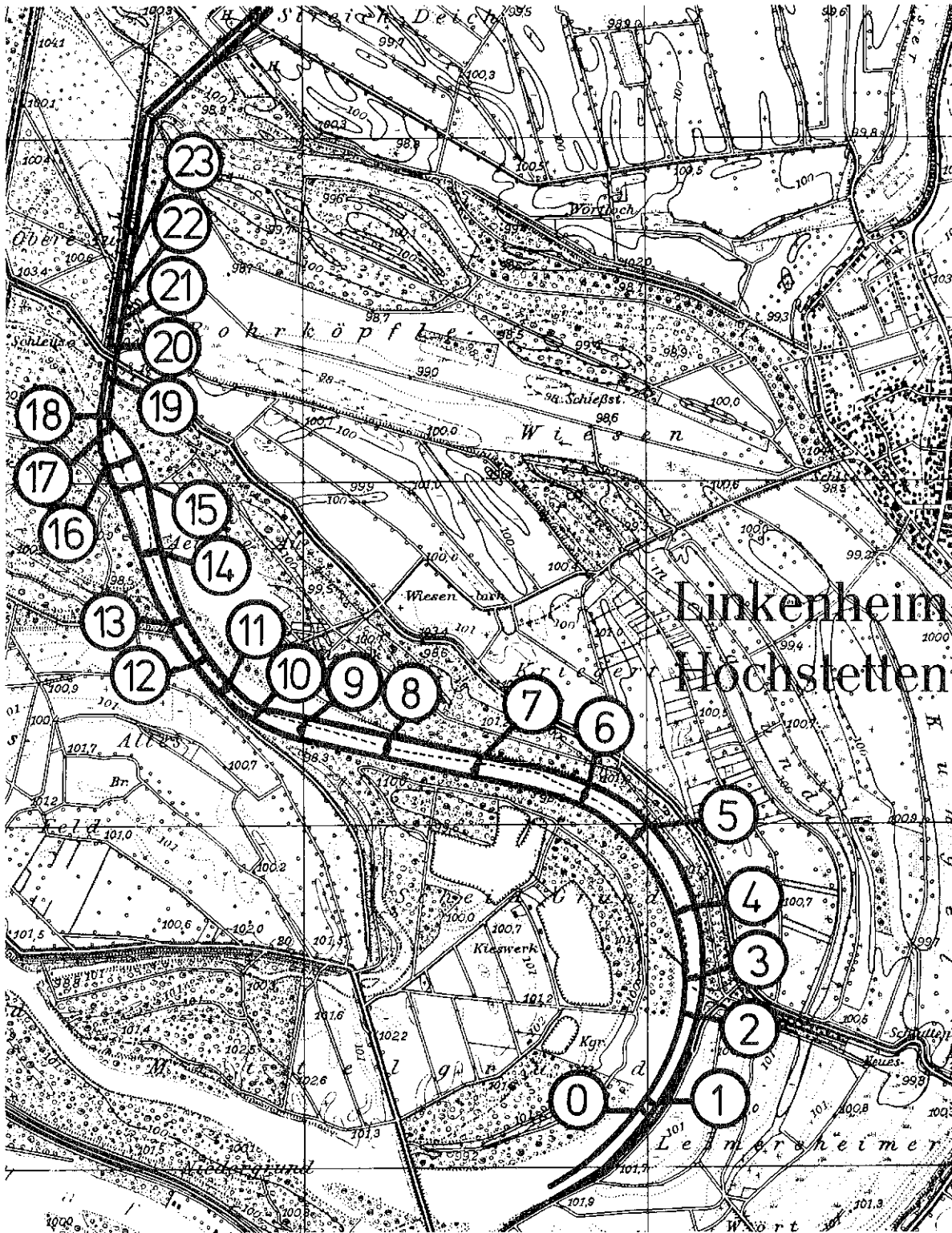
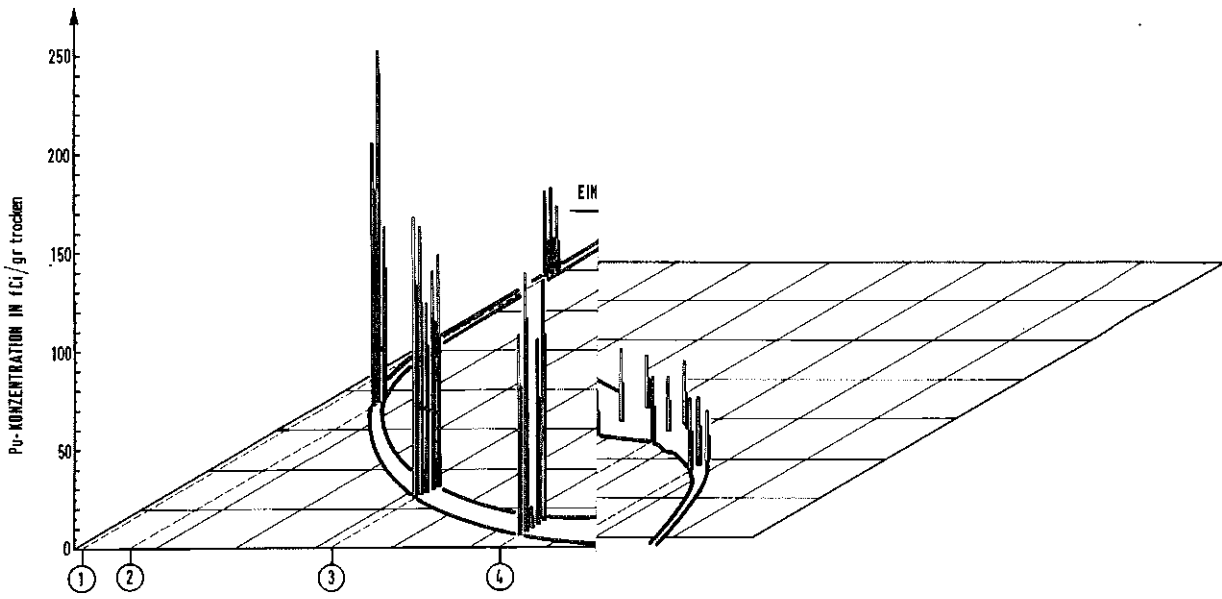


Abb. 4: Lage der Probenahmepositionen am Altrhein zur Messung von Längs-Quer- und Tiefenprofilen der Pu-Kontamination der Sedimente auf 3,5 km Flußlauf flußabwärts der Einleitung der KfK-Abwässer. Maßstab: 1:25000



atistische Darstellung der  $^{239+240}\text{Pu}$ - und  $^{238}\text{Pu}$ -Konzentration in Proben der obersten Sedimentschicht des Linkenheiltrheins. Weiße Säulen:  $^{239+240}\text{Pu}$ , Schwarze Säulen:

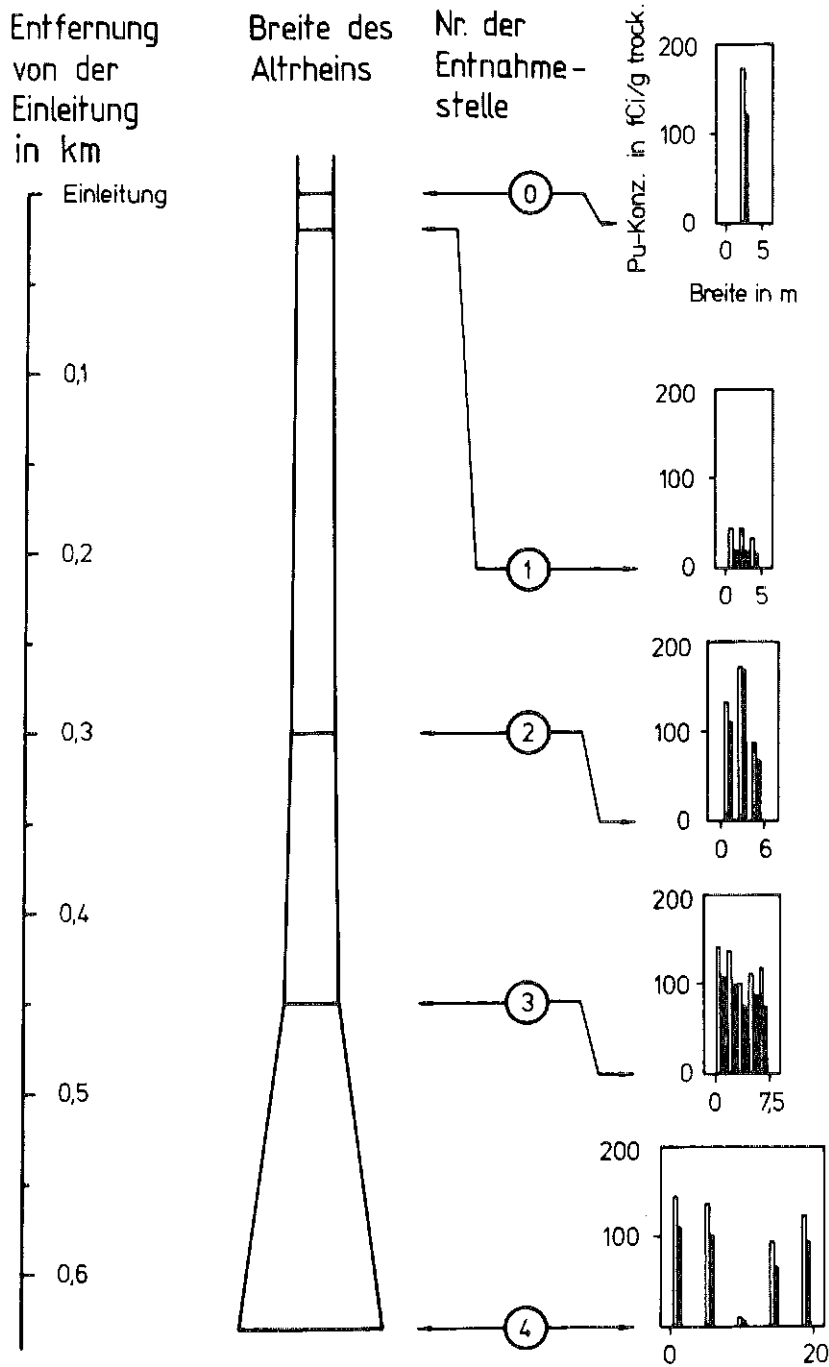


Abb. 6: Schematische Gegenüberstellung der Altrheinbreite und der Querprofile der  $^{239+240}\text{Pu}$ - und  $^{238}\text{Pu}$ -Konzentrationen in der obersten Sedimentschicht des Lindeheimer Altrheins. Weiße Säulen:  $^{239+240}\text{Pu}$ . Schwarze Säulen:  $^{238}\text{Pu}$ .

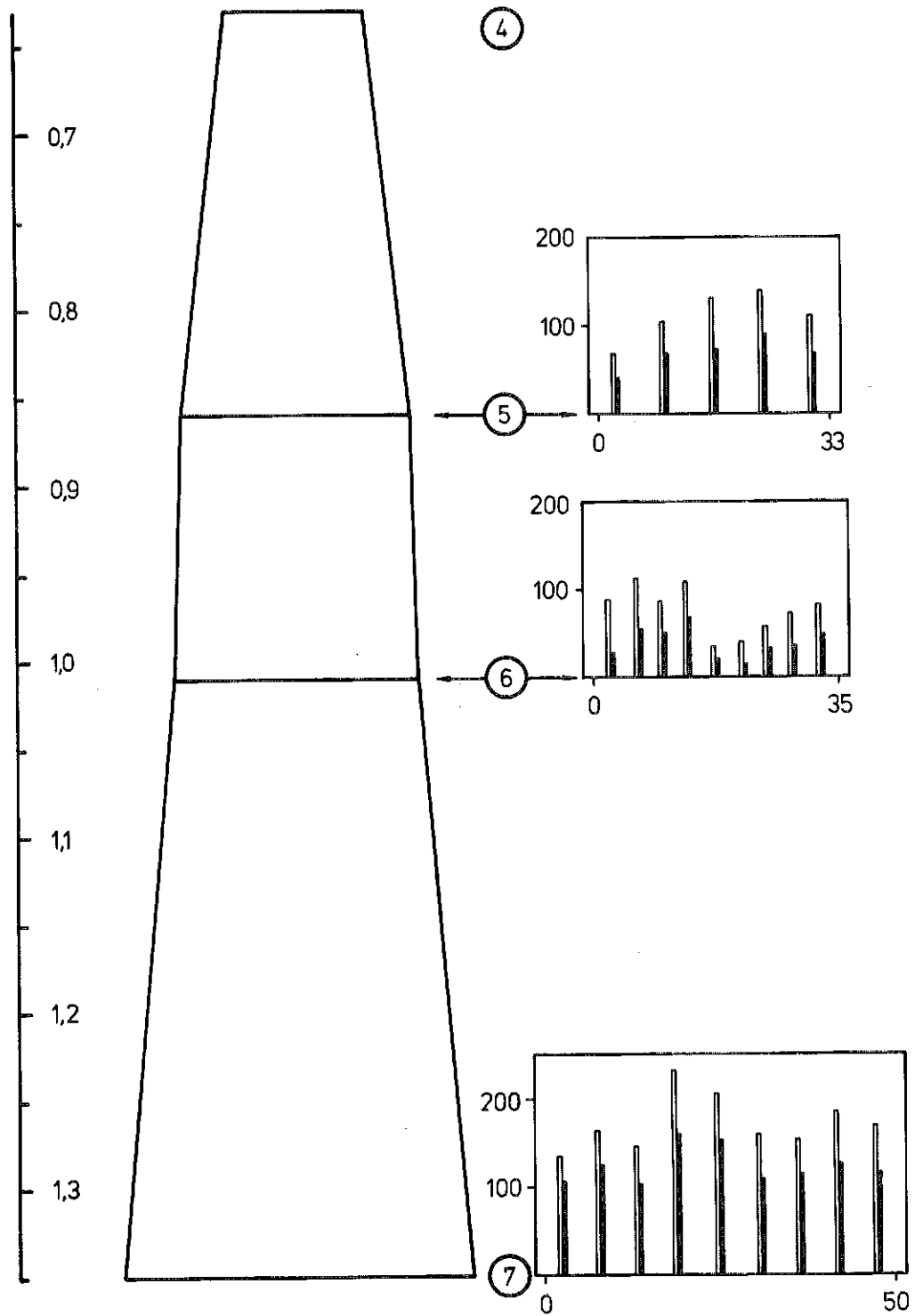


Abb. 7: Schematische Gegenüberstellung der Altrheinbreite und der Querprofile der  $^{239+240}\text{Pu}$ - und  $^{238}\text{Pu}$ -Konzentrationen in der obersten Sedimentschicht des Linkenheimer Altrheins. Weiße Säulen:  $^{239+240}\text{Pu}$ , Schwarze Säulen:  $^{238}\text{Pu}$ .



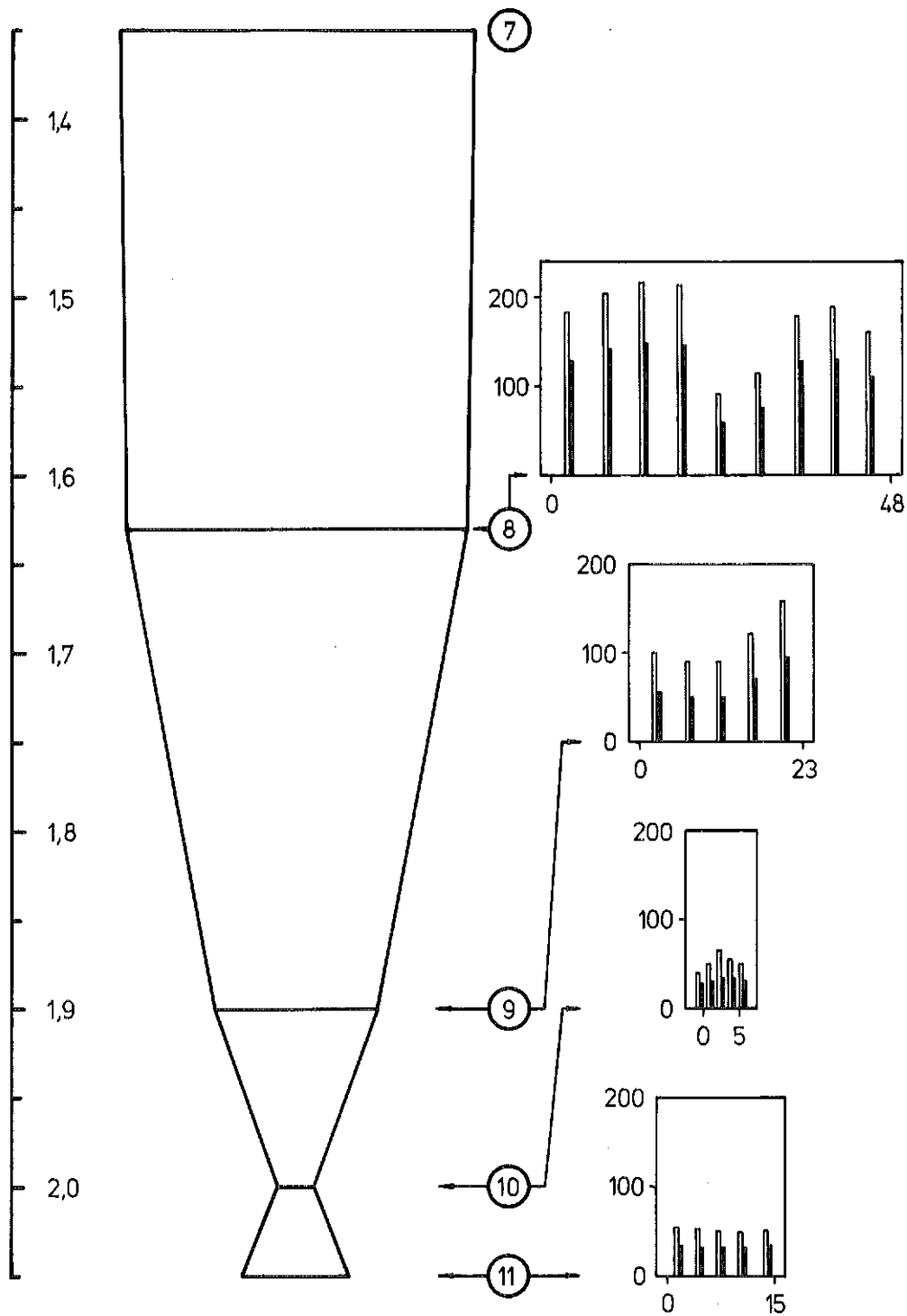
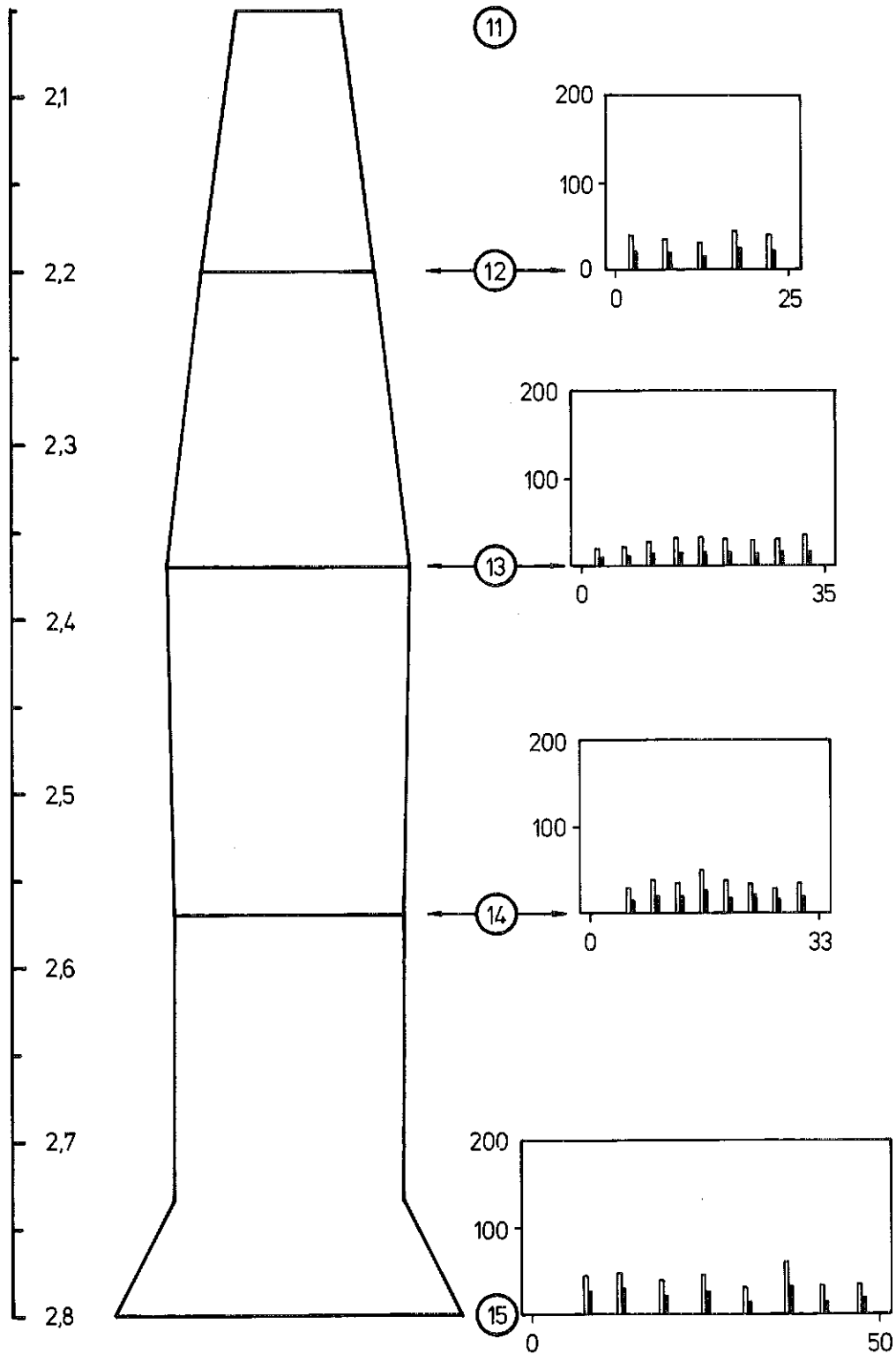


Abb. 8: Schematische Gegenüberstellung der Altrheinbreite und der Querprofile der  $^{239+240}\text{Pu}$ - und  $^{238}\text{Pu}$ -Konzentrationen in der obersten Sedimentschicht des Linkenheimer Altrheins. Weiße Säulen:  $^{239+240}\text{Pu}$ , Schwarze Säulen:  $^{238}\text{Pu}$ .



**Abb. 9:** Schematische Gegenüberstellung der Altrheinbreite und der Querprofile der  $^{239+240}\text{Pu}$ - und  $^{238}\text{Pu}$ -Konzentrationen in der obersten Sedimentschicht des Linkenheimer Altrheins. Weiße Säulen:  $^{239+240}\text{Pu}$ . Schwarze Säulen:  $^{238}\text{Pu}$ .

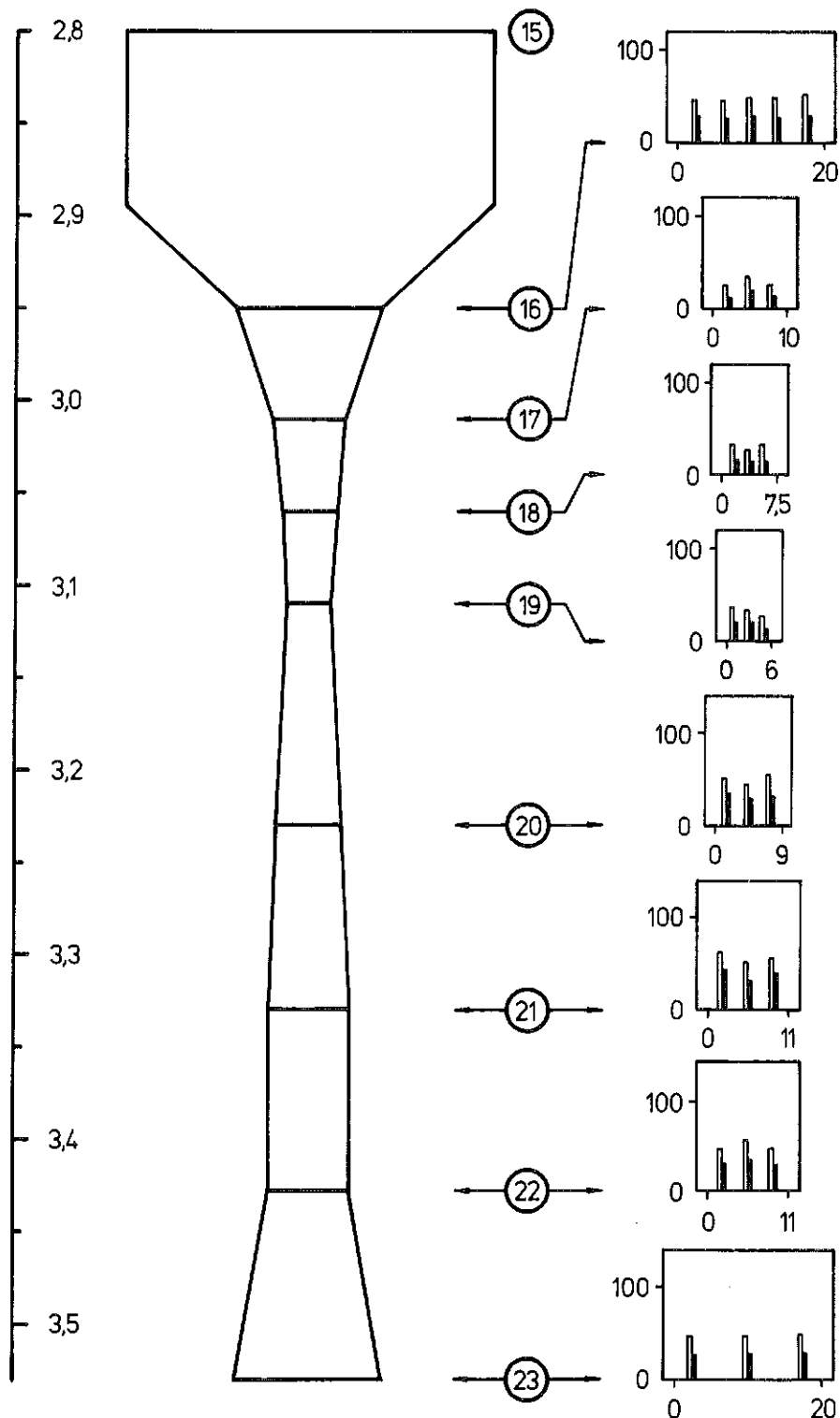


Abb. 10: Schematische Gegenüberstellung der Altrheinbreite und der Querprofile der  $^{239+240}\text{Pu}$ - und  $^{238}\text{Pu}$ -Konzentrationen in der obersten Sedimentschicht des Linkenheimer Altrheins. Weiße Säulen:  $^{239+240}\text{Pu}$ . Schwarze Säulen:  $^{238}\text{Pu}$ .

### 3.4 Die Plutoniumkontamination in den Längsprofilen

Der Verlauf der Längsprofile der Plutoniumkonzentration der obersten Sedimentschicht wird in den Abbn. 11 bis 13 für das linke Ufer, die Mitte und das rechte Ufer des Altrheins dargestellt. Von der Einleitungsstelle der KfK-Abwässer flußaufwärts wurden zusätzlich Proben im Abstand von 0, 100, 200, 300, 400, 500 und 1500 m genommen. Die Plutoniumkonzentrationen in diesen Sedimenten sind zusätzlich zum Längsprofil der Plutoniumkontamination flußabwärts in Abb. 12 eingetragen.

### 3.5 Die Plutoniumkontamination in den Tiefenprofilen

An der Probenahmestelle 8 wurden am linken Ufer, in der Mitte und am rechten Ufer je drei Tiefenprofile aus der etwa 70 cm dicken Schlickschicht entnommen. Unterhalb dieser Schlickschicht bildet sich fester Boden. Die in den Proben aus den einzelnen 10 cm-Schichten gemessenen Plutoniumkonzentrationen sind in Abb. 14 wiedergegeben. Die Isotopenverhältnisse Pu-238/Pu-239+240 sind in Tab. 1 aufgeführt.

| Sedimenttiefe<br>in cm | Verhältnis Pu-238/Pu-239+240 |             |              |
|------------------------|------------------------------|-------------|--------------|
|                        | Linkes Ufer                  | Mitte       | Rechtes Ufer |
| 0 - 10                 | 0,64 ± 0,04                  | 0,64 ± 0,08 | 0,67 ± 0,08  |
| 10 - 20                | 0,26 ± 0,02                  | 0,29 ± 0,04 | 0,41 ± 0,06  |
| 20 - 30                | 0,34 ± 0,03                  | 0,45 ± 0,04 | 0,67 ± 0,11  |
| 30 - 40                | 0,19 ± 0,13                  | 0,41 ± 0,04 | 0,60 ± 0,16  |
| 40 - 50                | 0,19 ± 0,03                  | 0,45 ± 0,04 | 0,71 ± 0,18  |
| 50 - 60                | 0,48 ± 0,04                  | 0,48 ± 0,05 | 0,48 ± 0,04  |
| 60 - 70                | 0,36 ± 0,04                  | 0,36 ± 0,03 | 0,67 ± 0,08  |

Tab. 1: Das Verhältnis Pu-238/Pu-239+240 in verschieden tief gelegenen Sedimentschichten (bei Probenahmestelle 8)

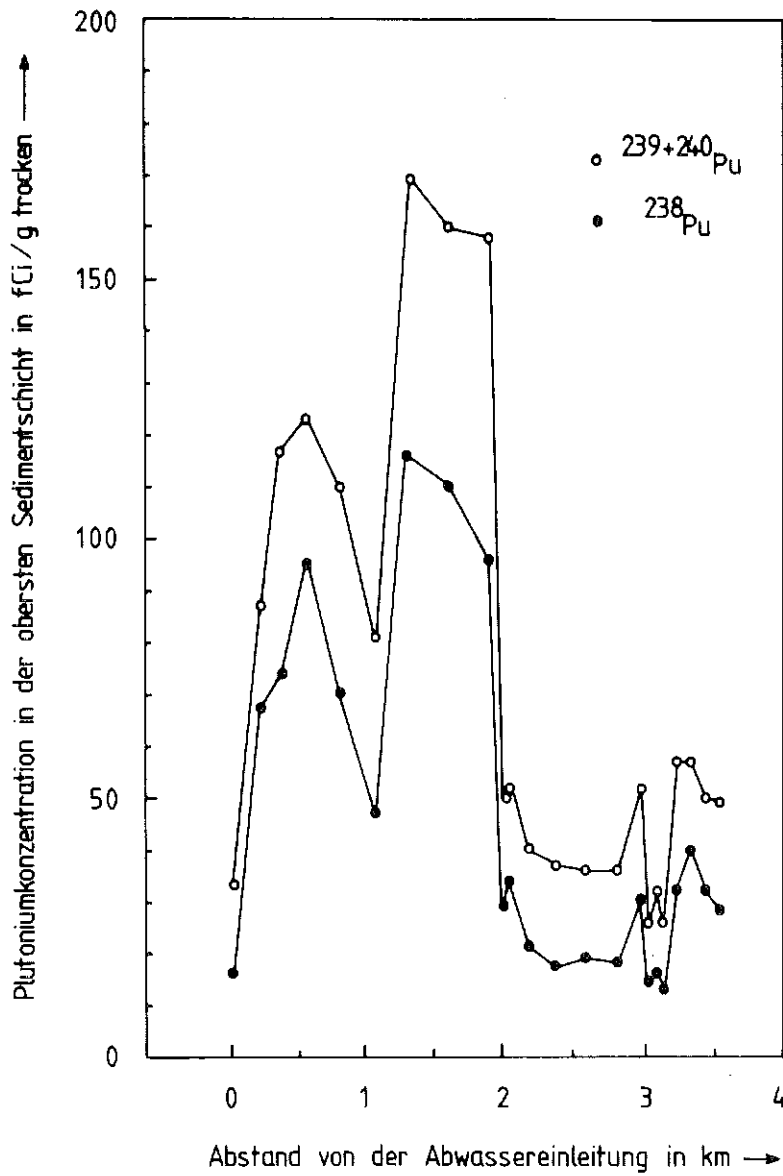


Abb. 11: Verlauf der  $^{239+240}\text{Pu}$ - und  $^{238}\text{Pu}$ -Konzentrationen in der obersten Schicht der Sedimente des Altrheins in Abhängigkeit vom Abstand von der Abwassereinleitung flussabwärts, linkes Ufer des Altrheins.

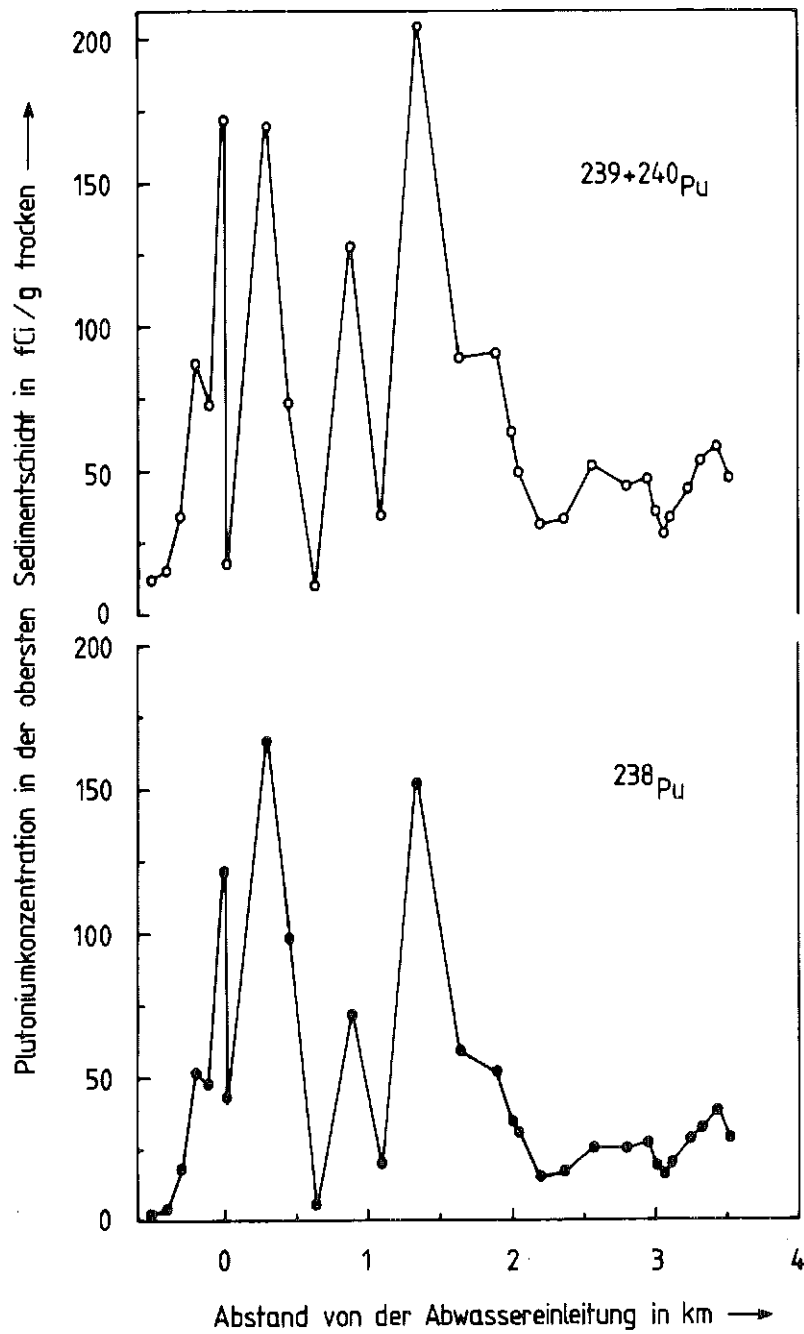


Abb. 12: Verlauf der  $^{239+240}\text{Pu}$ - und  $^{238}\text{Pu}$ -Konzentrationen in der obersten Schicht der Sedimente des Altrheines in Abhängigkeit vom Abstand von der Abwassereinleitung flussabwärts. Mitte des Altrheines.

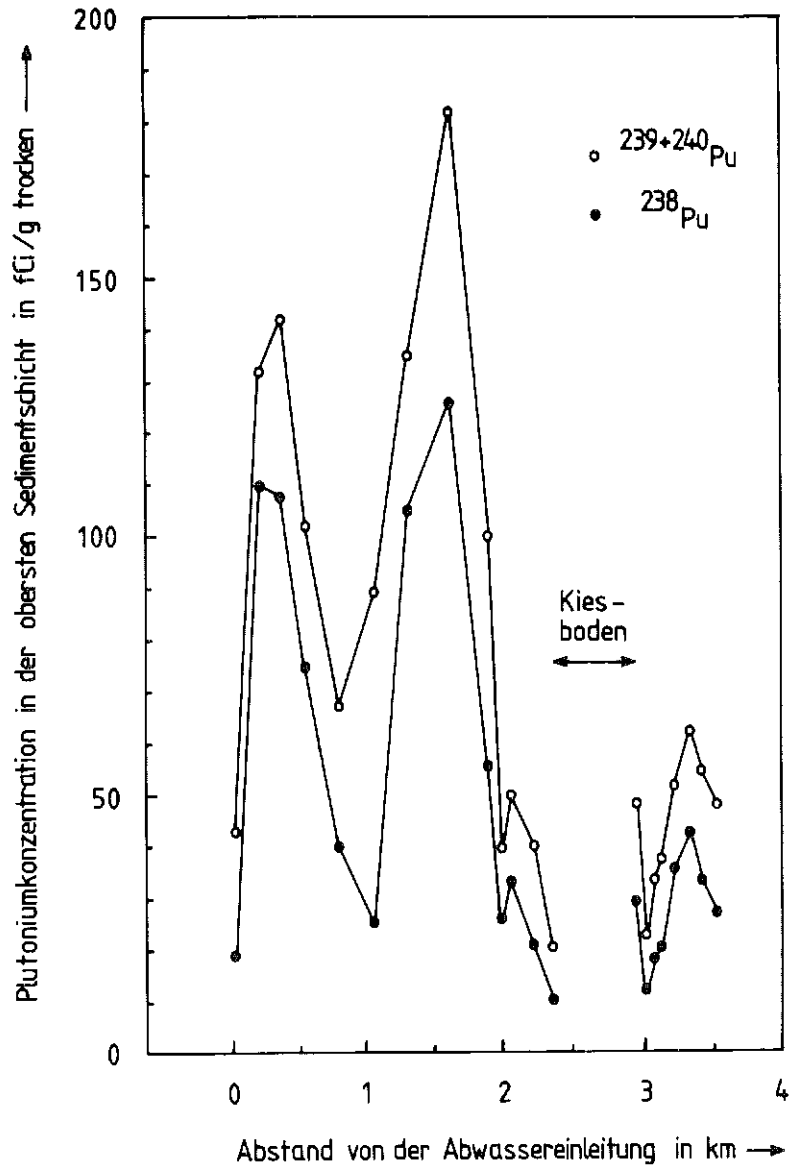


Abb. 13: Verlauf der  $^{239+240}\text{Pu}$ - und  $^{238}\text{Pu}$ -Konzentrationen in der obersten Schicht der Sedimente des Altrheins in Abhängigkeit vom Abstand von der Abwassereinleitung flussabwärts, Rechtes Ufer des Altrheins.

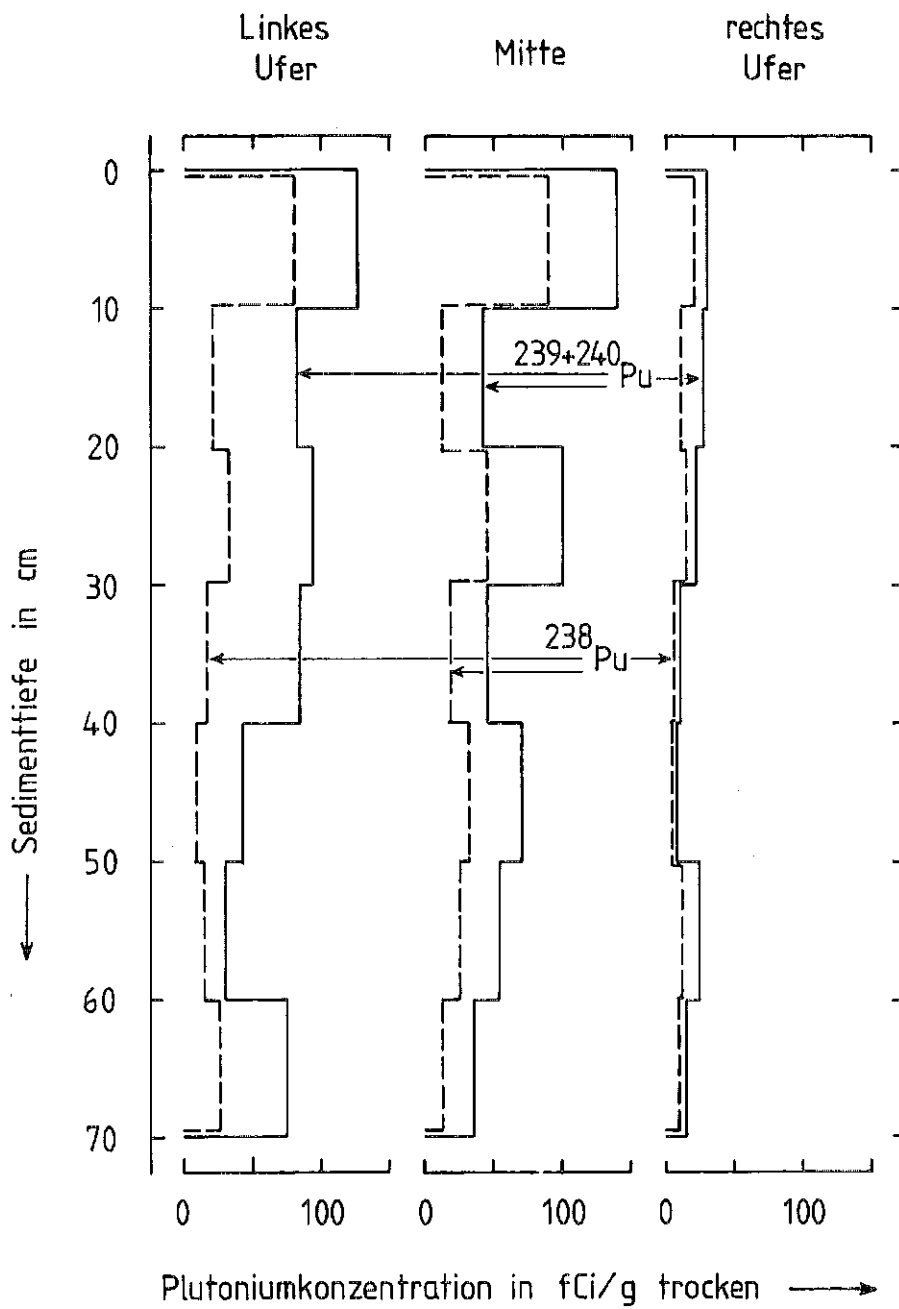


Abb. 14: Die  $^{239+240}\text{Pu}$ - und  $^{238}\text{Pu}$ -Konzentrationen in den Sedimenten der Probenahmestelle 8 des Altrheins in Abhängigkeit von der Sedimenttiefe.



### 3.6 Die Plutoniumkonzentration in der tiefsten Schlammschicht

An 24 Positionen wurden aus der Sedimentschicht, knapp über dem harten Grund, Proben entnommen. Die Ergebnisse der Plutoniumkonzentrationen sind in Tab. 2 wiedergegeben. Die verwendeten Abkürzungen M, L und R bedeuten Mitte, links und rechts.

### 3.7 Zusätzliche Informationen über den untersuchten Linkenheimer Altrhein

An jeder Probenahmestelle wurde die Sedimentdichte durch Division des erhaltenen Trockengewichtes durch das Schlickvolumen von 1,8 l bestimmt. Ebenso wurde an jeder Probenahmestelle die Wassertiefe und die Sedimenttiefe gemessen. Aus Luftaufnahmen des Maßstabes 1:2500 wurde die Breite des Altrheins an jeder Probenahme-position entnommen. An der Einleitungsstelle wurde die mittlere Flußgeschwindigkeit von 0,4 m/s gemessen. Aus dieser Fließgeschwindigkeit und den bekannten Wasserprofilen und der Annahme, daß der Wasserdurchsatz zu einem bestimmten Zeitpunkt an allen Stellen des Altrheins gleich groß ist, wurden Fließgeschwindigkeiten für alle Probenahme-positionen berechnet.

### 3.8 Die Plutoniumkonzentration im Abwasser des Kernforschungszentrums Karlsruhe

In den Abbn. 15 und 16 sind die monatlichen Plutoniumabgaben aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe in der Zeit von Juli 1973 bis Juli 1979 angegeben. In Tab. 3 sind die jährlich abgegebenen Pu-239+240- und Pu-238-Aktivitäten wiedergegeben. In Tab. 4 ist das Isotopenverhältnis Pu-238/Pu-239+240 in den jährlich abgegebenen Abwasseraktivitäten angegeben.

| Probenentnahmestelle | Konzentration in fCi/g Tr. |            | Verhältnis<br>Pu-238 /<br>Pu-239+240 |
|----------------------|----------------------------|------------|--------------------------------------|
|                      | Pu-238                     | Pu-239+240 |                                      |
| 1 M*                 | 30                         | 80         | 0,38                                 |
| 2 M                  | 35                         | 81         | 0,43                                 |
| 3 M                  | 21                         | 53         | 0,40                                 |
| 4 M                  | 40                         | 91         | 0,44                                 |
| 5 L                  | 27                         | 66         | 0,41                                 |
| 5 M                  | 35                         | 79         | 0,44                                 |
| 5 R                  | 20                         | 44         | 0,45                                 |
| 6 L                  | 54                         | 102        | 0,53                                 |
| 6 M                  | 39                         | 80         | 0,49                                 |
| 6 R                  | 27                         | 54         | 0,50                                 |
| 7 L                  | 28                         | 67         | 0,42                                 |
| 7 M                  | 29                         | 64         | 0,45                                 |
| 7 R                  | 41                         | 76         | 0,54                                 |
| 8 L                  | 20                         | 54         | 0,37                                 |
| 8 M                  | 18                         | 55         | 0,33                                 |
| 8 R                  | 27                         | 77         | 0,35                                 |
| 9 L                  | 30                         | 66         | 0,45                                 |
| 9 M                  | 38                         | 65         | 0,58                                 |
| 9 R                  | 48                         | 98         | 0,49                                 |
| 11 M                 | 22                         | 72         | 0,31                                 |
| 15 M                 | 39                         | 99         | 0,39                                 |
| 17 M                 | 29                         | 78         | 0,37                                 |
| 19 M                 | 6                          | 17         | 0,35                                 |
| 20 M                 | 10                         | 31         | 0,32                                 |

\*M, L, R ... Mitte, links, rechts

Tab. 2: Pu-238- und Pu-239+240-Konzentrationen in der tiefsten Sedimentschicht und Isotopenverhältnis Pu-238/Pu239+240

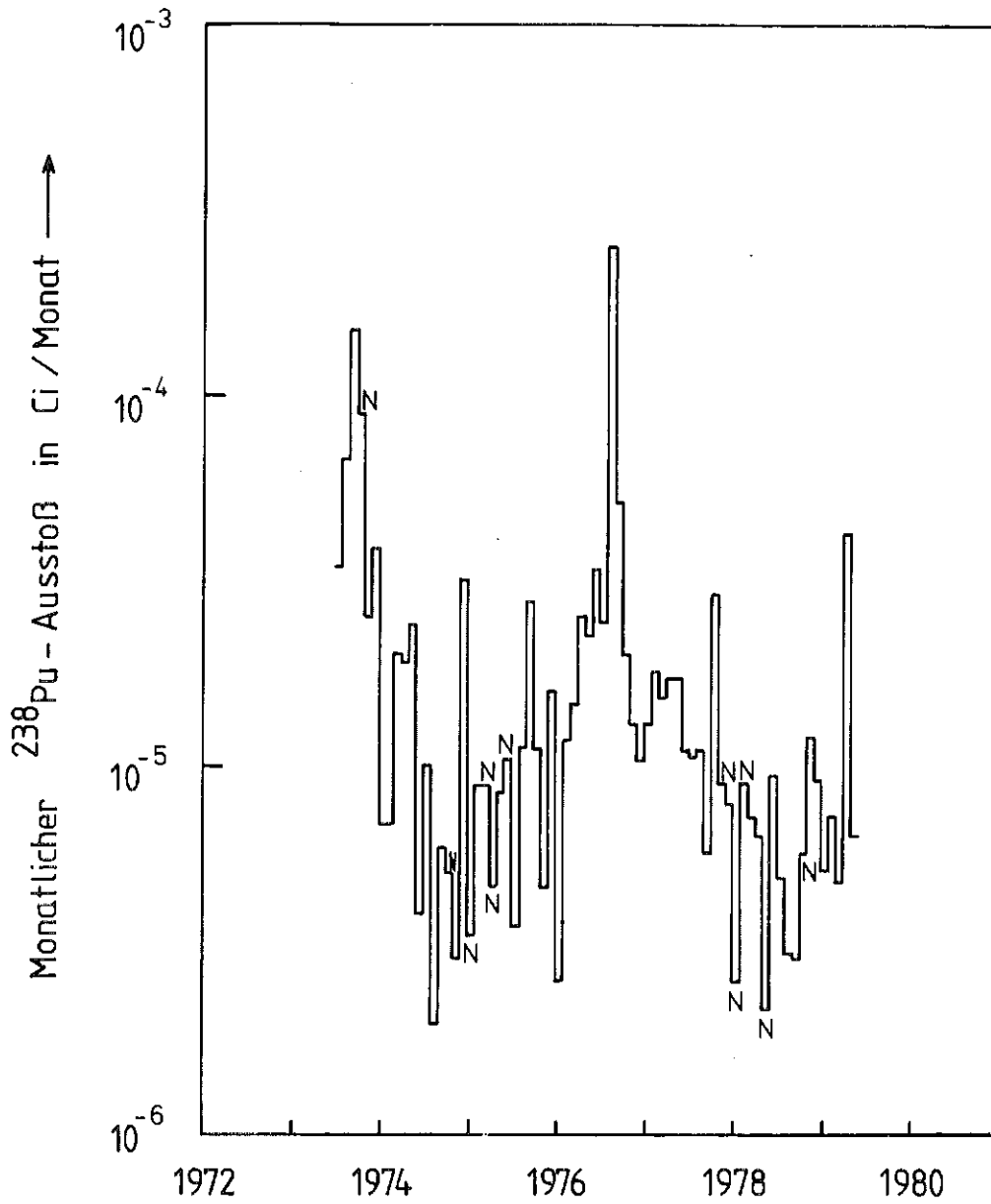


Abb. 15: Monatlicher <sup>238</sup>Pu-Ausstoß mit dem Abwasser des Kernforschungszentrums Karlsruhe ab Juni 1973. N = Nachweisgrenze.

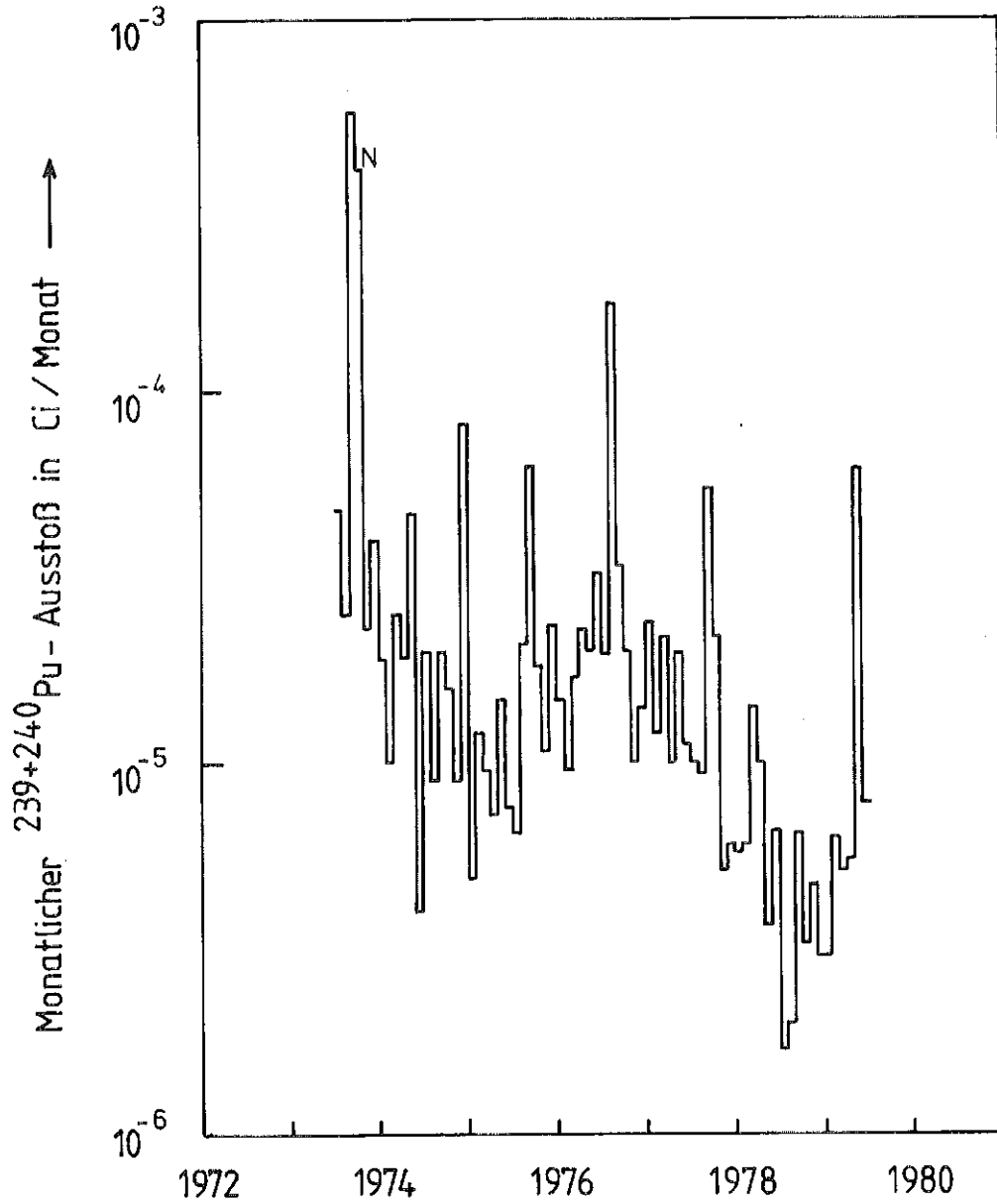


Abb. 16: Monatlicher  $^{239+240}\text{Pu}$ -Ausstoß mit dem Abwasser des Kernforschungszentrums Karlsruhe ab Juni 1973. N = Nachweisgrenze.

| Kalenderjahr | Aktivitätsemission in mCi/a |            |
|--------------|-----------------------------|------------|
|              | Pu-238                      | Pu-239+240 |
| 1973*        | 0,37                        | 1,09       |
| 1974         | 0,14                        | 0,28       |
| 1975         | 0,13                        | 0,21       |
| 1976         | 0,49                        | 0,37       |
| 1977         | 0,16                        | 0,21       |
| 1978         | 0,07                        | 0,07       |
| 1979**       | 0,07                        | 0,08       |
| Summe        | 1,43                        | 2,31       |

\*Vorliegende Werte: Juli - Dezember

\*\*Vorliegende Werte: Januar - Juni

Tab. 3: Pu-239+240- und Pu-238-Abgabe mit dem Abwasser aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe

| Jahr       | Pu-238 / Pu-239+240 |
|------------|---------------------|
| 1973       | 0,34                |
| 1974       | 0,50                |
| 1975       | 0,59                |
| 1976       | 1,32                |
| 1977       | 0,79                |
| 1978       | 1,07                |
| 1979       | 0,80                |
| Mittelwert | 0,62                |

Tab. 4: Das Isotopenverhältnis Pu-238/Pu-239+240 im mit dem Abwasser des Kernforschungszentrums Karlsruhe emittierten Plutonium

## 4. DISKUSSION DER ERGEBNISSE

### 4.1 Die Vorversuche

Beim Vorversuch 1 wurden Sedimentproben der ersten 2 km untersucht. Nach 1 km ist die Kontamination der Sedimente praktisch auf den Untergrund abgesunken. Beim Vorversuch 2 wurden Proben über 23 km des Altrheins genommen. Auch hier zeigt sich nach 1 km eine starke Reduktion der Plutoniumkontamination. Dann folgt ein weiterer sehr hoher Peak und nach 3,5 km ist die Kontamination wieder in den Bereich des Untergrundes abgefallen. Sie steigt dann bis etwa 10 km wieder an, um bei 12 km abermals einen sehr kleinen Wert einzunehmen. Die Kontamination des Altrheins bleibt bis zu dessen Mündung in den Rhein wesentlich über dem Untergrund; das Verhältnis Pu-238/Pu-239+240 zeigt ebenfalls die Herkunft des Plutoniums aus einer Wiederaufarbeitungsanlage an. Die starken Einschnitte im Konzentrationsprofil wurden identifiziert als Einengungen des Altrheins bzw. als Stellen nach der Einmündung von Zuflüssen (siehe Abb. 3).

Wegen der wesentlich höheren Kontamination auf den ersten 3,5 km wurde entschieden, über diesen Bereich ein dichtes Probenahmernetz zu legen und die Verteilung der Plutoniumkontamination in diesem Teil des Altrheins zu studieren.

### 4.2 Die Messung der Plutoniumkontamination der Sedimente im Linkenheimer Altrhein

Die ersten 3,5 km des Altrheins nach der Einleitung von Abwässern des Kernforschungszentrums Karlsruhe heißen Linkenheimer Altrhein. Die Lage der Probenahmestellen ist aus Abb. 4 zu entnehmen. In den Abbn. 5 bis 10 sind die Plutoniumkonzentrationen der obersten Sedimentschicht im Linkenheimer Altrhein angegeben.

#### 4.2.1 Die Plutoniumverteilung in den Querprofilen

Die Plutoniumverteilungen in den Querprofilen kann man in drei Gruppen teilen. An den Probenahmepositionen 1, 2, 5 und 10 mißt man eine Erhöhung der Plutoniumkontamination in der Mitte. An den Positionen 3, 4, 6, 7, 8 und 9 ist ein Doppelmaximum, wenn auch in einzelnen Fällen nur andeutungsweise, zu erkennen. Eine Gleichverteilung der Kontamination über die Querprofile kann bei den Probenahmepositionen 11 bis 23 beobachtet werden.

Ganz allgemein entsteht der Eindruck, als würde eine Gleichverteilung oder ein Einzelmaximum dann vorliegen, wenn der Fluß sich in der Mitte des Flußbettes befindet oder das gesamte Flußbett bedeckt. Die Doppelmaxima liegen im Teil zwischen den Positionen 3 und 9. Bis etwa 6 macht der Rheine eine starke Linkskurve, und in dieser Linkskurve liegt der tiefste Teil des Flusses am rechten Rand. Dies kann auch in der folgenden geraden Strecke bis etwa 9 beobachtet werden. An dieser tiefsten Stelle liegt das eine der Doppelmaxima, das andere liegt auf der Innenseite, auf der mehr oder weniger breite Schlammränder abgelagert worden sind.

Die Abhängigkeit der Plutoniumverteilung in den Querprofilen von den anderen im Fluß gemessenen Parametern ist von untergeordneter Bedeutung. Die Flußtiefe liegt bis zur Position 10 im Bereich von 40 bis 120 cm. Neben der bereits erwähnten höchsten Konzentration an den tiefsten Stellen gibt es an einer Reihe von Positionen auch gegenteilige Feststellungen. Zwischen 11 und 19 liegt die Flußtiefe praktisch über die gesamte Flußbreite zwischen 50 und 70 cm. Zwischen 20 und 23 ist die Flußtiefe auf 100 bis 150 cm angestiegen. Eventuell besteht eine Beziehung zwischen Gleichverteilung der Plutoniumkontamination in den Querprofilen und der konstanten Flußtiefe über diese Profile.

Die Schlammhöhe ist über die Querprofile nicht konstant. Ein starker Hinweis auf eine umgekehrt proportionale Beziehung zwischen Plutoniumkontamination und Schlammhöhe wird bereits hier aufgezeigt. Der Zusammenhang wird unten in Abb. 25 wiedergegeben. Das Isotopenverhältnis Pu-238/Pu-239+240 ist über die gesamte Breite der Querprofile konstant.

An den Positionen 4 und 6 an der Stelle der extrem niedrigen Kontaminationsminima wurden auch abweichend kleine Werte für die Isotopenverteilung gefunden. Da eine kleine Isotopenverteilung nach der Tab. 4 den Abwasserausstößen der Jahre vor 1976 zuzuordnen ist, muß an den beiden genannten Stellen eine Abschirmung oder eine Abtragung erfolgt sein. Bei Position 4 ist eine solche Abschirmung durch eine direkt vorgelagerte Schlammbank offensichtlich.

Die Flächenkontamination in  $\text{nCi/m}^2$  und die Massenkontamination in  $\text{fCi/g}$  sind in den Abbn. 17 und 18 gegenübergestellt. Eine vollständige Übertragung der experimentell gefundenen Werte  $\text{fCi/g}$  in  $\text{nCi/m}^2$  - eine Dimension, die für die Depositionsprozesse anschaulicher ist - ist nicht notwendig, da Maxima und Minima und die Gesamtverteilung in beiden Dimensionen sehr ähnlich sind.

#### 4.2.2 Die Plutoniumverteilung in den Tiefenprofilen

An der Probenahmeposition 8 wurden drei Tiefenprofile, linkes Ufer, Mitte und rechtes Ufer, aufgenommen. Die Plutoniumkonzentration in den jeweiligen 10 cm-Schichten wurde bis zu 70 cm Tiefe gemessen. Die Ergebnisse sind in Abb. 14 dargestellt. Die Plutoniumkontamination nimmt in allen Fällen von oben nach unten leicht ab. Die Konzentrationen an der Oberfläche sind um den Faktor 2 bis 6 größer als die Konzentrationen in 70 cm Tiefe, wenn die Konzentrationsangabe in  $\text{fCi/g Tr.}$  erfolgt. Beim Vergleich der Konzentrationen in  $\text{pCi/l Sediment}$  ist zwischen den oben und unten gemessenen Konzentrationen ein Faktor von 1 bis 2,5 festgestellt worden.

Da es überraschend ist, daß Plutoniumkontaminationen bis zu dieser Tiefe gefunden werden, wurde zuerst vermutet, daß die Technik der Probenahme nicht geeignet ist, um Tiefenprofile aufzunehmen. Gegen diese Annahme sprechen aber die Veränderung der Sedimentdichte und vor allem die Veränderungen im Isotopenverhältnis  $\text{Pu-238/Pu-239+240}$  über den Tiefenprofilen. Die umgekehrt proportionale Beziehung von Schlamm-dichte und Plutoniumkonzentration wurde auch bei den Tiefenprofilen festgestellt.



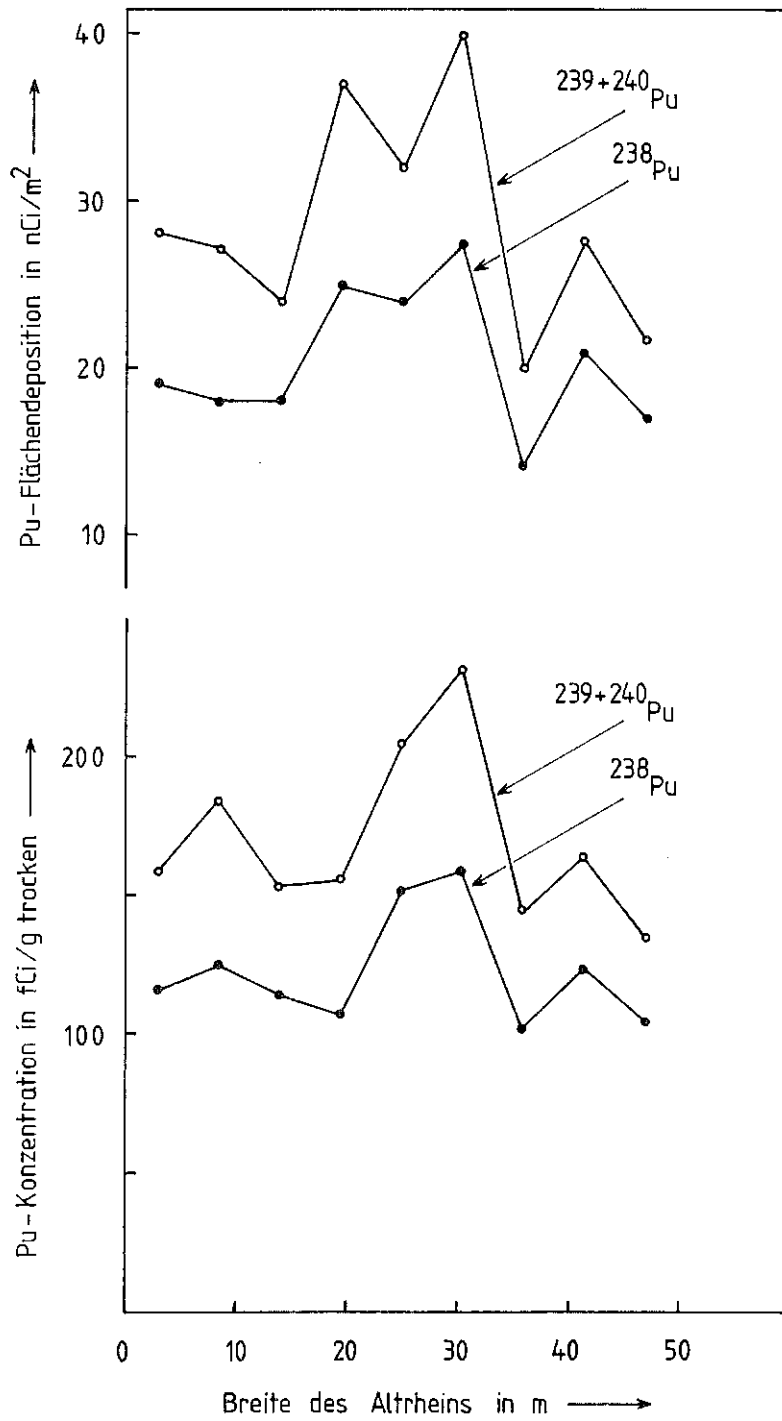


Abb. 17: Pu-Kontamination und - Flächendeposition an der Probenahme - Position 7. Querprofil

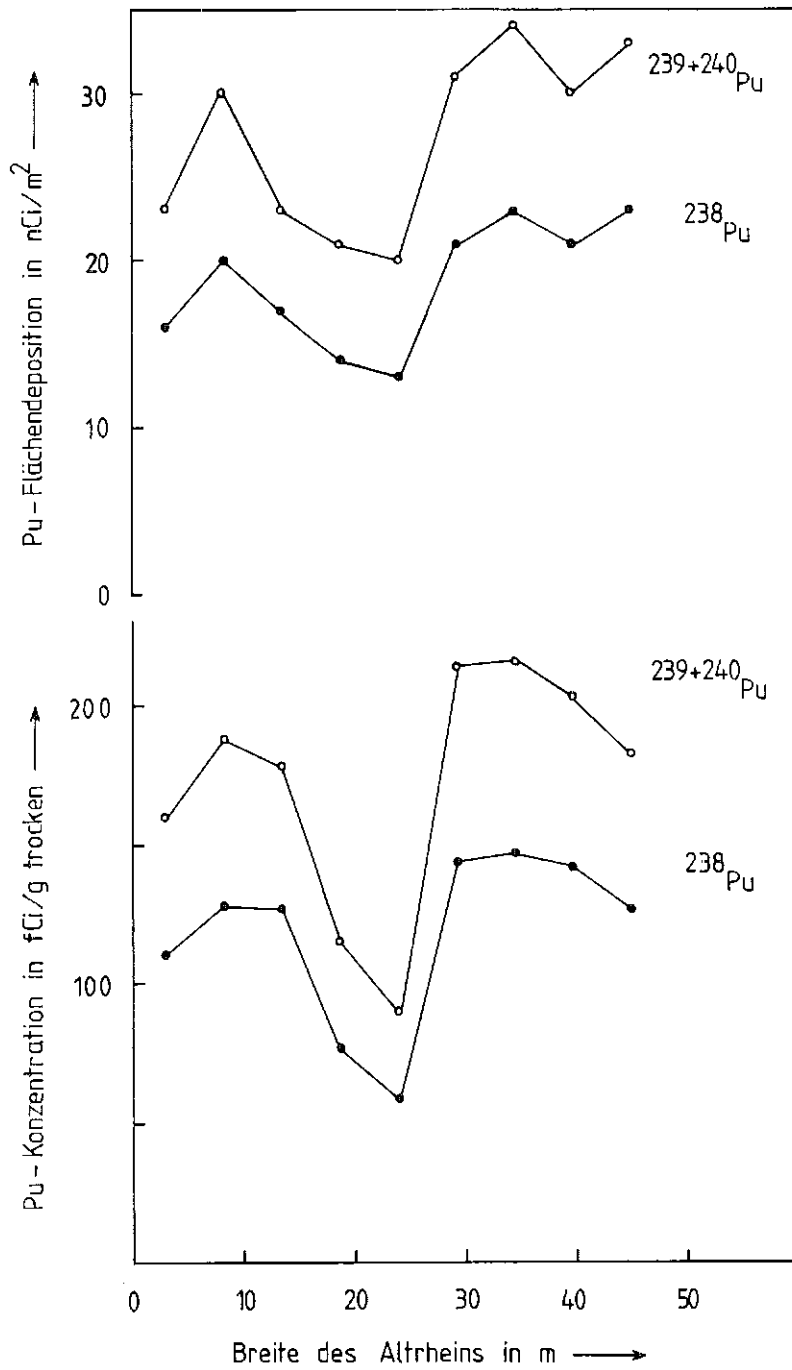


Abb. 18: Pu-Kontamination und -Flächendeposition an der Probenahme - Position 8. Querprofil.

Das Isotopenverhältnis Pu-238/Pu-239+240 weist im Tiefenprofil am rechten Ufer der Probenahme-position 8 zwei signifikante Abweichungen in 10 bis 20 cm und in 50 bis 60 cm Tiefe auf. Ein großer Teil der anderen Isotopenverhältnisse hat wegen der niedrigen Plutoniumkonzentrationen, die an dieser Stelle gemessen wurden, hohe Standardabweichungen. Bei den Tiefenprofilen am linken Ufer und in der Mitte liegt der Wert 0,64 an der Oberfläche wesentlich über allen Werten, die in größeren Tiefen gemessen wurden (Tab. 1). Um diese Abweichungen der Isotopenverhältnisse zu verstehen, müssen folgende Zusammenhänge bekannt sein: Die Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe ist verantwortlich für praktisch die gesamte Aktivitätsabgabe aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe. Das Isotopenverhältnis im Abwasser des Kernforschungszentrums Karlsruhe steht daher in enger Beziehung zum Isotopenverhältnis im aufgearbeiteten Brennstoff der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe. Obwohl nennenswerte Verzögerungen zwischen Auflösung und Freisetzung angenommen werden müssen und auf diesem Weg wesentliche Vermischungen mit früher aufgearbeitetem Plutonium erfolgen, kann aus Tab. 5 entnommen werden, daß bis 1976 nur Brennstoff mit relativ niedrigem Abbrand verarbeitet wurde. Dies bedeutet, daß das Pu-238/Pu-239+240-Verhältnis relativ klein war. Zwischen 1976 und 1978 wurden Brennstoffe mit hohen Abbränden und daher mit hohen Isotopenverhältnissen aufgearbeitet. Aus Tab. 4 geht hervor, daß bis 1975 das Isotopenverhältnis im Abwasser des Kernforschungszentrums Karlsruhe maximal 0,59 betrug. 1976, 1977 und 1978 liegen die Werte zwischen 0,79 und 1,32 und im Jahre 1979 sinkt das Isotopenverhältnis wieder auf 0,80. Dieser Verlauf entspricht im wesentlichen den Erwartungen nach Tab. 5. Zusätzlich kann aus Tab. 3 entnommen werden, daß 1973 - obwohl nur die Daten für ein halbes Jahr zur Verfügung stehen - mehr als zehnmal soviel Plutonium emittiert wurde als in den Jahren 1978 und 1979. Für die Gesamtemission aus dem Kernforschungszentrum errechnet man unter den angegebenen Bedingungen ein Verhältnis Pu-238/Pu-239+240 von 0,62. Da sowohl die Brennstoffmengen als auch die Abbrände, welche zwischen 1971 - dem Jahr der Inbetriebnahme der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe - und 1973, dem Beginn der Abwassermessungen, relativ klein war, muß angenommen werden, daß die früher emittierten Plutoniumaktivitäten relativ niedrige Isotopenverhältnisse hatten. In der Zeit vor 1971 dürften die Emissionen von Plutonium aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe vernachlässigbar klein gewesen sein.

| Aufarbeitung<br>von bis | Name der<br>Kampagne | Brennstoff-<br>menge in t | Abbrand<br>in MWd/t |
|-------------------------|----------------------|---------------------------|---------------------|
| 9.71 - 11.71            | FR 2                 | 3,00                      | 8 500               |
| 12.71 - 2.72            | VAK I                | 1,00                      | 16 200              |
| 2.72 - 5.72             | KWO I                | 3,35                      | 15 800              |
| 10.72 - 6.73            | MZFR I               | 17,10                     | 4 900               |
| 10.74 - 1.75            | HDR                  | 7,00                      | 300                 |
| 1.75 - 2.75             | VAK II               | 1,50                      | 15 500              |
| 2.75 - 3.75             | MZFR II              | 6,00                      | 6 100               |
| 5.75 - 10.76            | KWO II               | 11,02                     | 24 500              |
| 10.76 - 2.77            | KRB II               | 10,95                     | 17 600              |
| 3.77 - 2.78             | KWO III              | 12,7                      | 28 900              |
| 3.78 - 6.78             | MZFR III             | 11,99                     | 6 900               |
| 5.79 - 7.79             | MZFR IV              | 8,16                      | 10 300              |

Tab. 5: Brennstoffmenge und Abbrand des Brennstoffes, der in der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe durchgesetzt wurde

Auf der Basis dieser Informationen lassen sich die Ergebnisse von Tab. 1 wie folgt interpretieren. Die oberste Schicht der Sedimente weist ein Isotopenverhältnis nahe dem mittleren Isotopenverhältnis der Gesamtemission von Plutonium aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe auf. alle tieferen Schichten weisen zum Teil wesentlich niedrigere Isotopenverhältnisse auf und die in der tiefsten Sedimentschicht gefundene Plutoniumaktivität weist ein Isotopenverhältnis von 0,36 und damit einen Wert sehr nahe an dem 1973 im Abwasser gemessenen auf.

Nimmt man an, daß die untersuchten Sedimente gemeinsam mit den Plutoniumschwebstoffen abgelagert wurden, so muß eine ungewöhnlich hohe Sedimentationsrate im Altrhein angenommen werden. Es muß erwartet werden, daß die untersuchten 70 cm Sediment innerhalb der letzten maximal acht Jahre abgelagert worden sind. Dies erscheint sehr unwahrscheinlich.

Eine andere Möglichkeit der Interpretation erscheint den Verfassern wesentlich wahrscheinlicher. Der Altrhein und seine Sedimente befanden sich bereits zur Inbetriebnahme der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe im Gleichgewicht. Dieses muß so verstanden werden, daß die Sedimente alle tieferen Schichten ausfüllten und die oberste Sedimentschicht durch Deposition und Resuspension einen Gleichgewichtszustand einnimmt. Unter diesen Umständen ist eine Deposition der Plutoniumschwebstoffe aus dem Altrhein auf der Oberfläche der Sedimentschicht anzunehmen. Hier wird sie zwar im geringen Maße durch Resuspension wieder aufgewirbelt und weitertransportiert; der wesentliche Teil sinkt aber langsam in den relativ dünnflüssigen Schllick ein. Die Kontamination der untersten Sedimentschichten ist also verursacht durch das Absinken der ältesten Plutoniumkontaminationen, die oberste Schicht ist eher gekennzeichnet durch die Plutoniumfreisetzungen der letzten Jahre.

Eine Aussage über den Anteil der Resuspension am Plutoniumtransport im Altrhein kann erhalten werden durch die Messung des Anteiles des Plutoniums, der noch im Altrhein vorhanden ist. Wäre die Resuspension von großer Bedeutung, dürfte nurmehr ein kleiner Bruchteil der insgesamt emittierten Plutoniumaktivität im Altrhein zu finden sein. Um diese Frage untersuchen zu können, müssen die an der Oberfläche der Schlamm-schicht gemessenen Plutoniumkonzentrationen herangezogen werden, um die gesamte Sedimentkontamination zu beurteilen. Multipliziert man die  $\mu\text{Ci/g}$  Trockensubstanz mit der Schlamm-dichte in  $\text{kg Trockensubstanz/l}$ , so erhält man die Kontamination des Schlammes in  $\mu\text{Ci/l}$ . Aus diesen Werten kann für die drei gemessenen Tiefenprofile eine mittlere Schlammkontamination für jede Position berechnet werden. Dividiert man diese Schlammkontamination durch die der Oberfläche, erhält man einen Faktor, der - angenommen, die Tiefenverteilung im Altrhein wäre auch an anderen Positionen ähnlich wie an der Probenahme-position 8 - eine Umrechnung des in der obersten Sedimentschicht gemessenen Plutoniumgehaltes auf den mittleren Gehalt der gesamten Sedimentschicht erlauben würde. Für Pu-238 wurde an der Probenahme-position 8 0,54 und für Pu-239+240 0,69 gemessen. Da erwartet wurde, daß die Tiefenverteilung von Plutonium nicht an allen Stellen im Altrhein gleich hoch sein würde, wurde an 24 Positionen aus der tiefsten Sedimentschicht je eine Probe genommen.

Von diesen Proben wurde die Schlammichte, die Konzentration von Pu-238 und Pu-239+240 und das Isotopenverhältnis bestimmt. Aus den Konzentrationen dieser Werte in pCi/l Sediment und den an der Oberfläche gemessenen Werten in pCi/l Sediment wurden entsprechend der monotonen Abnahme, wie sie in Abb. 14 wiedergegeben ist, Mittelwerte der Sedimentkontamination durch Bildung des Mittelwertes der beiden Zahlen berechnet. Das Verhältnis dieses Wertes zur Schlammkontamination an der Oberfläche wurde getrennt für Pu-238 und Pu-239+240 in Tab. 6 angegeben. Aus den erhaltenen Ergebnissen wurde für Pu-238  $0,9 \pm 0,3$  und für Pu-239+240  $1,1 \pm 0,3$  berechnet.

Aus diesen Faktoren geht im wesentlichen hervor, daß die Plutoniumkontamination über die Tiefe weitgehend konstant ist. Rechnet man also mit der Kontamination der obersten Schicht für die gesamte Tiefe der Sedimente, so macht man bei einer  $2\sigma$ -Genauigkeit etwa einen Fehler von einem Faktor 1,5. Starke Abweichungen mit hohen Plutoniumkontaminationen in tiefen Schichten wurden an den bereits mehrfach erwähnten Minima der Positionen 4 und 6 gemessen. Die Verhältnisse der mittleren zur Oberflächenkontamination der Sedimente sind in 23 von 24 Fällen für Pu-238 kleiner als für Pu-239+240. Dies bedeutet, daß die Plutoniumkontamination in mittlerer Tiefe bei Pu-239+240, verglichen mit der der Oberfläche, relativ höher ist als bei Pu-238. Auch dies entspricht der Vorstellung, daß in früheren Jahren vor allem Pu-239 deponiert wurde und dann in die Tiefe wanderte. Die hohen Pu-238-Emissionen erfolgten erst später und kontaminieren daher zur Zeit bevorzugt obere Schichten.

Da die gemessenen Faktoren der Tiefenverteilung von Plutonium zwischen 0,9 und 1,1 anzusetzen sind bei einem  $2\sigma$ -Fehler von  $\pm 0,6$ , wird bei der zukünftigen Berechnung der Gesamtdeposition von Plutonium in den Sedimenten aus den Oberflächenkontaminationen eine Gleichverteilung über die Tiefe angenommen.

| Probenahmestelle | Verhältnis der mittleren zur Oberflächenkontamination der Sedimente<br>in $(\text{pCi/l})_m : (\text{pCi/l})_0$ |            |
|------------------|---|------------|
|                  | Pu-238  | Pu-239+240 |
| 1 M              | 0,99  | 1,03       |
| 2 M              | 0,66  | 0,87       |
| 3 M              | 0,61  | 0,70       |
| 4 M              | 3,80*   | 4,60*      |
| 5 M              | 0,88  | 1,08       |
| 5 M              | 1,03  | 1,16       |
| 5 R              | 0,87  | 1,00       |
| 6 L              | 1,49  | 1,59       |
| 6 M              | 1,64  | 1,96       |
| 6 R              | 1,24  | 0,91       |
| 7 L              | 0,76  | 0,92       |
| 7 M              | 0,67  | 0,79       |
| 7 R              | 0,79  | 0,92       |
| 8 L              | 0,67  | 0,81       |
| 8 M              | 0,70  | 0,90       |
| 8 R              | 0,65  | 0,80       |
| 9 L              | 0,84  | 0,96       |
| 9 M              | 1,00  | 1,00       |
| 9 R              | 1,15  | 1,24       |
| 11 M             | 0,71  | 0,93       |
| 15 M             | 1,20  | 1,49       |
| 17 M             | 1,04  | 1,30       |
| 19 M             | 0,68  | 0,79       |
| 20 M             | 0,75  | 0,96       |
| Mittelwerte      | 0,9 ± 0,3   | 1,1 ± 0,3  |

\*nicht zur Mittelwertbildung verwendet

Tab. 6: Verhältnis der mittleren Plutoniumkontamination in pCi/l Sediment zu der Oberflächenkontamination in pCi/l Sediment

#### 4.2.3 Die Plutoniumverteilung in den Längsprofilen

In den Abb. 11 bis 13 sind die Längsprofile der Plutoniumkontamination vom linken Ufer, der Mitte und vom rechten Ufer des Altrheins dargestellt. Die Dimension der Plutoniumkontamination ist fCi/g Trockensubstanz. Da für Depositionsprozesse die Dimension nCi/m<sup>2</sup> geeigneter erschien, wurden die entsprechenden Ergebnisse auf diese Dimension umgerechnet. Die Plutoniumkonzentration bezogen auf das g Trockengewicht wurde mit der Schlamm-dichte, der Schlammtiefe und dem Faktor 100 multipliziert. Die erhaltenen Ergebnisse sind im wesentlichen proportional zu den in Abb. 11 bis 13 dargestellten, da die Schlamm-dichte und die Schlammtiefe in einem sehr engen Bereich schwanken. In Abb. 19 wird die mittlere Plutoniumkontamination über die einzelnen Querprofile einmal in fCi/g und einmal in nCi/m<sup>2</sup> aufgetragen. Da die Kurven einen nahezu gleichen Verlauf nehmen, wurde auf die Wiedergabe der Profile vom linken und rechten Altrheinufer und von der Mitte in dieser Dimension verzichtet.

Multipliziert man die Plutoniumkontamination in nCi/m<sup>2</sup> mit der Breite des Flusses, erhält man eine andere Möglichkeit der Darstellung der Plutoniumkontamination. Die so erhaltenen Ergebnisse sind ebenfalls proportional der gemessenen Pu-Konzentration in fCi/g trocken. Wie aus Abb. 20 hervorgeht, sind die Werte relativ zueinander stark verändert. Die Lage der Maxima und Minima ist allerdings auch hier gleich geblieben, da bei größter Breite die größte Kontamination erfolgt und daher das Maximum der Kontamination in fCi/g mit dem Maximum der Breite in m zusammenfällt.

Zusätzlich zu dem Längsprofil bis zu 3,5 km flußabwärts wurden Schlammproben flußaufwärts bis zu 1,5 km genommen. Die Ergebnisse sind in der Tab. 7 dargestellt. Wie aus Tab. 7 hervorgeht, nimmt die Plutoniumkontamination flußaufwärts mit dem Abstand von der Einleitungsstelle des KfK-Abwassers ab; das Verhältnis Pu-238/Pu-239+240 wird gleichzeitig immer kleiner und erreicht bei 0,5 km den Wert 0,15. Da im Fallout der Kernwaffenexperimente dieses Isotopenverhältnis 0,05 beträgt, muß selbst im Abstand 500 m flußaufwärts von der Abwassereinleitungsstelle eine



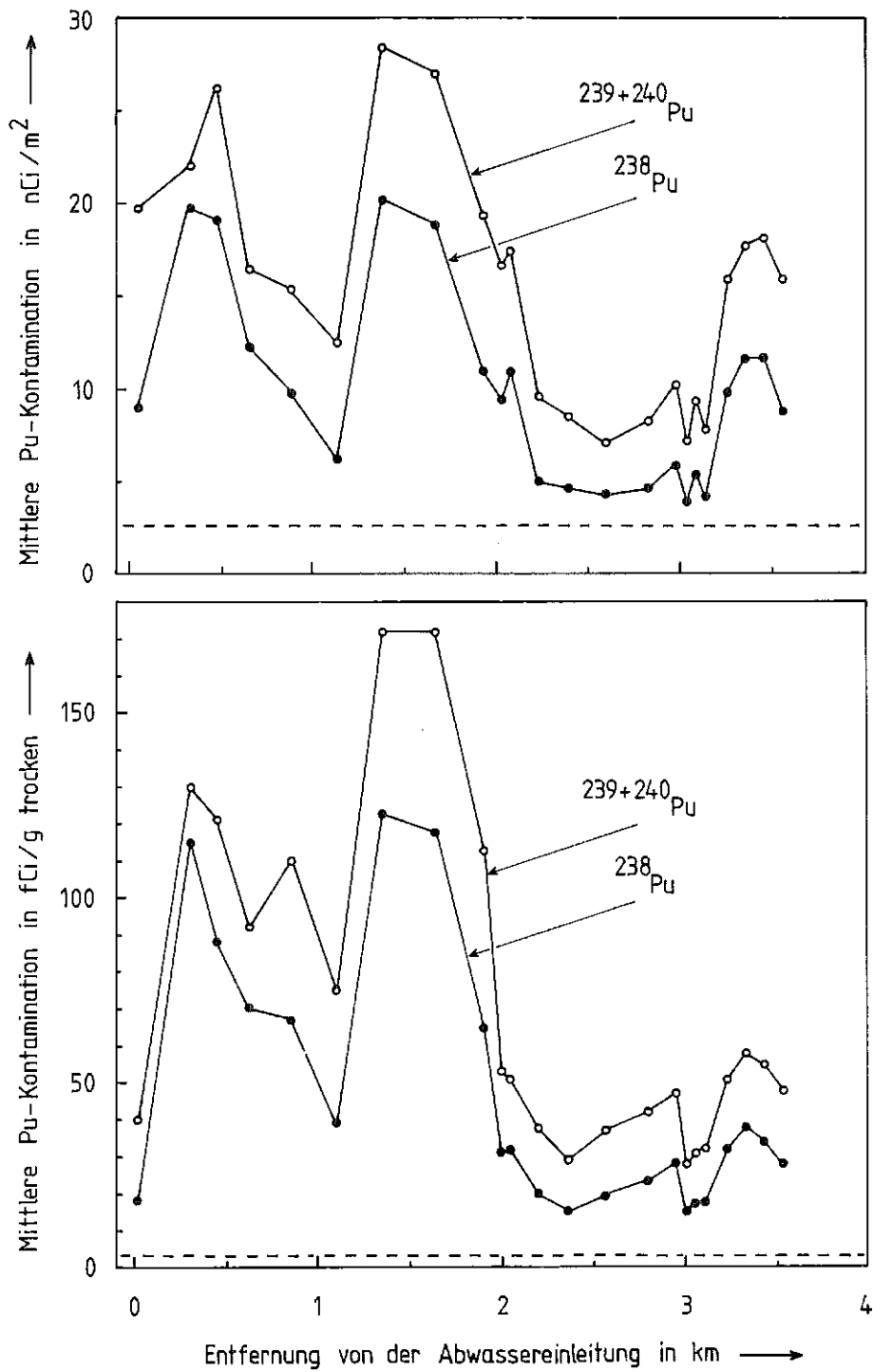


Abb. 19: Plutoniumkontamination im Linkenheimer Altrhein. --- Untergrund des Kernwaffenfallouts.

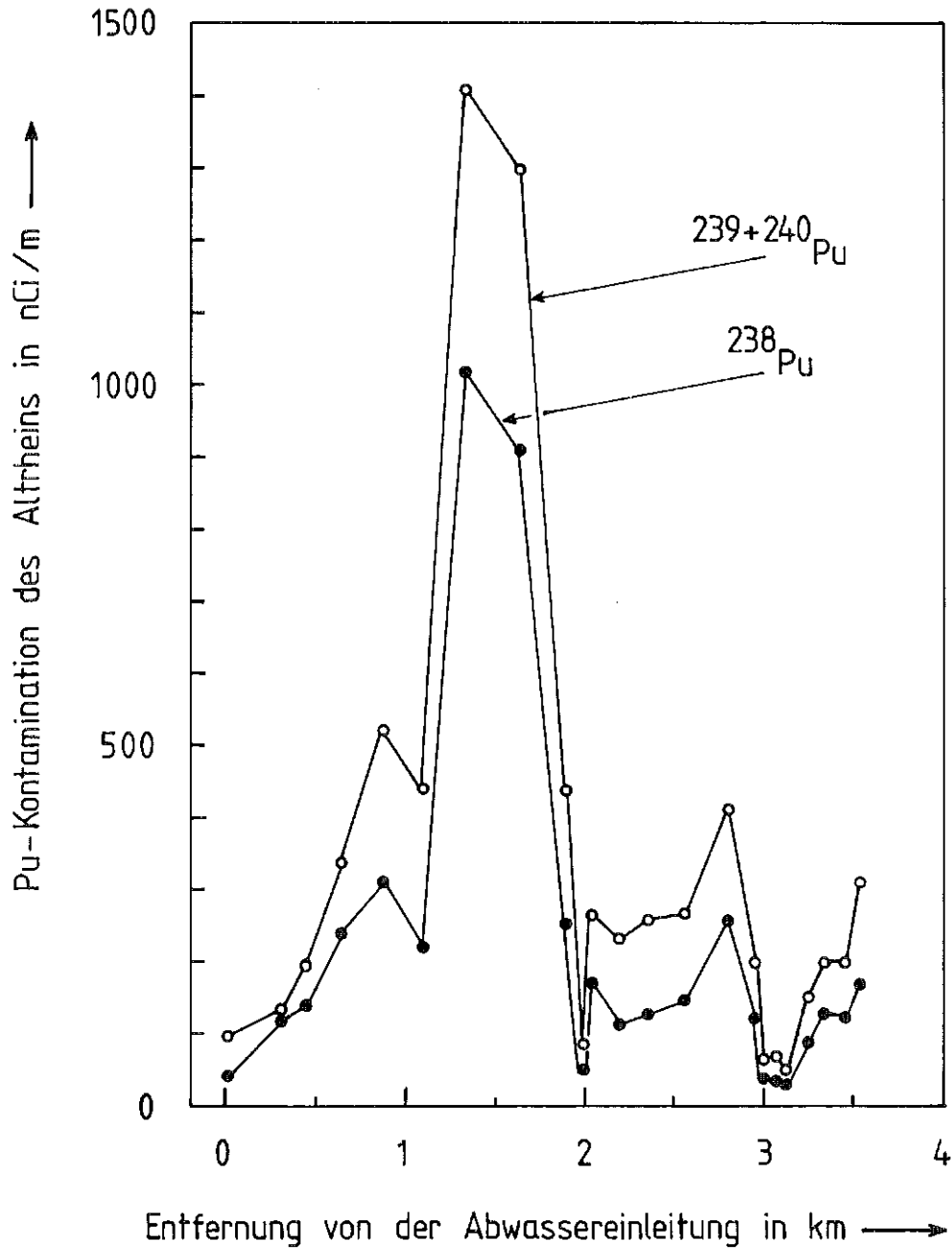


Abb. 20: Plutoniumkontamination im Linkenheimer Altrhein in nCi/m Flußlänge

Kontamination durch das Plutonium der Wiederaufarbeitungsanlage angenommen werden. Die Ursache für diese Kontamination ist ein dann auftretender Rückstau im Altrhein, wenn der Rhein selbst Hochwasser führt und über die offenen Schleusen in den Altrhein drückt.

| Probenahme-<br>position,<br>flußaufwärts | Plutoniumkontamination<br>in fCi/g Tr. |            | Verhältnis<br>Pu-238 /<br>Pu-239+240 |
|--|--|------------|--------------------------------------|
|  | Pu-238                                 | Pu-239+240 |                                      |
| 0  | 122                                    | 173        | 0,71                                 |
| 100                                      | 48                                     | 74         | 0,65                                 |
| 200                                      | 52                                     | 88         | 0,59                                 |
| 300                                      | 18                                     | 35         | 0,51                                 |
| 400                                      | 4                                      | 16         | 0,25                                 |
| 500                                      | 2                                      | 13         | 0,15                                 |
| 1 500                                    | ≤ 0,1                                  | 0,3        | -                                    |

Tab. 7: Die Plutoniumkontamination in den Sedimenten, flußaufwärts von der Abwassereinleitungsstelle

Der Verlauf der Plutoniumkontamination entlang dem Linkenheimer Altrhein ist aus Abbn. 19 und 20 zu entnehmen. Durch eine Verengung bei der Position 10 und eine andere Verengung bei der Position 17 wird der Linkenheimer Altrhein in zwei Teile geteilt. Bei Auswertung der später erhaltenen Luftaufnahmen dieses Raumes wurden zwei weitere Verengungen zwischen den Probenahme-positionen 3 und 4 und durch eine Schlamm-bank zwischen 5 und 6 festgestellt. Die Verengungen stellen die wichtigsten Einfluß-faktoren für den Verlauf der Kontamination im Altrhein dar. Die in den Abbn. 19 und 20 angegebenen Plutoniumkontaminationen berücksichtigen ausschließlich die Sedimentschicht unter der Wasseroberfläche. Zieht man auch die Schlamm-bänke in die Beurteilung ein, so sind die pro lau-fendem Flußmeter angegebenen Plutoniumaktivitäten, vor allem bei dem

Peak im ersten Kilometer und beim Peak im dritten Kilometer, nennenswert zu erhöhen. In diesem Bereich, der erste Teil umfaßt eine langgezogene Linkskurve, befinden sich breite Schlammflächen an einem oder an beiden Ufern.

Die Sedimentation zwischen den einzelnen Verengungen des Altrheins wird hauptsächlich bestimmt durch die Breite des Flusses und damit durch die Flußgeschwindigkeit. Geht man davon aus, daß der Wasserdurchsatz an jeder Stelle gleich groß ist, kann man aus den gemessenen Wassertiefen und -breiten des Altrheins die jeweilige Fließgeschwindigkeit an den einzelnen Probenahmepositionen berechnen. Diese Fließgeschwindigkeit ist in Abhängigkeit von der Probenahmeposition in Abb. 21 wiedergegeben. Da die Fließgeschwindigkeit umgekehrt proportional zur Breite, zur Schlammmenge pro Flußmeter und zur Verweilzeit über einen gegebenen Sedimentiererraum ist, wird auf die Darstellung von Abhängigkeiten von diesen Parametern verzichtet.

Neben der Unterteilung des Linkenheimer Altrheins in einzelne Sedimentierbecken durch die genannten Verengungen und dem Einfluß der Fließgeschwindigkeit des Wassers ist als letzter Faktor die Abnahme der Sedimentationsrate entlang dem Linkenheimer Altrhein zu nennen. Grund dafür dürfte sein, daß in jedem der aufeinanderfolgenden Sedimentierbecken nurmehr kleinere Mengen an plutoniumhaltigen Schwebstoffen zur Verfügung stehen und wegen der Ablagerung der schwereren Teilchen relativ bald nach der Einleitung des Abwassers in den späteren Sedimentierräumen flußabwärts nurmehr feinere Schwebstoffe als Plutoniumträger zur Verfügung stehen.

Die hohe Fließgeschwindigkeit bei km 2 und km 3 schließen jeweils einen Sedimentationsraum ab. Hier liegen die genannten starken Verengungen. Die Kontamination im ersten Kilometer des Linkenheimer Altrheins (siehe Abb. 22) ist aber aus dem Verlauf der Fließgeschwindigkeit nicht verständlich. Es sei nochmals erinnert, daß erst bei Auswertung von Luftaufnahmen zwei weitere Verengungen im Altrhein festgestellt wurden. So waren an diesen Stellen keine Proben genommen worden. Es darf aber er-

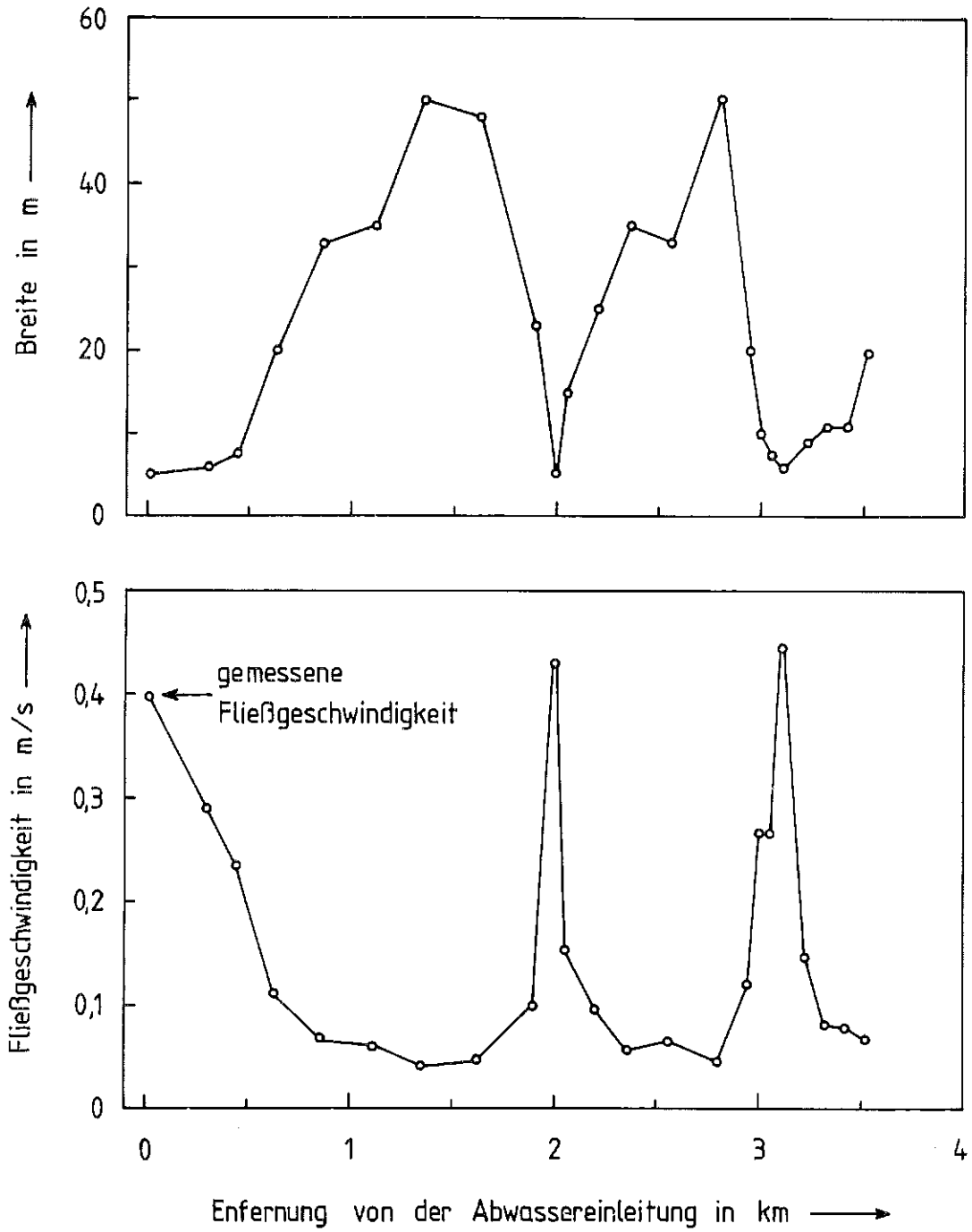


Abb. 21: Breite und berechnete Fließgeschwindigkeit im Linkenheimer Altrhein. Bei der Abwassereinleitung wurde die Fließgeschwindigkeit gemessen und daraus und den anderen Tiefenprofilen die anderen berechnet.

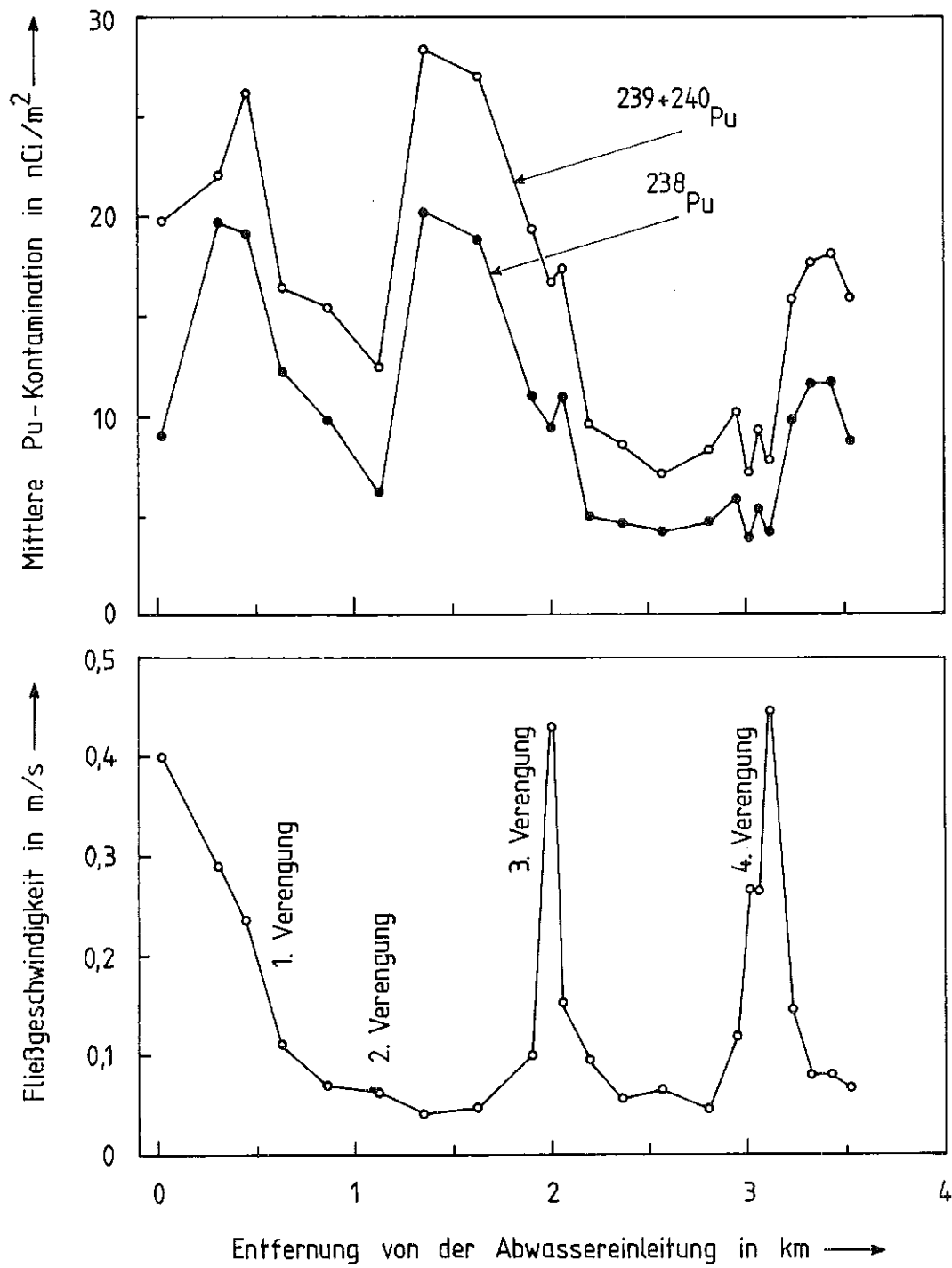


Abb. 22: Vergleich der Pu-Deposition im Linkenheimer Altrhein mit den Fließgeschwindigkeiten.

wartet werden, daß auch an diesen beiden Plätzen erhöhte Flußgeschwindigkeiten vorliegen und daher auch das Minimum bei km 1,1 und das ange deutete Minimum bei km 0,6 verständlich werden. Trägt man allerdings die Pu-239+240-Deposition in nCi/m<sup>2</sup> in Abhängigkeit von der Flußgeschwindigkeit im doppeltlogarithmischen System auf, erhält man nicht eine Gerade mit einer negativen Steigung von 45°, sondern für die Probenahmepositionen 1 bis 11 und für die Probenahmepositionen 12 bis 19 je einen starken Hinweis, daß die Pu-239+240-Deposition unabhängig von der Fließgeschwindigkeit ist. Einen ähnlichen Zusammenhang, wie er in Abb. 23 wiedergegeben ist, erhält man auch, wenn man die Daten für Pu-238 in Abhängigkeit von der Fließgeschwindigkeit aufträgt. Würde sich diese Erkenntnis bei weiteren Untersuchungen erhärten, müßte akzeptiert werden, daß die Resuspension einen nennenswerten Einfluß auf den Mechanismus der Kontamination eines langsamfließenden Gewässers hat.

Die mittlere Sedimentdichte wird in Abb. 24 der Fließgeschwindigkeit gegenübergestellt. Wie aus Abb. 24 zu entnehmen ist, befinden sich die höchsten Sedimentdichten an den Positionen höchster Flußgeschwindigkeit. Auch hier gelten wieder Einschränkungen zwischen den Probenahmepositionen 3 und 4 und zwischen 5 und 6.

Wenn die Sedimentdichte und die Fließgeschwindigkeit einander proportional sind, besteht selbstverständlich eine umgekehrt proportionale Beziehung zur Plutoniumkontamination. Dies bedeutet, daß die niedrigsten Sedimentdichten im Bereich der höchsten Plutoniumkontaminationen liegen müßten. Um dies zu überprüfen, wurden in Abb. 25 alle untersuchten Sedimentproben nach Kontamination in fCi/g und der Sedimentdichte in kg Tr./l aufgetragen. Wie aus Abb. 25 hervorgeht, nimmt die Plutoniumkontamination mit wachsender Dichte rasch ab. Eine Interpretation dieses Sachverhaltes kann zum gegebenen Zeitpunkt nur vorläufigen Charakter haben. Geht man davon aus, daß die geringe Dichte von Sedimenten mit der Feinkörnigkeit der sie aufbauenden Teilchen zusammenhängt, dann muß angenommen werden, daß im Bereich geringer Fließgeschwindigkeiten feinkörnige Teilchen sedimentiert werden. Da dies auch für plutoniumtragende Teilchen gelten müßte, muß angenommen werden, daß entweder das Plutonium an den feinen Teilchen der Schwebstoffe in höherer spezifischer Aktivität vorhanden ist oder daß das gelöste Plutonium sich in höherem Maße an den feinkörnigen Schwebstoffen anlagert.

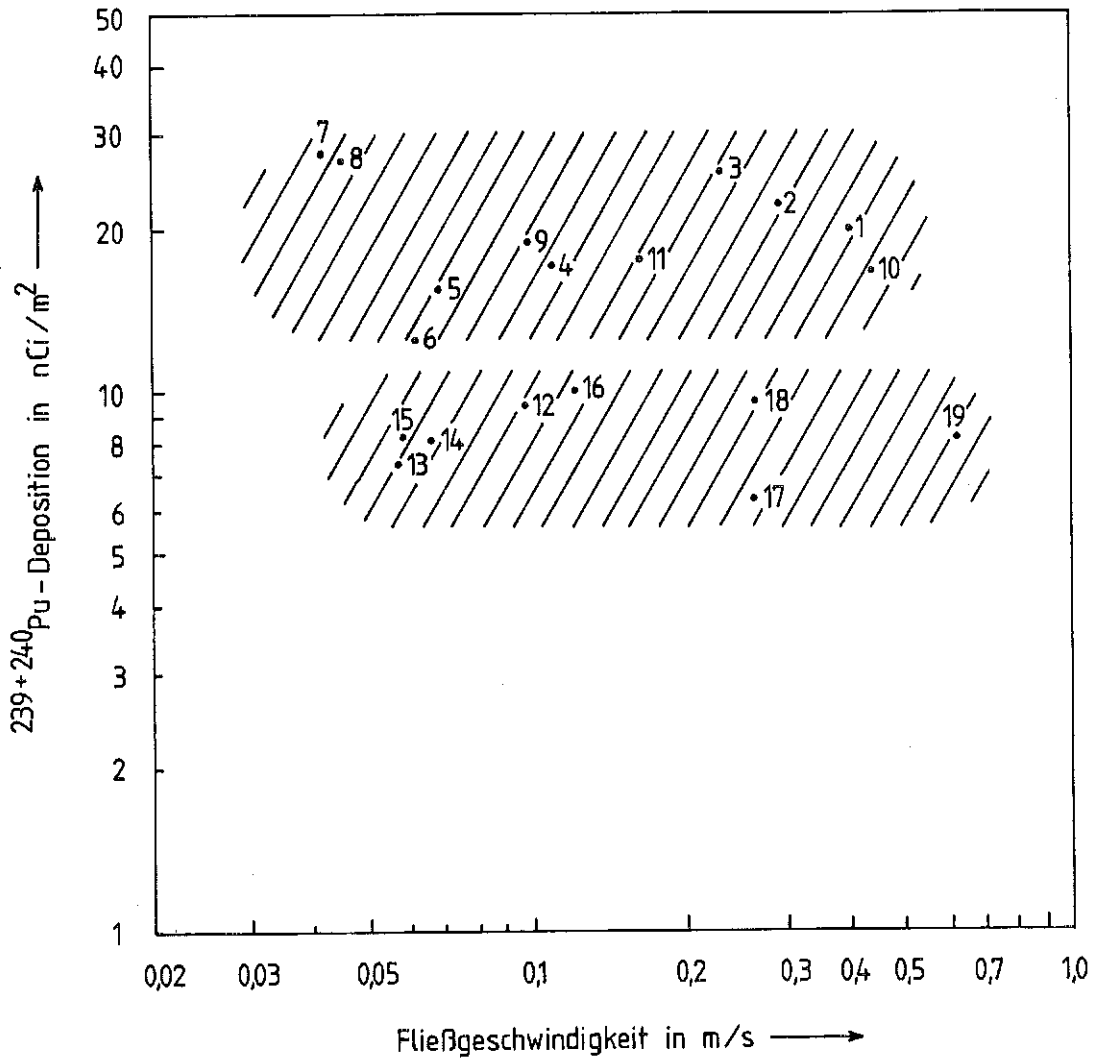


Abb. 23: Die Abhängigkeit der  $^{239+240}\text{Pu}$ -Deposition von der Fließgeschwindigkeit des Altrheins



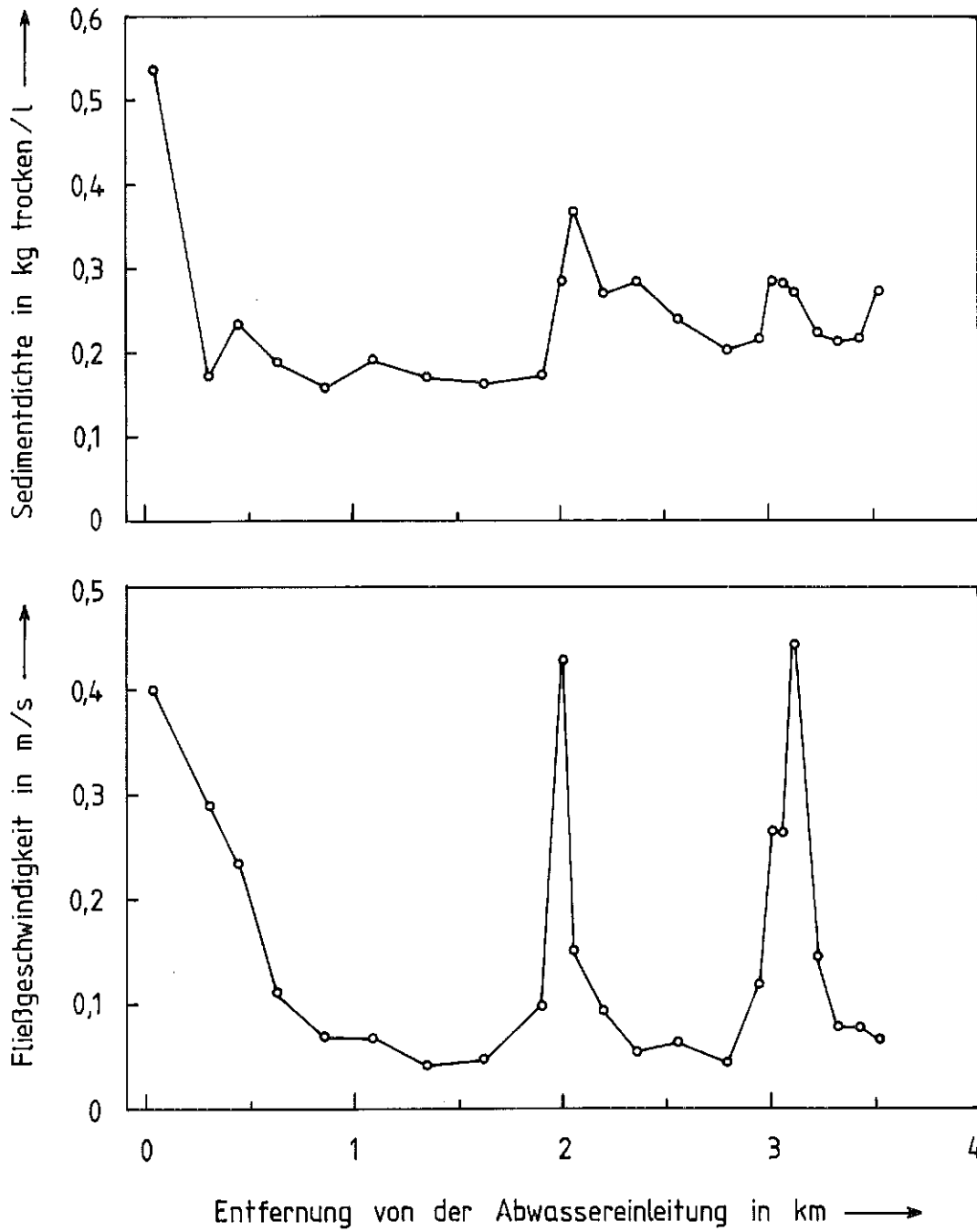


Abb. 24: Vergleich der Fließgeschwindigkeit und der Sedimentdichte im Linkenheimer Altrhein.

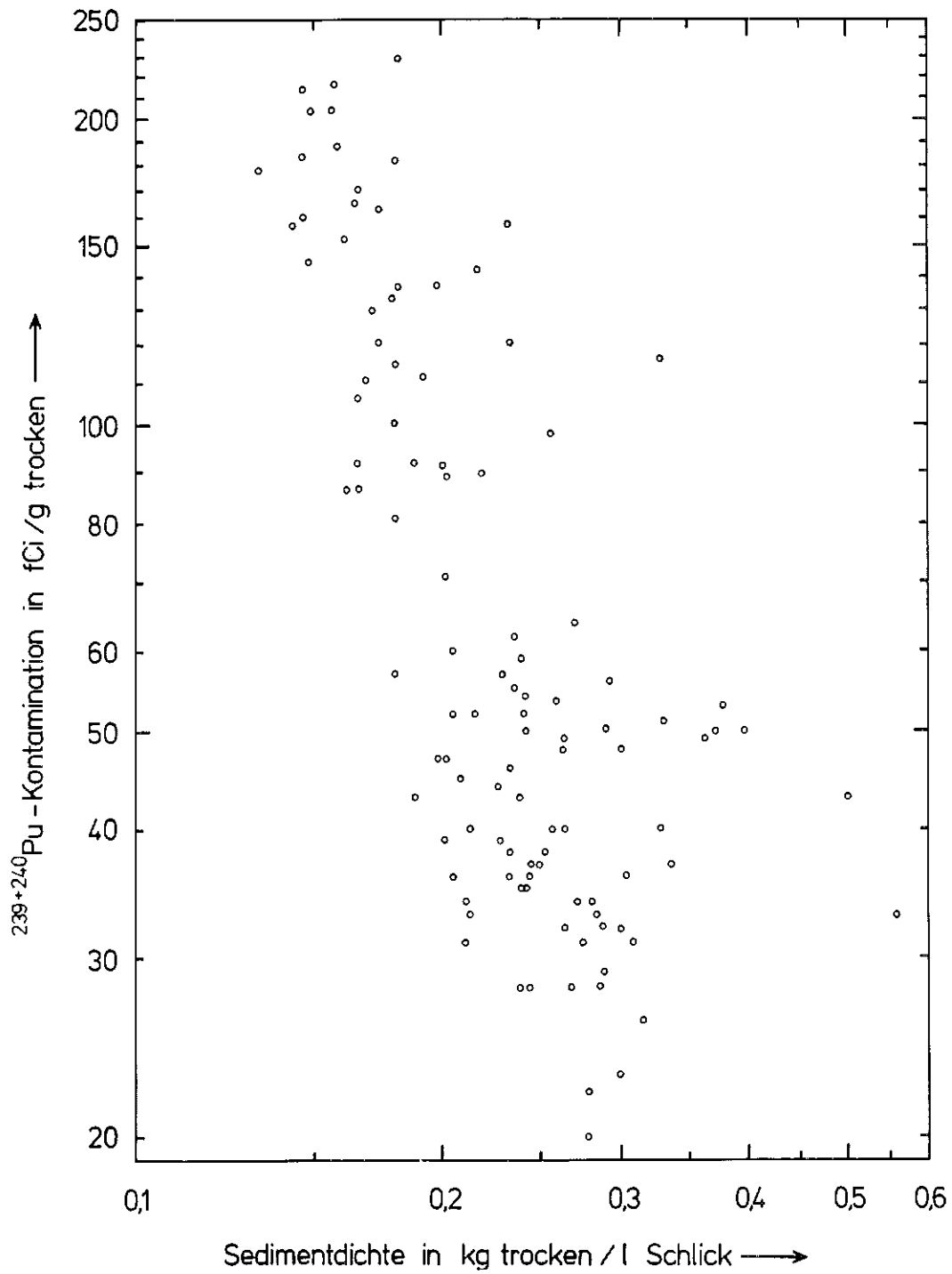


Abb. 25: Abhängigkeit der  $^{239+240}\text{Pu}$ -Kontamination der Sedimente von der Sedimentdichte.

Eine Klärung dieses Sachverhaltes werden zukünftige Untersuchungen bringen.

In Abb. 26 wurde das Isotopenverhältnis Pu-238/Pu-239+240 mit den Fließgeschwindigkeiten an den einzelnen Probenahmepositionen verglichen. Obwohl an jedem gemessenen Fließgeschwindigkeitsmaximum und an jedem potentiellen Fließgeschwindigkeitsmaximum eine Einkerbung der Isotopenverhältniskurve beobachtet werden kann, ist der Effekt gering. Im wesentlichen liegt das Isotopenverhältnis über die gesamten 3,5 km um 0,62, dem Wert also, der als Mittelwert für das Isotopenverhältnis des mit dem Abwasser abgegebenen Plutoniums bestimmt wurde. Aus dem zweiten Vorversuch wurde ebenfalls das Isotopenverhältnis in Abhängigkeit von der Entfernung von der Abwassereinleitung in Abb. 27 aufgetragen. Dabei kann zwar festgestellt werden, daß nach etwa 10 km flußabwärts das Isotopenverhältnis teilweise drastisch abnimmt; trotzdem liegen bis zur Mündung in den Rhein die Isotopenverhältnisse über den Fallout-Werten.

#### 4.3 Die im Altrhein deponierte Plutoniumaktivität

Um die Gesamtaktivität des Plutoniums, welches in den Sedimenten des Altrheins abgelagert wurde, zu berechnen, wurde wie folgt verfahren. Die an den verschiedenen Probenahmepositionen gemessenen Plutoniumkonzentrationen in fCi/g wurden multipliziert mit der jeweiligen Schlammdichte in kg Tr./l Sediment. Diese Werte wurden mit der Tiefe der Sedimente multipliziert und ein Mittelwert über die Querprofile gebildet. Die so pro Flächeneinheit gefundenen mittleren Plutoniumaktivitäten wurden gemittelt mit den an den Nachbarpositionen auf gleiche Weise erhaltenen Werten und dann multipliziert mit der Fläche des wasserbedeckten Altrheins bzw. der Fläche des gesamten Flußbettes. Aus der ersten Multiplikation erhält man den Mindestwert der Plutoniumablagerung, aus der zweiten Multiplikation den maximal möglichen Wert der Plutoniumablagerung im Altrhein.

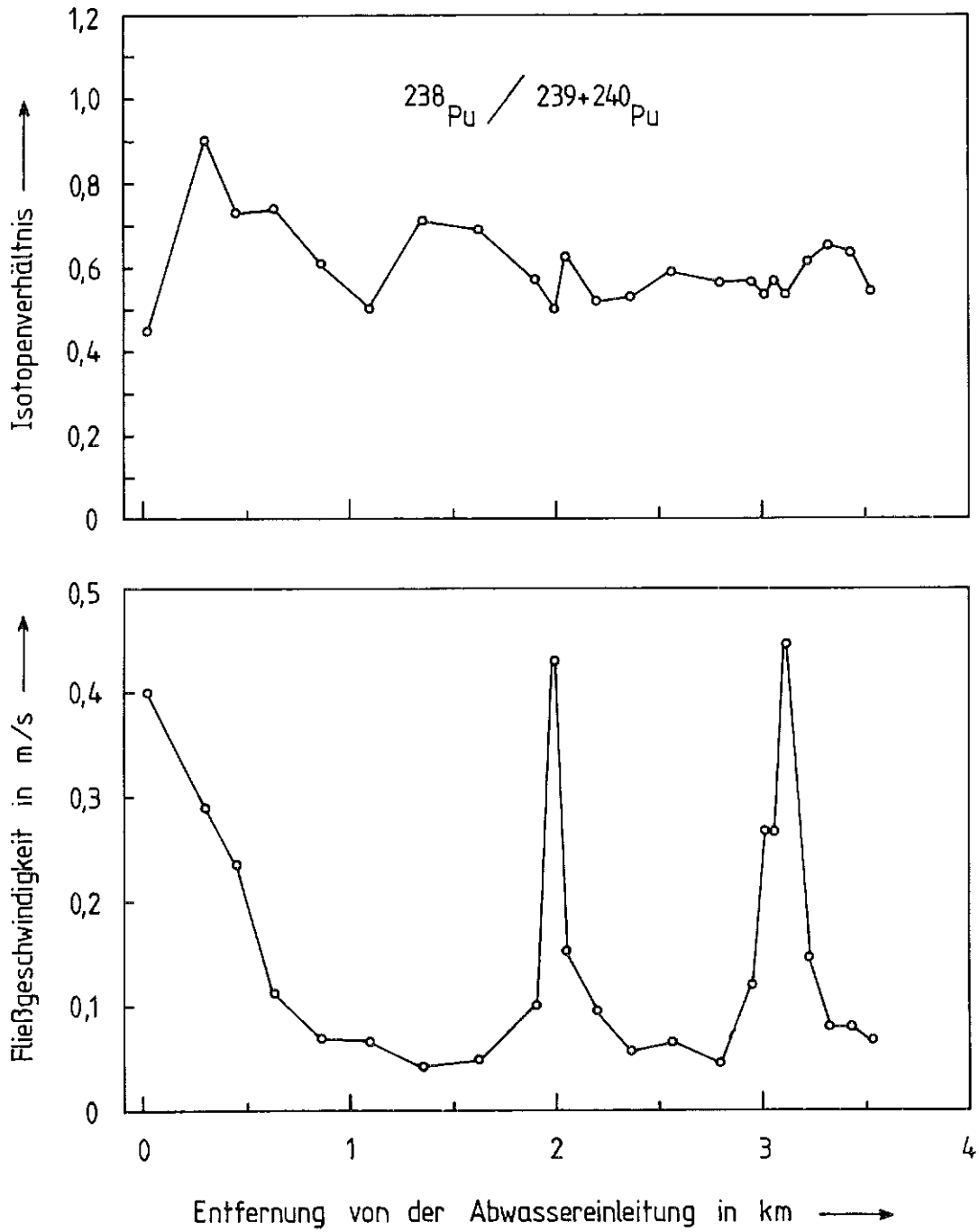


Abb. 26: Vergleich des Verhältnisses  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  in den untersuchten Sedimentproben mit der Fließgeschwindigkeit.

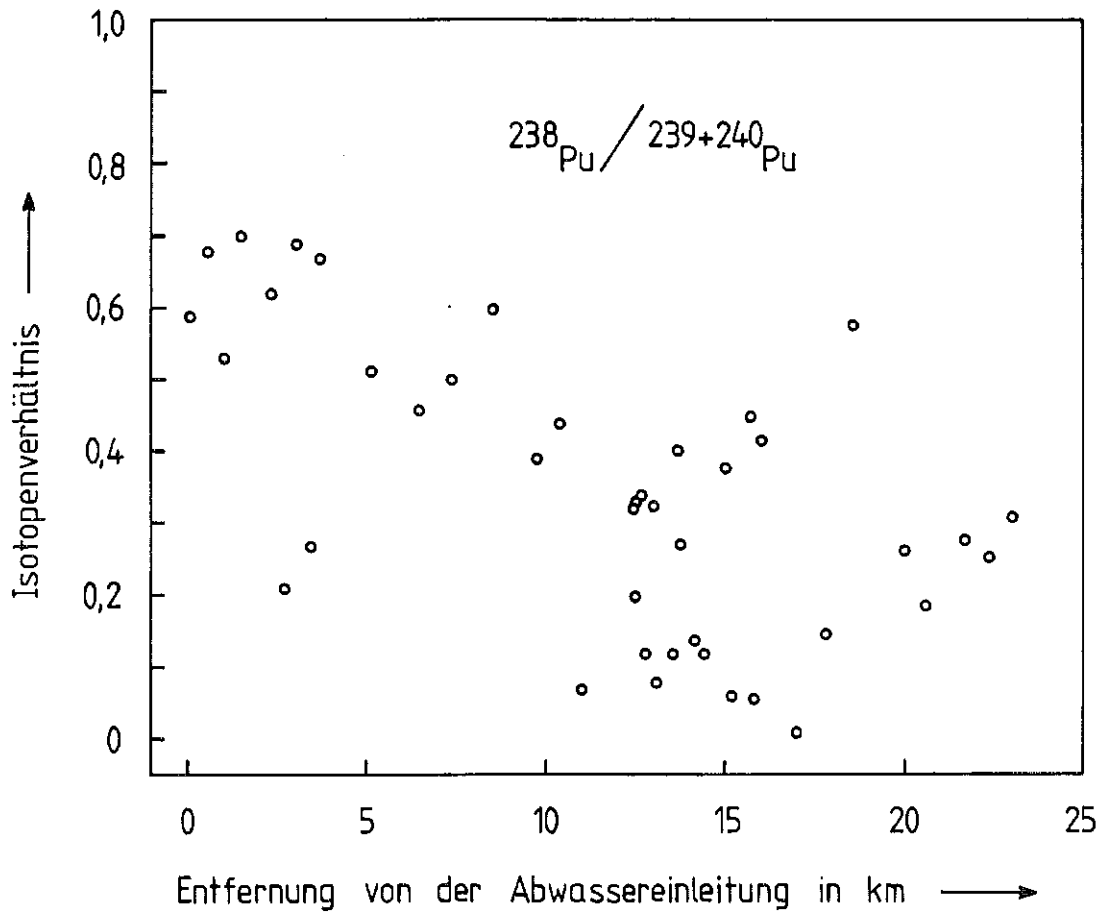


Abb. 27: Isotopenverhältnis  $^{238}\text{Pu} / ^{239+240}\text{Pu}$  der Proben des 2. Vorversuches in Abhängigkeit vom Abstand der Probenahmeposition von der Abwassereinleitung

Da ein Teil des mit dem Abwasser emittierten Plutoniums auch flußaufwärts gefunden wurde, wurde für die kontaminierten 500 m ähnlich verfahren wie oben angegeben. Die mittleren Schlammtiefen und Schlamm-dichten, wie sie im Linkenheimer Altrhein gefunden wurden, wurden auch in diesem Teil des Altrheins als richtig angenommen. Um den Anteil des deponierten Plutoniums im Kanalsystem nach dem Linkenheimer Altrhein bis nach Philippsburg zu berechnen, wurde eine mittlere Pu-239+240-Konzentration von 15 fCi/g und eine mittlere Pu-238-Konzentration von 8 fCi/g angesetzt. Für die Länge wurden 20 000 m, die Breite im Mittel 10 m und die Sedimentdicke 75 cm angenommen. Mit der mittleren Schlamm-dichte von 0,25 kg/l und der Wasserfläche des Kanalsystems wurde dann die Plutoniumaktivität für diesen Teil des Altrheins berechnet.

Die Ergebnisse sind in der Tab. 8 wiedergegeben. In Tab. 9 wurden diese Werte getrennt nach der Plutoniumaktivität unter der Wasseroberfläche und im Flußbett mit dem insgesamt mit dem Abwasser emittierten Plutonium verglichen. Für die unter der Wasseroberfläche gefundene Plutoniumakti-vität erhält man 94 % des insgesamt emittierten Plutoniums und unter der Annahme gleicher Sedimentationsbedingungen für das ganze Flußbett 170 % des emittierten Plutoniums.

Daraus darf geschlossen werden, daß der größte Teil des mit dem Abwasser emittierten Plutoniums sich nach wie vor im Altrhein befindet. Dies be-deutet, daß die Resuspension nur eine untergeordnete Rolle beim Transport des Plutoniums im Altrhein spielt.

## 5. Zusammenfassung der Ergebnisse

Um den Mechanismus der Ablagerung von Plutonium in einem langsamfließen-den Gewässer zu untersuchen, wurde die aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe in den Altrhein abgeleitete Plutoniumaktivität verwendet. In zwei Vorversuchen wurden Längsprofile der Sedimentkontamination aufge-nommen. Dabei wurde festgestellt, daß in den ersten 3,5 km die höchste Plutoniumkontamination vorlag.

| Abschätzung für            | Bereich in km | Abgelagertes Pu in mCi |            |
|----------------------------|---------------|------------------------|------------|
|                            |               | Pu-238                 | Pu-239+240 |
| Wasser-<br>ober-<br>fläche | -0,5 - 0      | 0,04                   | 0,08       |
|                            | 0 - 3,5       | 0,98                   | 1,52       |
|                            | 3,5 - 23      | 0,30                   | 0,60       |
|                            |               | 1,42                   | 2,20       |
| Flußbett                   | -0,5 - 0      | 0,24                   | 0,42       |
|                            | 0 - 3,5       | 1,87                   | 2,91       |
|                            | 3,5 - 23      | 0,30                   | 0,60       |
|                            |               | 2,41                   | 3,93       |

Tab. 8: Abschätzung der insgesamt im Altrhein abgelagerten Pu-238- und Pu-239+240-Aktivitäten

| Plutonium gefunden im                   | Anteil des mit dem Abwasser abgegebenen Plutoniums in % |             |
|---|---|-------------|
|   | unter der Wasseroberfläche                              | im Flußbett |
| Altrhein oberhalb der Einleitungsstelle | 3   | 18          |
| Linkenheimer Altrhein                   | 67  | 128         |
| Kanalsystem bis Philippsburg            | 24  | 24          |

Tab. 9: Plutonium, gefunden in den Sedimenten der verschiedenen Teile des Altrheins und verglichen mit der Gesamtemission mit dem Abwasser

An 23 Probenahmepositionen wurden drei bis neun Einzelproben auf Querprofilen zum Altrhein entnommen. Die Plutoniumkontamination der Sedimente war in den Querprofilen gleich verteilt bzw. zeigte ein Maximum, wenn der Altrhein in der Mitte des Flußbettes sich bewegte. In der Linkskurve und in dem dieser Linkskurve folgenden Teil werden zwei Kontaminationsmaxima gemessen; eines liegt am Außenrand der Kurve und eines auf der Innenseite, auf der größere Sedimentbänke abgelagert worden sind.

An einer Probenahmeposition wurden drei Tiefenprofile bis zu 70 cm Tiefe aufgenommen. Es wurde festgestellt, daß die Plutoniumkontamination bis in die unterste Schicht der Sedimente reichte. Wegen des in der Tiefe abnehmenden Isotopenverhältnisses Pu-238/Pu-239+240 und der mit der Tiefe zunehmenden Sedimentdichte wird angenommen, daß die gesamte Sedimentschicht bereits vorlag, als die Plutoniumemissionen aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe begannen. Die an der Oberfläche des Schlicks abgelagerte Plutoniumaktivität dringt dann in die Sedimente ein und sinkt in diesen ab. Die Plutoniumkonzentration in pCi/l Sediment ist über die Tiefe der Sedimente gleich verteilt.

Die Deposition des Plutoniums entlang der Längsverteilung hängt ab von den Einengungen des Altrheins an vier Stellen, von der Breite des Altrheins und von der Entfernung der jeweils betrachteten Stelle von der Einleitung des Abwassers. Hohe Fließgeschwindigkeiten entsprechen zwar geringen Plutoniumdepositionen, eine eindeutige Beziehung zwischen Deposition in nCi/m<sup>2</sup> und der Fließgeschwindigkeit besteht nicht. Die Sedimentdichte ist proportional der Fließgeschwindigkeit; der Plutoniumgehalt der Sedimente nimmt mit zunehmender Sedimentdichte rasch ab. Das mittlere Isotopenverhältnis Pu-238/Pu-239+240 von 0,62 in den Abwässern des Kernforschungszentrums Karlsruhe wird wiedergefunden in den obersten Sedimentschichten der ersten 3,5 km. Über 10 km von der Einleitungsstelle nimmt das Isotopenverhältnis ab, bleibt aber über dem Fallout-Wert.



Aus den Pu-Konzentrationen der Sedimente und den Sedimentmengen wurde der Plutoniumgehalt oberhalb der Einleitung der Abwässer, im Linkenheimer Altrhein und im dem Linkenheimer Altrhein folgenden Kanalsystem bis Philippsburg berechnet. Dabei wurden als Grenzwerte die Plutoniumaktivität unter der Wasseroberfläche und die Plutoniumaktivität im gesamten Flußbett berechnet. Unter der Wasseroberfläche wurden 94 % des abgegebenen Plutoniums wiedergefunden. Dies bedeutet, daß der größte Teil des Plutoniums sich nach wie vor im Altrhein befindet. Die Resuspension der sedimentierten plutoniumhaltigen Schwebstoffe ist daher von untergeordneter Bedeutung.

Wir danken an dieser Stelle all den Mitarbeitern der HS/R, die mit ihrer Arbeit die Voraussetzung für die Erstellung dieses Berichtes schufen:

Herrn Bailer für seinen unermüdlichen Einsatz bei der Probenahme und der Probenvorbereitung, Fr1. Hefner für die gewissenhafte Durchführung der Plutoniumanalysen, Herrn DP. Fessler und seinen Mitarbeitern für die sorgfältige Aufnahme der zahlreichen  $\alpha$ -Spektren.