

KfK 3034
August 1981

Das Verhalten von Plutonium in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe

H. Schüttelkopf
Hauptabteilung Sicherheit
Projekt Nukleare Sicherheit

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Hauptabteilung Sicherheit
Projekt Nukleare Sicherheit

KfK 3034

Das Verhalten von Plutonium in der Umgebung des
Kernforschungszentrums Karlsruhe

H. Schüttelkopf

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

Zusammenfassung

Zielsetzung dieses Berichtes war die Anwendung einer empfindlichen Plutoniumanalytik auf verschiedene Umweltmaterialien. Gleichzeitig stellt dieser Bericht eine erste Arbeit zur Untersuchung der Radioökologie von Plutonium in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe dar. Die Plutoniumemissionen mit der Abluft aus der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe wurden über zwei Jahre gemessen. Die dadurch und durch Fallout-Plutonium verursachte Kontamination der Umgebungsluft wurde in der Umgebung gemessen. Ausbreitungsfaktoren wurden aus diesen Plutoniumkonzentrationen errechnet. Die Kontamination von Pflanzen mit Plutonium wurde untersucht. Die Depositionsgeschwindigkeit von Plutonium-Aerosolen auf Gras wurde gemessen. Flechten und Moos wurden als effektive Bioindikatoren für Plutonium in terrestrischen Ökosystemen gefunden. Die vertikale Verteilung von Plutonium in verschiedenen Böden wurde gemessen. Die Plutoniumkontamination einzelner Organe von Wildtieren wurde bestimmt. Die Kontamination der Sedimente im Altrhein, der als Vorfluter für die Abwässer des Kernforschungszentrums Karlsruhe dient, wurde bestimmt. Muschelschalen und Muschelfleisch wurden auf Plutonium untersucht und Muschelschalen als effektive Bioindikatoren für aquatische Systeme identifiziert.

The Behavior of Plutonium in the Environment of the Karlsruhe Nuclear Research Center

Summary

The work described in this report aimed at the application of a sensitive Pu-analysis to different environmental samples. In addition, the report represents first results about research on the radioecology of Pu in the environment of the Karlsruhe Nuclear Research Center. Pu-releases with the exhaust air from the Karlsruhe reprocessing plant were measured over more than two years. The contamination of the environmental air caused by fallout Pu and the mentioned Pu-releases were determined. Dispersion factors were calculated from these Pu-concentrations. The contamination of plants by Pu was measured. The velocity of Pu-aerosol deposition on grass was determined. Lichen and moss were found to be effective bioindicators for Pu in terrestrial ecosystems. The vertical distribution of Pu in different soils was measured. The contamination of organs of wild animals by Pu was determined. The Pu-contamination of the sediments of the Altrhein which serves as the main canal for liquid effluents from the Karlsruhe Nuclear Research Center was measured. The meat and shells of river mussels were analyzed for Pu and shells of the river mussels were identified as effective bioindicators for Pu in aquatic systems.

I n h a l t

1. Die Messung der Langzeitausbreitungsfaktoren mit Plutonium-Aerosolen
 - 1.1 Der Langzeitausbreitungsfaktor χ
 - 1.2 Die Emission von Plutonium mit der Abluft der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe
 - 1.3 Die Plutoniumkonzentration in der Umgebungsluft der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe
 - 1.4 Der falloutbedingte Untergrund von Plutonium in der Umgebungsluft
 - 1.5 Die gemessenen Langzeitausbreitungsfaktoren für Plutonium-Aerosole

2. Die Deposition von Plutonium auf Gras und anderen Pflanzen
 - 2.1 Die Deposition von Aerosolen auf Pflanzen
 - 2.2 Die auf Wildpflanzen abgelagerte $^{239+240}\text{Pu}$ -Aktivität
 - 2.3 Die auf Kiefernadeln und Gras aus Durlach abgelagerten $^{239+240}\text{Pu}$ -Aerosole
 - 2.4 Die Depositionsgeschwindigkeit von Plutonium-Aerosolen auf Gras

3. Die Plutoniumverteilung in Böden unterschiedlicher Herkunft
 - 3.1 Vertikalverteilung von Plutonium im Boden einer Weide im Südschwarzwald
 - 3.2 Vertikalverteilung von Plutonium im Boden aus der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe

4. Plutonium in Tieren der Umgebung der WAK
 - 4.1 Der $^{239+240}\text{Pu}$ -Gehalt von Organen des Damwildes
 - 4.2 Die $^{239+240}\text{Pu}$ -Kontamination verschiedener Organe von Kaninchen

5. Plutonium in den Sedimenten des Altrheins
 - 5.1 Das Längsprofil der Plutoniumkontamination der Sedimente des Altrheins
 - 5.2 Die Plutoniumkontamination der Sedimente direkt unterhalb der Einleitung der Abwässer des KfK
 - 5.3 Die Plutoniumanreicherung in Flußmuscheln

6. Literatur

Ein empfindliches Plutoniumanalysenverfahren wurde entwickelt, um das Verhalten von Plutonium in der Biosphäre anhand der existierenden extrem niedrigen Kontaminationen durch Kernwaffenexperimente bzw. den Betrieb kerntechnischer Anlagen zu studieren [1]. Unter dem Verhalten von Plutonium in der Biosphäre versteht man sein Schicksal zwischen Freisetzung und Aufnahme in ein Lebewesen. Dieser Bericht beschreibt eine erste Recherche des Verhaltens von Plutonium in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Die Untersuchung stellt eine Anwendung der entwickelten Analysenmethodik dar und berührt nur stichprobenartig die Gebiete der Radioökologie von Plutonium. Auf die Messung von Plutoniumisotopen in der Abluft der WAK¹⁾ folgt die Bestimmung der Plutoniumkonzentration in Umgebungsluft, die Messung der Langzeitausbreitungsfaktoren, die Ablagerung von Plutonium auf verschiedenen Pflanzen im besonderen auf Gras, die Ablagerung und Tiefenverteilung von Plutonium in verschiedenen Böden und die Aufnahme und Verteilung von Plutonium in Wildtieren. Wie für den hier beschriebenen Abluftpfad erfolgt auch eine Untersuchung des Abwasserpfades, wobei die Plutoniumkonzentration im Abwasser, in Sedimenten und in Lebewesen eines durch Falloutplutonium kontaminierten Flußsystems gemessen wurde.

1. Die Messung der Langzeitausbreitungsfaktoren mit Plutonium-Aerosolen

1.1 Der Langzeitausbreitungsfaktor χ

Nach dem Modell der turbulenten Diffusion der atmosphärischen Ausbreitung errechnet man die Luftkonzentration C eines Schadstoffes bei konstanter Emissionsrate Q und der effektiven Kaminhöhe H am Punkte (x,y,z) entsprechend [2]:

$$C(x,y,z) = \frac{Q}{2\pi \cdot \sigma_y \cdot \sigma_z \cdot u} e^{-y^2/2\sigma_y^2} \left\{ e^{-\frac{(H-z)^2}{2\sigma_z^2}} + e^{-\frac{(H+z)^2}{2\sigma_z^2}} \right\} \quad (1)$$

(x,y,z) sind kartesische Koordinaten, wobei x die Ausbreitungsrichtung darstellt, y die azimutale und z die vertikale Koordinate angeben. Unter u versteht man die Ausbreitungsgeschwindigkeit; σ_y und σ_z sind die horizontalen bzw. vertikalen Ausbreitungsparameter. Bei der Emission radioaktiver Schadstoffe ist vor allem die Kontamination der Luft in Bodennähe von Interesse. Mit $z = 0$ erhält man

¹⁾ Wiederaufbereitungsanlage Karlsruhe

$$\chi = \frac{C(x,y,0)}{Q} = \frac{1}{\pi\sigma_y \cdot \sigma_z \cdot u} \cdot e^{-y^2/2\sigma_y^2} \cdot e^{-H^2/2\sigma_z^2} \quad (2)$$

Für einen gegebenen Punkt der Umgebung gilt für eine kurzzeitig als konstant angesehene Wettersituation, daß die Ausbreitungsgeschwindigkeit, σ_y und σ_z als konstant angesehen werden können. Unter diesen Umständen ist die rechte Seite von (2) für den betrachteten kurzen Zeitraum konstant. Dieser sogenannte Ausbreitungsfaktor ist meßbar durch Messung der Luftkonzentration C und der Emissionsrate Q des betrachteten Schadstoffes.

Dauert die Emission des Schadstoffes längere Zeit an, so ist der rechte Teil der Formel (2) nicht mehr konstant. Die Ausbreitungsgeschwindigkeit wird wechseln, σ_y und σ_z hängen von der Wetterkategorie ab. Den für diesen Zeitraum geltenden mittleren Ausbreitungsfaktor erhält man abermals durch eine gewichtete Mittelung der für die einzelnen Wetterbedingungen gültigen Ausbreitungsfaktoren und bei konstanter Emissionsrate ist der mittlere Ausbreitungsfaktor zu messen, indem statt C(x,y,0) ein Mittelwert, $\bar{C}(x,y,0)$, über den betrachteten Zeitraum gemessen wird.

Ist die Emissionsrate Q im betrachteten Zeitraum ebenfalls nicht konstant, so gilt die Formel (2) zur Bestimmung des mittleren Ausbreitungsfaktors nicht mehr exakt. Je länger aber der betrachtete Zeitraum, desto wahrscheinlicher ist es, daß bei den verschiedenen Emissionsraten entsprechend der statistischen Häufigkeit alle Wetterbedingungen anfallen, und daher geht bei längeren Meßzeiten der mittlere Ausbreitungsfaktor, der mit der Formel (2) gemessen wurde, in den exakten mittleren Ausbreitungsfaktor über.

Diese Überlegungen wurden angewandt, um den Langzeitausbreitungsfaktor χ mit der Emission und Immission von ^{238}Pu und $^{239+240}\text{Pu}$ aus der WAK zu messen. Die Emission wurde im Abluftkamin der WAK gemessen, die Immission beim nächstgelegenen in Hauptwindrichtung befindlichen bewohnten Haus bestimmt. Vom Abluftkamin der WAK aus gesehen, ist das Haus 280 m in Richtung Ost und 550 m in Richtung Nord. Die Messung der Emission und Immission der Plutoniumisotope erfolgte monatlich.

1.2 Die Emission von Plutonium mit der Abluft der WAK

In der WAK wird aus dem Abgasstrom am Kaminfuß ein Teilstrom von 13 m³/h über 20-cm-Durchmesser-Glasfaserfilter Nr. 5 der Firma Schleicher & Schüll geleitet. Der Abscheidegrad für Schwebstoffe liegt bei 99,9 %. Der Abgasstrom betrug im Mittel 1977 460 m³/h und 1978 bis 1979 630 m³/h. Die Glasfaserfilter wurden im Untersuchungszeitraum zwischen 27 und 123 mal pro Monat gewechselt; im Mittel fielen monatlich 40 Glasfaserfilter an. Von diesen Filtern wurde je ein Scheibchen von 2 cm Durchmesser ausgestanzt und vom WAK-Personal dem Verfasser zur Verfügung gestellt. Die Filter wurden auf Plutonium analysiert.

Die Ergebnisse sind in der Tabelle 1 wiedergegeben. Unter der Annahme, daß 99,9 % Abscheidegrad auch in der WAK-Abluft erreicht wird, wird aus dem Abgasdurchfluß D und der in Tabelle 1 angegebenen Filteraktivität A_F die monatlich emittierte Aktivität A_E berechnet nach:

$$A_E = 10^{-3} \cdot A_F \cdot \frac{D}{13} \text{ in } \mu\text{Ci/Monat} \quad (3)$$

A_F ... Pu-α-Aktivität auf den 20-cm-Durchmesser-Glasfaserfiltern in nCi/Monat

D ... Abgasdurchsatz in m³/h

10⁻³ ... Umrechnungsfaktor $\frac{\mu\text{Ci}}{\text{nCi}}$

Das Aktivitätsverhältnis $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ lag im Zeitraum April 1977 bis Februar 1978 bei $2,5 \pm 0,5$, im Zeitraum März 1978 bis September 1979 im Bereich von $0,6 \pm 0,3$. Dies entspricht dem Wechsel von hochabgebranntem KWO-Brennstoff zu niedrigabgebranntem MZFR-Brennstoff im Februar 1978. Die α-Aktivität des Plutoniums wurde verglichen mit der Gesamt-α-Aktivität, welche vom WAK-Personal in der Abluft der WAK gemessen wurde. Die α-Emissionen der WAK werden z. B. publiziert in [3]. Der Anteil der Plutonium-α-Aktivität lag im Mittel bei $0,6 \pm 0,3$. Die Werte reichten von 4 % bis zur quantitativen Abdeckung der α-Emissionen durch Plutoniumisotope. Die monatlichen Emissionen sind in Tabelle 2 wiedergegeben.

Tabelle 1: ^{238}Pu - und $^{239+240}\text{Pu}$ -Aktivitäten auf den 20-cm-Durchmesser-Filtern der WAK-Abgasüberwachung in der Zeit zwischen April 1977 und September 1979

Probenahme		Pu-Aktivität in nCi	
		^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$
April	1977	13700	4500
Mai	1977	121	44
Juni	1977	5740	2020
Juli	1977	213	86
August	1977	855	344
September	1977	540	470
Oktober	1977	290	130
November	1977	3270	1290
Dezember	1977	5500	2020
Januar	1978	573	250
Februar	1978	847	337
März	1978	704	1170
April	1978	2440	6650
Mai	1978	1080	4000
Juni	1978	267	734
Juli	1978	681	2370
August	1978	111	217
September	1978	119	127
Oktober	1978	76	90
November	1978	104	172
Dezember	1978	77	65
Januar	1979	36	56
Februar	1979	75	82
März	1979	43	44
April	1979	291	750
Mai	1979	327	722
Juni	1979	1100	2540
Juli	1979	167	396
August	1979	224	182
September	1979	646	928

Tabelle 2: Plutoniumemissionen mit dem Abgas der WAK zwischen April 1977 und September 1979

Probenahme		Plutoniumemissionen mit dem Abgas der WAK in $\mu\text{Ci}/\text{Monat}$	
		^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$
April	1977	486	160
Mai	1977	4,10	1,49
Juni	1977	168	59,3
Juli	1977	6,23	2,51
August	1977	29,1	11,7
September	1977	16,4	14,3
Oktober	1977	10,6	4,76
November	1977	132	52,2
Dezember	1977	255	93,6
Januar	1978	26,1	11,4
Februar	1978	42,7	17,0
März	1978	33,6	55,9
April	1978	114	311
Mai	1978	49,5	184
Juni	1978	11,6	31,8
Juli	1978	29,7	103
August	1978	5,51	10,8
September	1978	5,91	6,31
Oktober	1978	3,93	4,66
November	1978	5,09	8,41
Dezember	1978	3,90	3,30
Januar	1979	1,79	2,75
Februar	1979	3,68	4,03
März	1979	2,12	2,16
April	1979	14,3	36,9
Mai	1979	16,1	35,5
Juni	1979	53,9	125
Juli	1979	8,23	19,5
August	1979	11,0	8,95
September	1979	31,8	45,7

1.3 Die Plutoniumkonzentration in der Umgebungsluft der WAK

Luftstaub wurde auf 20-cm-Durchmesser-Glasfaserfilter beim Forsthaus 280 m östlich und 550 m nördlich des WAK-Abluftkamines kontinuierlich gesammelt. Zwischen Juni 1977 und August 1978 lagen die gesammelten Gesamtvolumina zwischen 2 300 und 7 000 m³, zwischen September 1978 und September 1979 lagen nach Einbau einer stärkeren Pumpe die gesammelten Volumina zwischen 14 000 und 27 000 m³¹⁾. Der Sammelzeitraum betrug ca. 14 Tage. Die monatlich gesammelten Glasfaserfilter Nr. 5 der Firma Schleicher & Schüll wurden, wie oben beschrieben, analysiert.

Die Ergebnisse sind in Tabelle 3 zusammengestellt. Die Plutoniumkonzentrationen in der Umgebungsluft sind in aCi/m³ angegeben und die Fehlerangabe stellt den 1- σ -Fehler, basierend auf der Zählstatistik und der Fehlerfortpflanzung, dar.

1.4 Der falloutbedingte Untergrund von Plutonium in der Umgebungsluft

Die Verwendung der in Tabelle 3 wiedergegebenen Luftkonzentrationen von ²³⁸Pu und ²³⁹⁺²⁴⁰Pu ist nur dann möglich, wenn der allgemeine, falloutbedingte Untergrund dieser Plutoniumisotope nicht im gleichen Bereich liegt. Eine Untergrundmessung für die Plutoniumkontamination der Umgebungsluft ist im Bereich des Kernforschungszentrums nicht möglich, da eine Kontamination durch Plutoniumemissionen verschiedener kerntechnischer Anlagen nicht ausgeschlossen werden kann. Die Entnahme von ²³⁹⁺²⁴⁰Pu-Konzentrationen in der Umgebungsluft aus der Literatur stößt auf folgende Schwierigkeiten: Es gibt nur sehr wenige Orte, an denen regelmäßig die Luftkonzentrationen von Plutonium gemessen werden. Die Luftkonzentration und die Bodendeposition von Falloutradionukliden hängt außerdem ab von der geographischen Breite und von der Seehöhe der Probenahmestelle. Die erste Abhängigkeit resultiert aus der besonderen Struktur der irdischen Atmosphäre und der dadurch bedingten höheren Deposition in mittleren, nördlichen und südlichen Breiten. Die Seehöhe ist von geringerer Bedeutung, dürfte aber wegen der vergleichbaren Wetterbedingungen in gleicher Seehöhe Einfluß auf Luftkonzentration und Bodendeposition haben. In [4] wurden Daten für die ²³⁹⁺²⁴⁰Pu-Konzentration in der Umgebungsluft von Moonsonee, Ontario, Kanada, gefunden. Dieser Ort ist vergleichbar mit Karlsruhe deshalb, weil er ebenfalls geringe Seehöhe und etwa die gleiche

¹⁾ Stephan-Gebälse, Type P 132 S

Tabelle 3: Aktivitätskonzentrationen der Pu-Isotope in der Umgebungsluft am Forsthaus nordöstlich der WAK zwischen Juni 1977 und September 1979

Probenahme von bis		Pu-Konzentration in aCi/m ³ ¹⁾	
		²³⁸ Pu	²³⁹ + ²⁴⁰ Pu
<u>1977</u>			²⁾
10.06. - 28.06		127 ± 39	≤57
28.06. - 01.08.		22,0 ± 5,5	34,4 ± 6,5
01.08. - 01.09.		45,4 ± 2,2	≤37
01.09. - 30.09		16,3 ± 3,4	42,8 ± 5,6
30.09. - 11.11		24,8 ± 1,4	98 ± 13
11.11. - 15.12.		≤22	55,8 ± 6,1
<u>1978</u>			
15.12. - 20.01.		8,5 ± 2,2	25,3 ± 3,5
20.01. - 28.02.		13,1 ± 5,6	62 ± 12
28.02. - 03.04.		43 ± 19	84 ± 28
03.04. - 02.05.		49 ± 13	51 ± 13
02.05. - 29.05.		≤20	27,1 ± 5,4
29.05. - 26.06.		-	-
27.06. - 31.07.		23,6 ± 9,0	50,2 ± 5,5
31.07. - 31.08.		17,9 ± 7,9	72,3 ± 8,7
31.08. - 25.09.		11,8 ± 1,4	15,9 ± 1,6
25.09. - 30.10.		6,0 ± 1,5	3,8 ± 1,1
30.10. - 27.11.		≤ 6,7	9,3 ± 1,5
27.11. - 27.12.		≤ 6,7	6,8 ± 1,2
<u>1979</u>			
27.12. - 29.01.		7,5 ± 2,3	15,7 ± 3,0
29.01. - 26.02.		≤ 3,1	9,0 ± 2,9
26.02. - 26.03.		≤ 8,6	13,4 ± 2,0
26.03. - 30.04.		4,4 ± 1,1	9,9 ± 1,5
01.05. - 31.05.		≤ 3,9	27,8 ± 2,8
01.06. - 28.06.		11,6 ± 4,4	24,3 ± 3,2
28.06. - 30.07.		≤43	22,9 ± 6,4
30.07. - 30.08.		40,3 ± 8,9	50,3 ± 10,0
30.08. - 27.09.		12,4 ± 5,0	28,4 ± 5,1

¹⁾ aCi = 10⁻¹⁸ Ci

²⁾ 2-σ-Nachweisgrenze

geographische Breite wie Karlsruhe hat. Die jährlichen Mittelwerte der $^{239+240}\text{Pu}$ -Kontamination der Umgebungsluft an dieser Stelle sind in Abbildung 1 eingetragen. Wie aus der Abbildung hervorgeht, liegt der mittlere Wert in den letzten 5 Jahren bei ca. 20 aCi/m^3 . Dieser Wert ist relativ groß verglichen mit den in Tabelle 3 wiedergegebenen $^{239+240}\text{Pu}$ -Konzentrationen in der Umgebungsluft der WAK.

Zum Vergleich wurden Luftproben von $20\,000$ bis $30\,000 \text{ m}^3$ im Südschwarzwald, Menzenschwand, in der Zeit von Juni bis Oktober 1978 gesammelt und auf die Isotope ^{238}Pu und $^{239+240}\text{Pu}$ analysiert. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4 wiedergegeben. Der Mittelwert von $25 \pm 10 \text{ aCi } ^{239+240}\text{Pu/m}^3$ entspricht in etwa dem Mittelwert von Abb. 1 und ist in jedem Fall zu hoch, um ^{239}Pu für die Berechnung der Ausbreitungsfaktoren verwenden zu können.

Die ^{238}Pu -Konzentration in der Umgebungsluft im Südschwarzwald betrug $5,7 \pm 2,8 \text{ aCi/m}^3$. Die letzten verfügbaren ^{238}Pu -Messungen in Moonsonsee, Ontario, Kanada, stammen von 1972 und 1973. Der Mittelwert der Messungen, soweit nicht Meßwerte unter der Nachweisgrenze gefunden wurden, betrug $2,2 \pm 0,5 \text{ aCi/m}^3$ [4]. Dieser Wert ist, wie wegen des Höhenunterschiedes erwartet, niedriger als im Südschwarzwald gemessen und dürfte heute noch wesentlich niedriger sein, da die ^{238}Pu -Kontamination der Umgebungsluft auf das 1964 erfolgte Verglühen eines Satelliten der Serie SNAP-9A [5] zurückgeht. Seit Beginn der 70er Jahre nimmt die ^{238}Pu -Kontamination der Umgebungsluft auf der Nordhalbkugel kontinuierlich ab.

Daraus ergibt sich, daß der Untergrund von ^{238}Pu in der Umgebungsluft der WAK vernachlässigbar niedrig ist und daher die gemessenen ^{238}Pu -Konzentrationen in der Umgebung der WAK direkt zur Messung der Langzeitausbreitungsfaktoren χ verwendet werden können.

1.5 Die gemessenen Langzeitausbreitungsfaktoren für Plutonium-Aerosole

Die ^{238}Pu -Emissionsraten aus Tabelle 2 und die ^{238}Pu -Konzentrationen in der Umgebungsluft des Forsthauses aus Tabelle 3 wurden zur Berechnung der Lang-

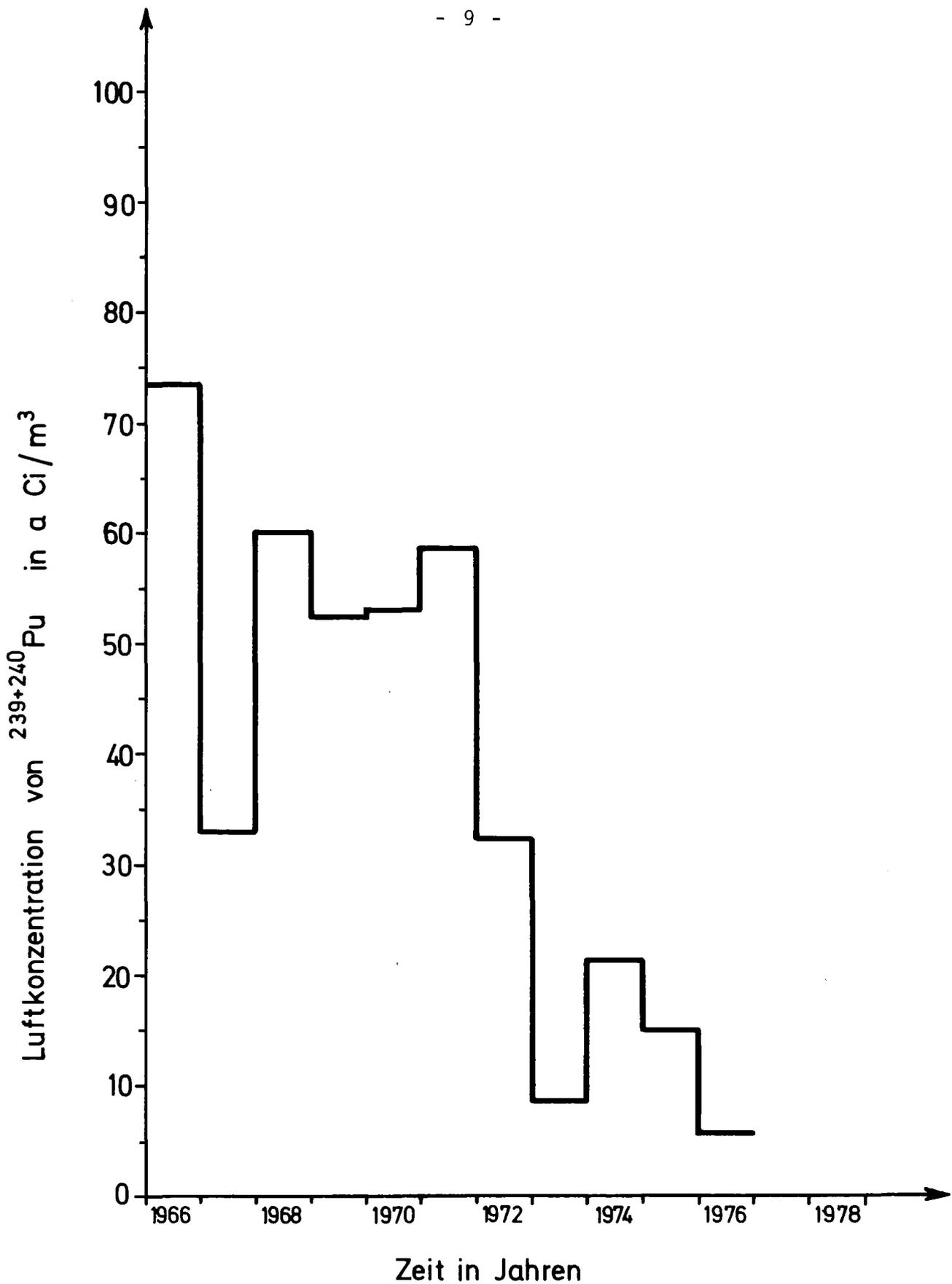


Abb.1: Mittlere jährliche Luftkonzentrationen von $^{239+240}\text{Pu}$, gemessen in Moonsonee, Ontario, Kanada, $51^{\circ}16' \text{N}$, $80^{\circ}30' \text{W}$, 10 m [4]

Tabelle 4: Konzentrationen der Pu-Isotope in der Umgebungsluft in Menzenschwand, Südschwarzwald, von Juni 1978 bis Oktober 1978

Probenahme von bis	Pu-Konzentration in aCi/m ³	
	²³⁸ Pu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu
12.06. - 30.06.	--	58,1 ± 4,7
30.06. - 17.07.	--	34,0 ± 4,1
17.07. - 31.07.	8,4 ± 2,8	36,3 ± 7,3
31.07. - 15.08.	3,6 ± 1,0	33,0 ± 3,3
18.08. - 04.09.	4,6 ± 1,3	18,6 ± 2,8
04.09. - 19.09.	3,0 ± 0,8	13,0 ± 1,0
19.09. - 03.10.	8,9 ± 1,4	24,0 ± 2,4
Mittelwert	5,7 ± 2,8	25,0 ± 9,7

zeitausbreitungsfaktoren verwendet. Die Emissionsmessungen erfolgten jeweils über einen vollen Monat. Bei den Immissionsmessungen deckt sich Monatsanfang und -ende nicht immer mit Probennahmeanfang und -ende. In diesem Fall wurde ein nach den Tagen gewichteter Mittelwert aus den jeweils benachbarten Luftkonzentrationen und der Hauptmonatsmessung erstellt. Lag die Plutoniumkonzentration in der Umgebungsluft unter der Nachweisgrenze, dann wurde die Rechnung mit dem wahrscheinlichsten Konzentrationswert, nämlich der Hälfte der Nachweisgrenze, durchgeführt. Die angegebenen Fehler sind 1-σ-Fehler basierend auf der

Zählstatistik und der Fehlerfortpflanzung. In drei Fällen liegen nicht für den gesamten Monat Konzentrationsmessungen in der Umgebungsluft vor. Im Juni 1977 fehlen 10 d, im Mai 1978 2 d und im September 1979 3 d. In diesen 3 Monaten wurden die Luftkonzentrationen der Meßzeit für den gesamten Monat eingesetzt.

In Tabelle 5 sind die monatlichen Emissionsraten, die Konzentrationen in der Umgebungsluft und die Ausbreitungsfaktoren, welche aus ihnen berechnet wurden, wiedergegeben. Der mittlere Ausbreitungsfaktor wurde berechnet durch Wichtung der Einzelwerte entsprechend den reziproken Quadraten der relativen Fehler. Aus den Pu-Emissions- und Pu-Immissionswerten ergibt sich für χ $(4,8 \pm 0,4) \cdot 10^{-6}$ s/m³. Dieser Wert ist etwa um den Faktor 5 höher, als sich nach den in [6] angegebenen Daten für die Koordinaten des Forsthauses ergibt. Danach beträgt der Ausbreitungsfaktor an der Stelle des Forsthauses im langjährigen Mittel $1,0 \cdot 10^{-6}$ s/m³. Dieser Wert basiert auf den Ergebnissen von einer großen Zahl von Ausbreitungsexperimenten, bei denen σ_y und σ_z in Abhängigkeit vom Abstand vom Emittenten und von der jeweiligen Wetterkategorie bestimmt wurde. Außerdem wurde zur Berechnung dieser Daten die durch den 200 m hohen meteorologischen Mast des Kernforschungszentrums Karlsruhe gesammelten statistischen Daten verwendet. Der hier bestimmte Meßwert könnte erklärt werden durch die Tatsache, daß für die Ausbreitungsexperimente im Kernforschungszentrum Karlsruhe gasförmige Leitsubstanzen verwendet werden, während es sich hier um den Ausbreitungs- und Verdünnungsprozeß eines Aerosols handelt. Eine andere Erklärung wäre, daß die effektive Kaminhöhe mit der Höhe von 60 m nicht identisch ist. Dies könnte verursacht sein einerseits durch einen geschlossenen Wald auf einem großen Teil der Verbindung zwischen Abluftkamin der WAK und dem Forsthaus oder durch eine Überhöhung der Emission, bedingt durch die erhöhte Temperatur der Abgase. Wegen der überraschend hohen Abweichungen der monatlichen Einzelwerte vom Mittelwert sollten in Zukunft die monatlichen statistischen meteorologischen Daten mit den hier gemessenen Werten verglichen werden. Diese meteorologische Aufgabe konnte im Rahmen dieser Arbeit nicht durchgeführt werden.

Tabelle 5: Die Emissionsraten von ^{238}Pu und die ^{238}Pu -Konzentrationen in der Umgebungsluft des Forsthauses, welche verwendet wurden zur Berechnung des Ausbreitungsfaktors

Probenahme	Emissionsrate in $\mu\text{Ci}/\text{Monat}$	Konzentration in aCi/m^3	Ausbreitungsfaktor in $\frac{\text{s}}{\text{m}^3} \cdot 10^6$
<u>1977</u>			
Juni	168	117 ± 35	1,81 ± 0,54
Juli	6,23	22,0 ± 5,5	9,47 ± 2,37
August	29,1	45,4 ± 2,2	4,16 ± 0,22
September	1,64	16,3 ± 3,4	2,58 ± 0,54
Oktober	10,6	24,8 ± 1,4	6,24 ± 0,36
November	132	16,1 ± 7,0	0,32 ± 0,13
Dezember	255	9,7 ± 5,4	0,10 ± 0,06
<u>1978</u>			
Januar	26,1	10,1 ± 2,4	1,08 ± 0,22
Februar	42,7	13,1 ± 5,6	0,76 ± 0,29
März	33,6	43 ± 19	3,44 ± 1,51
April	114	48 ± 12	1,08 ± 0,27
Mai	49,5	12,7 ± 9,4	0,69 ± 0,51
Juni	11,6	-	-
Juli	29,7	23,6 ± 9,0	2,15 ± 0,79
August	5,51	17,9 ± 7,9	8,69 ± 3,87
September	5,91	11,6 ± 1,2	5,11 ± 0,54
Oktober	3,93	5,9 ± 1,5	4,02 ± 1,00
November	5,09	3,9 ± 3,4	1,75 ± 1,75
Dezember	3,90	3,9 ± 2,9	2,65 ± 1,97
<u>1979</u>			
Januar	1,79	7,1 ± 2,2	10,62 ± 3,22
Februar	3,68	1,8 ± 1,4	1,18 ± 0,93
März	2,12	4,3 ± 3,6	5,45 ± 4,58
April	14,3	4,4 ± 1,1	0,81 ± 0,20
Mai	16,1	2,0 ± 2,0	0,33 ± 0,33
Juni	53,9	12,3 ± 4,4	0,59 ± 0,21
Juli	8,23	22,8 ± 21,3	7,46 ± 6,97
August	11,0	39,4 ± 8,6	9,61 ± 2,10
September	31,8	12,4 ± 5,0	1,01 ± 0,41

2. Die Deposition von Plutonium auf Gras und anderen Pflanzen

2.1 Die Deposition von Aerosolen auf Pflanzen

Als allgemeines Konzept der Deposition von radioaktiven Aerosolen auf Pflanzen werden folgende Zusammenhänge angenommen: Die Deposition $D_F(t)$ in Ci/m^2 ist proportional zur Aktivitätskonzentration C_L in Ci/m^3 . Der Proportionalitätsfaktor hat die Dimension m/s und wird als Depositionsgeschwindigkeit v_G bezeichnet. Von den abgelagerten Aerosolen wird ein Teil entfernt durch Reiben der Pflanzen aneinander, durch Absterben einzelner Teile, durch Regen und Tau, durch Wind und durch Abblättern der Cuticula. Es wird um so mehr Aktivität/ m^2 entfernt, je mehr deponiert worden ist. Für den Depositionsprozess (4) und den Dekontaminationsprozess (5) gelten die folgenden Gleichungen:

$$\frac{dD_F(t) \left[\frac{Ci}{m^2} \right]}{dt \quad [s]} = v_G \left[\frac{m}{s} \right] \cdot C_L \left[\frac{Ci}{m^3} \right] \quad (4)$$

$$\frac{dD_F(t) \left[\frac{Ci}{m^2} \right]}{dt \quad [s]} = -\lambda_{eff} [s^{-1}] \cdot D_F(t) \left[\frac{Ci}{m^2} \right] \quad (5)$$

Dabei versteht man unter $\lambda_{eff} = \ln 2 / t_{1/2eff}$. Die Zeit $t_{1/2eff}$ wird als effektive Halbwertszeit der Aktivität auf der Pflanze bezeichnet. Die Summe der beiden Gleichungen gibt den Gesamtprozess wieder. Integriert man, erhält man folgenden Zusammenhang:

$$D_F(t) = \frac{v_G \cdot C_L}{\lambda_{eff}} \left[1 - e^{-\lambda_{eff} \cdot t} \right] \quad (6)$$

$D_F(t)$ ist dabei die Kontamination in Ci/m², die zur Zeit t vorliegt. Dividiert man beide Seiten durch den Bewuchs F in kg Gras/m² Boden, dann erhält man für die Deposition, bezogen auf kg Gras $D_M(t)$:

$$D_M(t) = \frac{v_G \cdot C_L}{\lambda_{\text{eff}} \cdot F} \left(1 - e^{-\lambda_{\text{eff}} \cdot t} \right) \text{ in } \frac{\text{Ci}}{\text{kg}} \quad (7)$$

Im Gleichgewichtszustand, d. h., wenn Deposition und Dekontamination pro Zeiteinheit gleich groß sind, erhält man:

$$D_{M,G} = \frac{v_G \cdot C_L}{\lambda_{\text{eff}} \cdot F} \quad (8)$$

Mißt man die Deposition von Aktivität pro kg Gras, setzt aus [7] für $F = 0,85$ kg Frischgewicht Gras/m², für ein Verhältnis Naßgewicht Gras/Trockengewicht Gras = 5 und für $t_{1/2\text{eff}} = 14$ d, so kann v_G mit der gemessenen Luftkontamination berechnet werden.

14 d für $t_{1/2\text{eff}}$ ist der Meßwert, der heute als der beste Wert für die biologische Halbwertszeit von Aerosolen auf Gras angesehen wird. Da die physikalische Halbwertszeit von Pu lange ist, ist die biologische Halbwertszeit gleich der effektiven Halbwertszeit. Im Südschwarzwald, der als Nullpegel angenommen worden ist, wurde eine Untersuchung verschiedener Wildpflanzen auf Kontamination mit Plutoniumaerosolen durchgeführt. Bei diesen Untersuchungen wurde außerdem ein Bioindikator für Plutonium gesucht und gefunden. Nachdem auf diesem Weg die Unterschiede verschiedener Pflanzenarten beobachtet wurden, wurden dann an ein und derselben Stelle, in Durlach bei Karlsruhe, in vierteljährlichen Abständen Gras- und Kiefernadelproben gesammelt und auf Plutonium untersucht. Dadurch wurde die Streuung in einer Pflanzenart gemessen. Abschließend wurde in der Nähe der WAK gleichzeitig die Plutoniumkontamination von Gras und Luft gemessen und daraus die Depositionsgeschwindigkeit für Plutoniumaerosole auf Gras berechnet.

2.2 Die auf Wildpflanzen abgelagerte $^{239+240}\text{Pu}$ -Aktivität

Im Juni 1978 wurde im Südschwarzwald, Menzenschwand, eine Reihe von Pflanzenproben genommen. Die $^{239+240}\text{Pu}$ -Gehalte sind in Tabelle 6 wiedergegeben. Von den verschiedenen Teilen einer Fichte ragt vor allem die Rinde mit 12,6 fCi/g Trockensubstanz heraus. Es ist daher anzunehmen, daß die rauhe Oberfläche der Fichtenrinde zu einer erhöhten Ablagerung der plutoniumhaltigen Aerosole führt. Das Harz enthält zwar eine kleine Plutoniumaktivität, da nur 1 g Asche von 600 g Trockensubstanz zurückbleiben, ist aber die Veraschung hier ein besonders wirkungsvoller Konzentrierungsschritt und erleichtert die Untersuchung ganz besonders dann, wenn die Analytik für große Aschenmengen nicht beherrscht wird. Unterschiede zwischen Fichten und Tannen konnten nicht festgestellt werden.

Während Brunnenkresse und Lupine sich durchaus in das Bild der allgemeinen Pflanzenkontamination einfügen, ist Huflattich wesentlich höher kontaminiert. Die Ursache dürfte hier die Behaarung der gesamten Pflanze sein, die Anlaß zu einer wesentlich geringeren Dekontamination nach erfolgter Deposition der Plutonium-Aerosole gibt. Gras und Heu sind gleich kontaminiert.

Die dritte Pflanzengruppe, die untersucht wurde, waren Farn, Schachtelhalm, Moos und Flechte. Von den Flechten war bekannt [8], daß sie Plutonium wie auch andere Aerosolaktivitäten nennenswert anreichern. Die im Südschwarzwald gesammelte Baumflechte fügt sich mit einer Kontamination von 110 fCi $^{239+240}\text{Pu}$ /g Trockensubstanz durchaus in dieses Bild. Überraschend und bisher nicht bekannt war die Tatsache, daß Moos mindestens im gleichen Maße eine Konzentrierung von Plutonium aus der Umgebungsluft vornimmt. Auch hier dürften die hohen Kontaminationen weniger auf eine höhere Deposition als vielmehr auf eine nennenswert geringere Dekontamination der Pflanzen zurückzuführen sein. Deshalb werden in Baumflechten und Moos zwei typische Bioindikatoren für Plutonium in der Umwelt gesehen. Da Baumflechten aber nicht überall vorkommen, und Steinflechten bei der Probenahme nennenswerte Schwierigkeiten bereiten, empfiehlt es sich, das Moos als einen vorzüglichen, überall anzutreffenden und leicht zu sammelnden Bioindikator für Plutonium zu verwenden.

Tabelle 6: $^{239+240}\text{Pu}$ -Kontamination von Wildpflanzen aus dem Südschwarzwald. Probenahme: Juni 1978

Pflanzenart	$^{239+240}\text{Pu}$ -Kontamination in fCi/g Trockensubstanz
Fichte: Nadeln	2,5 ± 0,5
Rinde	12,6 ± 1,1
Holz	2,0 ± 0,3
Harz	0,90 ± 0,05
Junge Fichte, Nadeln	7,5 ± 0,7
Tanne, Nadeln	2,3 ± 0,5
Tanne, Nadeln	1,7 ± 0,2
Buche, Blätter	9,9 ± 1,1
Brunnenkresse	3,3 ± 0,3
Huflattich	29,6 ± 2,4
Lupine	1,9 ± 0,3
Gras	2,1 ± 0,4
Heu ¹⁾	1,7 ± 0,3
Farn	4,3 ± 0,5
Schachtelhalm	8,9 ± 1,2
Moos auf Buche	144 ± 14
Moos auf Stein	500 ± 25
Baumflechte	110 ± 9

¹⁾ Probenahme Dezember 1977

In wenigen Fällen lag die ^{238}Pu -Aktivität der Pflanzen über der Nachweisgrenze. Die gemessenen $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ -Verhältnisse in diesen Pflanzen werden in Tabelle 7 wiedergegeben.

Da das Aktivitätsverhältnis $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ für reinen Kernwaffenfallout nur 0,023 beträgt, muß für das Harz der Fichte, das Moos und die Baumflechte angenommen werden, daß sie Langzeitsammler des Falloutplutoniums darstellen. Die Isotopenverhältnisse der Fichtennadeln und der Fichtenrinde können verglichen werden mit den zwischen Juli und Oktober 1978 in der Umgebungsluft gemessenen Verhältnissen. Dies bedeutet, daß diese beiden Probenmaterialien aktuelle Kontaminationssammler sind und die Verweilzeit der Plutonium-Aerosole auf Rinde und Nadeln relativ kurz ist, verglichen mit der von Harz.

2.3 Die auf Kiefernnadeln und Gras aus Durlach abgelagerten $^{239+240}\text{Pu}$ -Aerosole

Grasproben und Kiefernnadelproben aus der Umgebung von Durlach wurden gesammelt, getrocknet und verascht. Die Proben wurden auf Plutonium analysiert. Die Ergebnisse, die zwischen Mitte 1975 und 1978 gewonnen wurden, werden in Abbildung 2 wiedergegeben.

Insgesamt streuen die Plutoniumkonzentrationen im Trockengewicht der Pflanzen über etwa eine Größenordnung. Sieht man aber von einigen wenigen Proben ab, die im Winter genommen wurden, so verbleibt noch eine Streuung um den Faktor 2. Als Mittelwert darf dann bei beiden Pflanzen mit 3 fCi/g Trockensubstanz gerechnet werden. Die Ursache für die zu hohen Werte im Winter ist nicht nur dadurch erklärt, daß man für Gras einen wesentlichen Anteil von totem Pflanzenmaterial annimmt. Auch ein Kiefernnadelwert liegt relativ hoch; evtl. ist bei allen Pflanzen der Wassergehalt in der kalten Jahreszeit wesentlich geringer als in der warmen. Das Verständnis wird noch wesentlich erschwert, wenn man bedenkt, daß Falloutkontaminationen ihr Maximum im Frühling bis Frühsommer haben und im Winter minimale Konzentrationen in der Umwelt gemessen werden.

Tabelle 7: Das Aktivitätsverhältnis $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ in verschiedenen Pflanzenarten.

Pflanzenart	Verhältnis $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
Junge Fichte, Nadeln	$0,17 \pm 0,05$
Fichte, Rinde	$0,15 \pm 0,06$
Fichte, Harz	$0,03 \pm 0,01$
Moos auf Stein	$0,034 \pm 0,007$
Baumflechte	$0,058 \pm 0,014$
Umgebungsluft, Juli bis Oktober 1978	$0,24 \pm 0,14$
Kernwaffenfallout	$0,023$ [3]

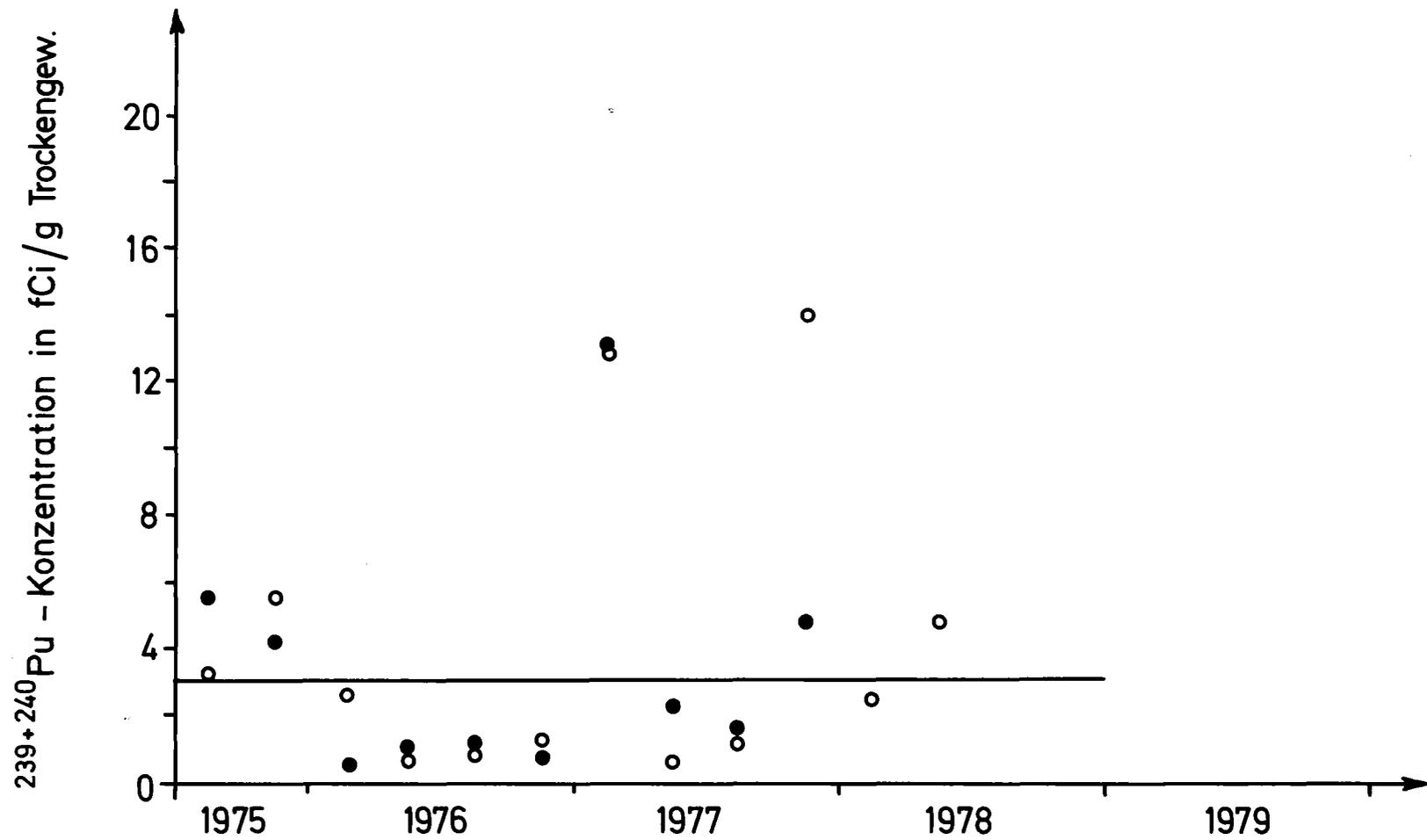


Abb.2: Veränderung der $^{239+240}\text{Pu}$ -Fallout-Kontamination von Kiefernadeln und Grasproben aus der Umgebung Durlach als Funktion der Zeit
 ○ Kiefernadeln ● Gras

2.4 Depositionsgeschwindigkeit von Plutonium-Aerosolen auf Gras

In der Zeit von Juni bis Oktober 1977 und von Mai bis September 1978 wurden in der Nähe des Forsthauses, nordöstlich der WAK, an der gleichen Stelle, an der auch Messungen der Luftkonzentration von Plutonium durchgeführt wurden, 6 Grasproben genommen. Eine weitere Grasprobe wurde im Juni 1978 im Südschwarzwald, Menzenschwand, genommen. Alle Grasproben wurden getrocknet, verascht und auf Plutonium analysiert.

Die Ergebnisse der Plutoniumkontamination der Grasproben und die zur gleichen Zeit gemessenen Luftkonzentrationen wurden getrennt für die Isotope ^{238}Pu und $^{239+240}\text{Pu}$ in der Tabelle 8 gegenübergestellt.

Unter Verwendung der Formel (8) und der in [7] angegebenen Daten für $F = 0,85 \text{ kg Gras/m}^2$, $t_{1/2\text{eff}} = 14\text{d}$ und dem Naßgewicht-/Trockengewicht-Verhältnis für Gras = 5, wurden die Depositionsgeschwindigkeiten der Plutonium-Aerosole auf Gras berechnet. Die Ergebnisse sind in Tabelle 9 wiedergegeben.

Die Mittelwerte der Depositionsgeschwindigkeit liegen bei 1,7 bzw. 1,4 cm/s, je nachdem, ob ^{238}Pu oder $^{239+240}\text{Pu}$ zur Auswertung herangezogen wurde. Diese Mittelwerte stimmen leidlich überein, sind aber im Durchschnitt um etwa den Faktor 15 höher als der zur Zeit in [7] empfohlene Wert von 0,1 cm/s, und damit ist die zu erwartende Plutoniumkontamination einer Weide ebenfalls um den gleichen Faktor höher, als nach [7] berechnet wird.

Die Depositionsgeschwindigkeit v_G hängt nach (8) ab vom Verhältnis der auf der Pflanze deponierten Aktivität/Pu-Luftkonzentration, von Bewuchs in kg/m^2 und von der effektiven Halbwertszeit. Das Verhältnis $D_{M,G} / C_L$ wurde durch zwei Plutoniummessungen, bei denen die gleiche ^{236}Pu -Aktivität zur Ausbeutenbestimmung verwendet wurde, gemessen. Selbst wenn der absolute Wert des zur chemischen Ausbeutenbestimmung herangezogenen Leit isotops ^{236}Pu nicht exakt richtig sein sollte, wird das Verhältnis von Deposition und Luftkonzentration davon nicht berührt. Das hier verwendete Flächenge-

Tabelle 8: Luft- und Graskontamination mit ^{238}Pu und $^{239+240}\text{Pu}$ in der Umgebung der WAK

Probenahme	^{238}Pu -Kontamination		$^{239+240}\text{Pu}$ -Kontamination	
	Luft in aCi/m ³	Gras in fCi/g tr	Luft in aCi/m ³	Gras in fCi/m ³ tr
Juni 1977	127 ± 39	3,5 ± 0,5	≤57	2,5 ± 0,3
September 1977	16,3 ± 3,4	3,8 ± 0,4	42,8 ± 5,6	2,6 ± 0,3
Oktober 1977	24,8 ± 1,4	2,1 ± 0,1	98 ± 13	5,7 ± 0,2
Mai 1978	≤20	1,0 ± 0,4	27,1 ± 5,4	2,6 ± 0,7
Juni 1978	23,6 ± 9,0	2,5 ± 0,8	50,2 ± 5,5	5,6 ± 1,1
September 1978	11,8 ± 1,4	3,5 ± 1,2	15,9 ± 1,6	8,0 ± 1,6
Juni 1978 ¹⁾	5,7 ± 2,8 ²⁾	1,7 ± 0,3	58,1 ± 4,7	2,2 ± 0,4

¹⁾ Probenahme im Südschwarzwald, ²⁾ Mittelwert Juni - Oktober 1978

Tabelle 9: Die Depositionsgeschwindigkeit von Pu-Aerosolen auf Gras

Probenahme	Depositionsgeschwindigkeit in cm/s	
	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$
Juni 1977	0,27	≥0,43
September 1977	2,3	0,60
Oktober 1977	0,84	0,57
Mai 1978	≥0,49	0,95
Juni 1978	1,05	1,07
September 1978	2,9	5,0
Juni 1978 ¹⁾	2,9	0,37
Mittelwert ²⁾	1,7 ± 0,5	1,4 ± 0,7

¹⁾ Probenahme im Südschwarzwald, ²⁾ Die ≥-Werte wurden nicht berücksichtigt

wicht von $0,85 \text{ kg Gras/m}^2$ gilt sicher nicht für jede Weide. Eine Abweichung größer als um den Faktor 2 ist allerdings hier kaum vorstellbar. Über die tatsächliche effektive Halbwertszeit von Plutonium-Aerosolen aus der WAK auf dem für die hier durchgeführten Analysen verwendeten Gras, kann keine sichere Auskunft gegeben werden. Aus (8) kann daher exakt nur abgeleitet werden, daß entweder v_G oder $t_{1/2\text{eff}}$ verantwortlich sind für den Faktor 15. Eine wesentlich höhere effektive Halbwertszeit von Plutonium-Aerosolen auf Gras als 14 d ist wenig wahrscheinlich, da dann die Plutoniumkontamination von Gras in einem wesentlichen Teil der Grünfütterperiode linear mit der Zeit zunehmen würde. Ein solcher Sachverhalt ist allerdings aus der Literatur nicht bekannt.

Die starken Unterschiede zwischen den Depositionsgeschwindigkeiten, die durch Auswertung der ^{238}Pu -Konzentrationen bzw. der $^{239+240}\text{Pu}$ -Konzentrationen erhalten werden, sind teilweise erklärbar durch die unterschiedliche Herkunft ^{238}Pu -reicher und ^{238}Pu -armer Aerosole. Dieser Effekt macht sich besonders stark bemerkbar bei den im Südschwarzwald gewonnenen Werten. Dort ist das ^{238}Pu auf das Verglühen einer Satellitenbatterie zurückzuführen, die 17 000 Ci ^{238}Pu enthielt, während die $^{239+240}\text{Pu}$ -Aktivität auf Kernwaffenexplosionen zurückgeführt werden muß [9]. Die Streuung der Einzeldaten erstreckt sich jedenfalls über mehr als eine Größenordnung. Dies ist ein starker Hinweis darauf, daß bei Verwendung des hier beschriebenen Modells nennenswerte Vereinfachungen in Kauf genommen wurden. Eine Verfeinerung des Modells ist für ein wirkliches Verständnis des komplizierten Mechanismus der Deposition von Aerosolen unter allen Umständen notwendig.

3. Die Plutoniumverteilung in Böden unterschiedlicher Herkunft

3.1 Vertikalverteilung von Plutonium im Boden einer Weide im Südschwarzwald

Auf einer Wiese, die seit jeher als Weide benutzt und niemals für andere landwirtschaftliche Zwecke herangezogen worden ist, wurde eine Bodenprobe genommen. Dabei wurde ein zylindrisches Rohr von 30 cm Länge und 10 cm Durchmesser verwendet. Es wurden zwei Einstiche bis zu 30 cm Tiefe vorgenommen. Diese Erdzylinder wurden dann in Schichten von 3 bis 4 cm aus dem Gerät genommen, die Schichten der beiden Einstiche vereinigt und so die Proben zur Untersuchung der Vertikalverteilung von Plutonium des Kernwaffenfallouts im Boden erhalten. Die Proben wurden getrocknet, die Steine durch Sieben entfernt und der Rest verascht. Einem Gramm Trockengewicht entsprachen $0,81 \pm 0,05$ g Asche. 100 Gramm dieser Proben wurden auf Plutonium untersucht.

Die Ergebnisse der Analysen sind in Abb. 3 in fCi/g Trockensubstanz und in nCi/m² Boden dargestellt. Die Tiefenverteilung des Plutoniums im Boden dieser Weide entspricht der Verteilung im ungestörten Boden [10]. Die höchste Konzentration von ²³⁹⁺²⁴⁰Pu findet man in der obersten Schicht. Sie beträgt 53 fCi/g Trockensubstanz. Diese Konzentration nimmt mit der Tiefe des Bodenprofils rasch ab. ²³⁸Pu konnte nur in der obersten Schicht signifikant gemessen werden. Seine Konzentration lag um den Faktor 17 unter der ²³⁹⁺²⁴⁰Pu-Konzentration und entspricht damit durchaus den Erwartungen für den Kernwaffenfallout. Die Flächenbelegung von ²³⁹⁺²⁴⁰Pu beträgt 2,3 nCi/m² Boden. In der Literatur [10] wird max. 2,6 nCi/m² für ungestörten Boden angegeben. Der hier gefundene etwas kleinere Wert läßt sich zwanglos erklären durch die Verwendung der Probenahmestelle als Weide. Da Plutonium-Aerosole sich wie andere Bestandteile des Kernwaffenfallouts primär am Gras ablagern und erst nach dessen Absterben dem Boden zugeführt werden, führt die Verwendung als Weide unweigerlich zu einer Reduzierung des zugeführten Plutoniums.

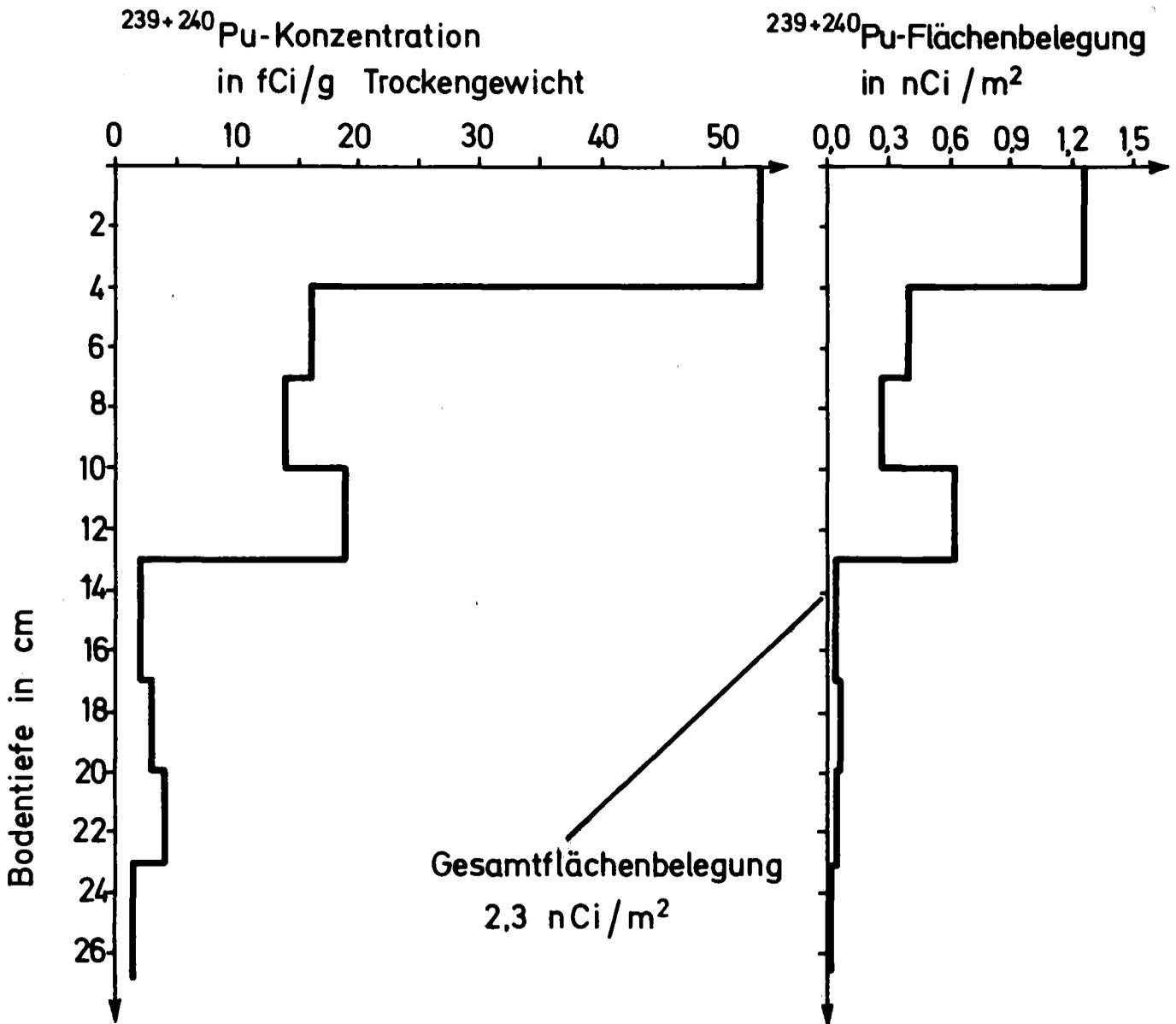


Abb. 3 : $^{239+240}\text{Pu}$ -Konzentration und Flächenbelegung in einer Bodenprobe aus dem Südschwarzwald - Menzenschwand

3.2 Vertikalverteilung von Plutonium im Boden aus der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe

In der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe wurden zwei Bodenproben zur Bestimmung von Vertikalprofilen genommen. Die erste Probe stammt vom Hauptbeaufschlagungsgebiet durch die Abluftfahne der WAK in 400 m NNO und dem Maximum der Häufigkeit der Windrichtungsverteilung, und die zweite Probe stammt vom Minimum der Häufigkeit der Windrichtungsverteilung in SW und in 10 km Entfernung vom WAK-Abluftkamin. Es wurden jeweils 10 Einstiche durchgeführt und die einander entsprechenden Schichten der Probenahmezyylinder gemischt. Die Probenvorbereitung erfolgte wie oben beschrieben.

Da der Raum in 400 m Entfernung von der WAK mit einem etwa 20jährigen Wald bedeckt ist, wurde angenommen, daß die Plutoniumdeposition von Kernwaffenfallout ungestört vorliegen wird. Die Ergebnisse der Analysen für $^{239+240}\text{Pu}$ und ^{238}Pu in fCi/g Trockensubstanz und nCi/m² Boden sind in Abb. 4 und 5 wiedergegeben. Der maximale Wert liegt zwischen 2 und 6 cm. Darunter ist das Plutonium homogen verteilt. Die Flächenbelegung von 1,3 nCi/m² $^{239+240}\text{Pu}$ stellt etwa die Hälfte der nach den Kernwaffenfalloutmessungen in ungestörten Bodenproben zu erwartenden Flächenbelegung dar. Die gleichzeitig gemessenen 0,3 nCi ^{238}Pu /m² Boden sind vor allem auf die Schicht höchster Kontamination von 2 bis 6 cm zurückzuführen. Aus diesen Ergebnissen muß geschlossen werden, daß der Wald nach den wichtigsten Kernwaffenexperimenten 1961/62 gepflanzt wurde und dabei der bereits vorhandene Fallout tief in den Boden eingebracht wurde. Das in der obersten Schicht von 2 bis 6 cm gefundene ^{238}Pu und $^{239+240}\text{Pu}$ entspricht der Mischung eines Teiles des Fallouts und der nach 1966 abgelagerten ^{238}Pu -Aktivität, verursacht durch den SNAP/9A-Unfall [5]. Der Anteil der Plutoniumemissionen der WAK an der Gesamtplutoniumaktivität des Bodens dürfte einige wenige Prozente der gemessenen Aktivität ausmachen. Dies kann errechnet werden aus den insgesamt aus der WAK emittierten Alphaaktivitäten von 34,3 mCi und dem lokal gemessenen Ausbreitungsfaktor von $1 \cdot 10^{-6}$ s/m³.

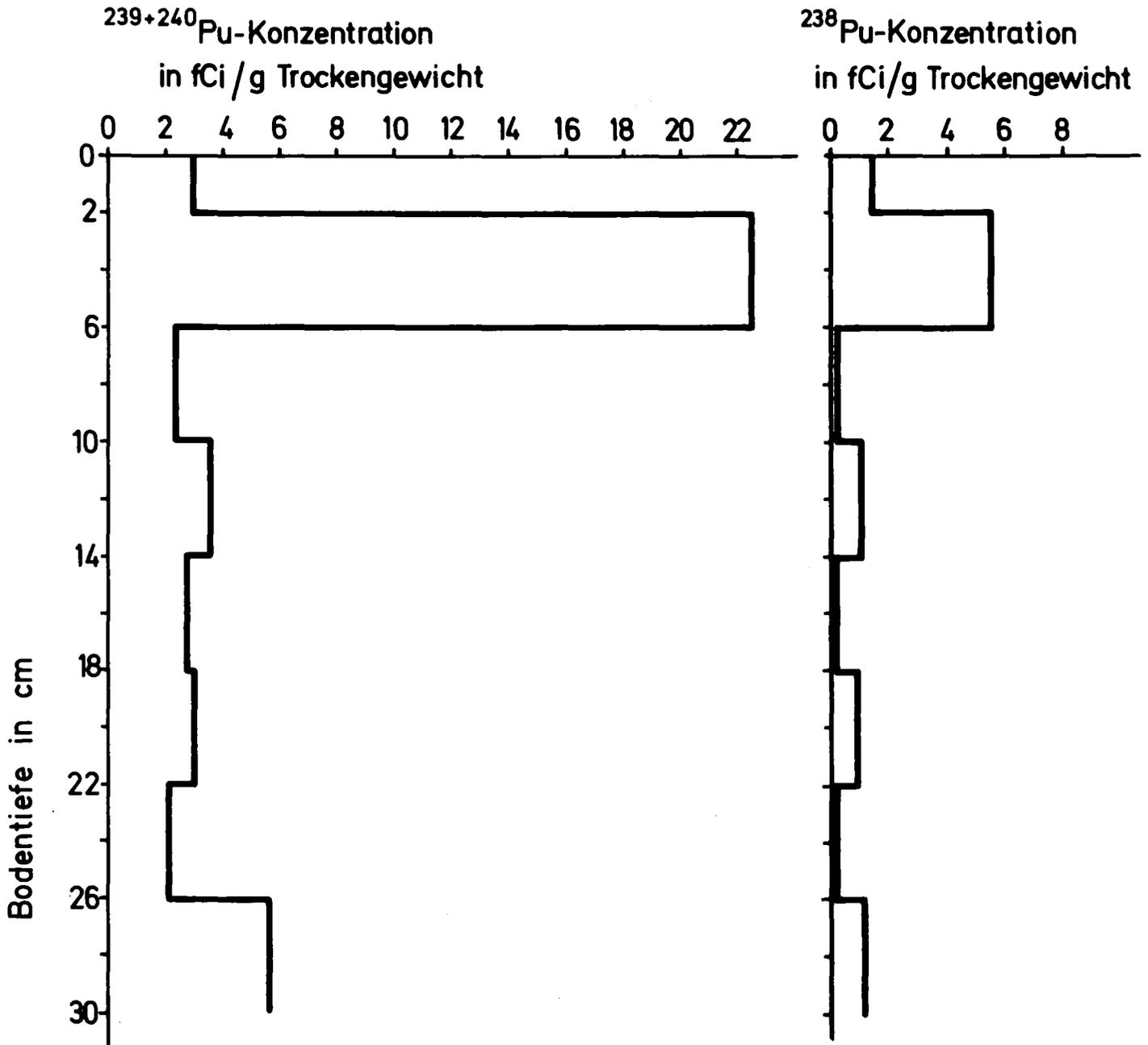


Abb.4 : ²³⁹⁺²⁴⁰Pu- und ²³⁸Pu-Konzentration in einer Bodenprobe vom Hauptbeaufschlagungsgebiet durch die Abluftfahne der WAK, 400m nach NNO vom WAK-Kamin

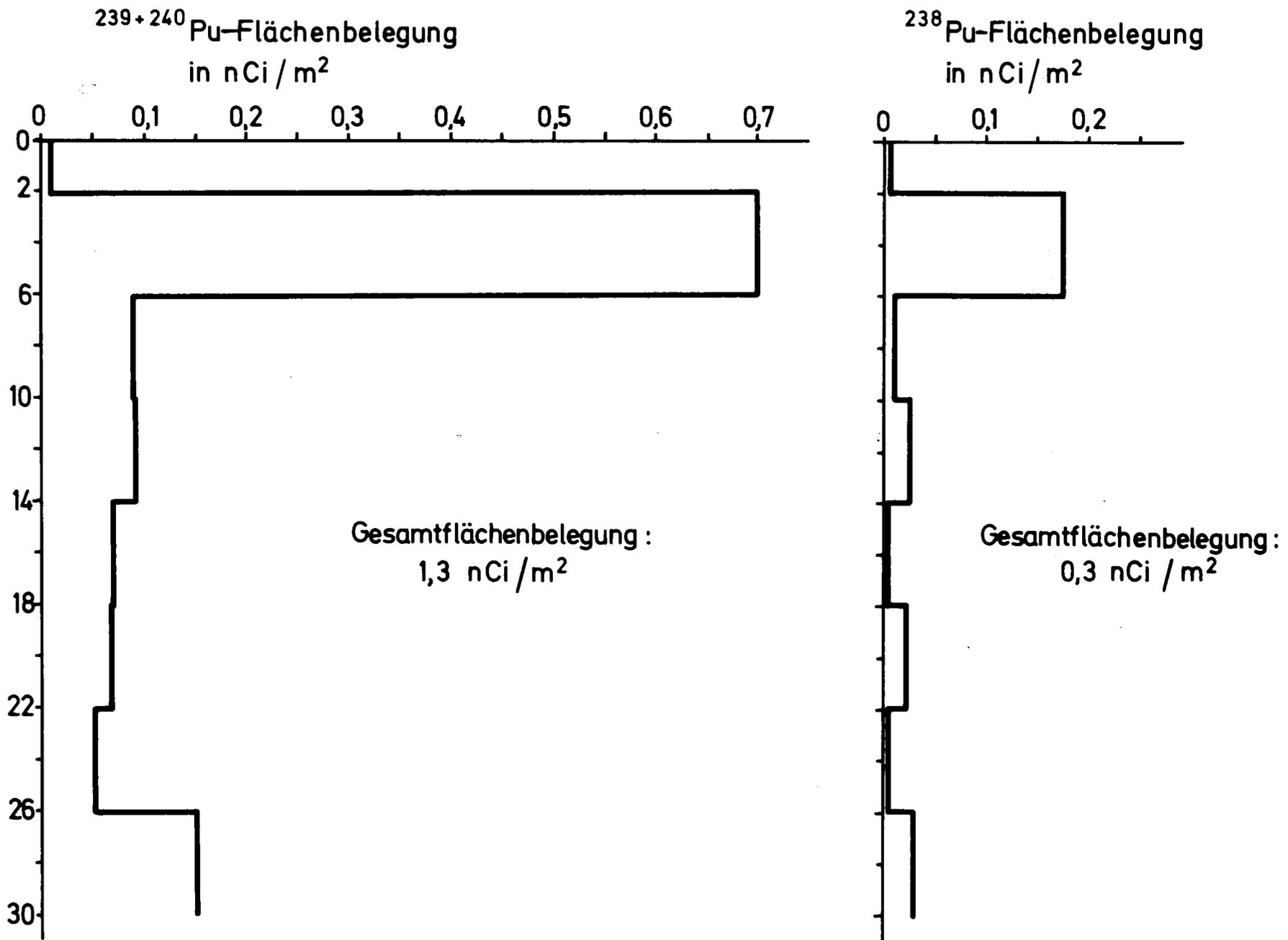


Abb.5: $^{239+240}\text{Pu}$ - und ^{238}Pu -Flächenbelegung in einer Bodenprobe vom Hauptbeaufschlagungsgebiet durch die Abluftfahne der WAK, 400m nach NNO vom WAK-Kamin

In Abb. 6 werden die Ergebnisse der als Vergleichprobe geplanten Probe aus 10 km Entfernung von der WAK angegeben. Hier erfolgte die Durchmischung des Bodens wesentlich später als im Wald in 400 m Entfernung von der WAK. Auch hier wird nur etwa die Hälfte des insgesamt aus dem Kernwaffenfallout zu erwartenden Plutoniums bis zu 30 cm Tiefe gefunden. Da die Probenahme einige Meter neben einer Straße erfolgte, muß angenommen werden, daß während des Straßenbaus auch an der Probenahmestelle tiefe Umschichtungen erfolgten.

4. Plutonium in Tieren der Umgebung der WAK

Nach der Emission aus einer kerntechnischen Anlage und der Verdünnung der Plutonium-Aerosole während des Ausbreitungsprozesses deponieren die Aerosole auf Pflanzen und am Boden. In den Boden werden sie durch die Niederschläge eingeschwenmt. Die Pflanzen dienen Wild- und Haustieren zur Nahrung. Diese Aufnahme von plutoniumkontaminierten Pflanzen führt zu einer Plutoniumkontamination der Tiere. Um das Ausmaß der Plutoniumkontamination von Tieren aus der Umgebung der WAK zu studieren, wurden Organe von Damwild und Organe von Kaninchen auf Plutonium analysiert.

4.1 Der $^{239+240}\text{Pu}$ -Gehalt von Organen des Damwildes

In der Umgebung des Kernforschungszentrums liegt eine ausgedehnte Waldfläche, in der Damwild heimisch ist. Bei Verkehrsunfällen werden einzelne Tiere getötet. Organe dieser Tiere wurden dem Verfasser vom für diesen Raum verantwortlichen Förster zur Verfügung gestellt. Die Organe wurden getrocknet und verascht, die Asche auf Plutonium analysiert. Die Ergebnisse werden in Tabelle 10 wiedergegeben.

Der höchste Wert wurde in der Leber gefunden. An zweiter Stelle stehen die Werte der Nieren. Diese Ergebnisse sind im Einklang mit der allgemeinen Erfahrung, daß Schwermetalle in Leber, Nieren (und Knochen) hauptsächlich abgelagert werden [11]. In Herz, Milz und Gonaden wurden wesentlich niedrigere Werte gefunden als in den genannten Organen. Die Untersuchung der Gonaden wurde durchgeführt, da nach [12] Kontaminationen der Gonaden mit Plutonium, Americium und Uran gefunden wurden, die mit zu den höchsten Kontaminationen

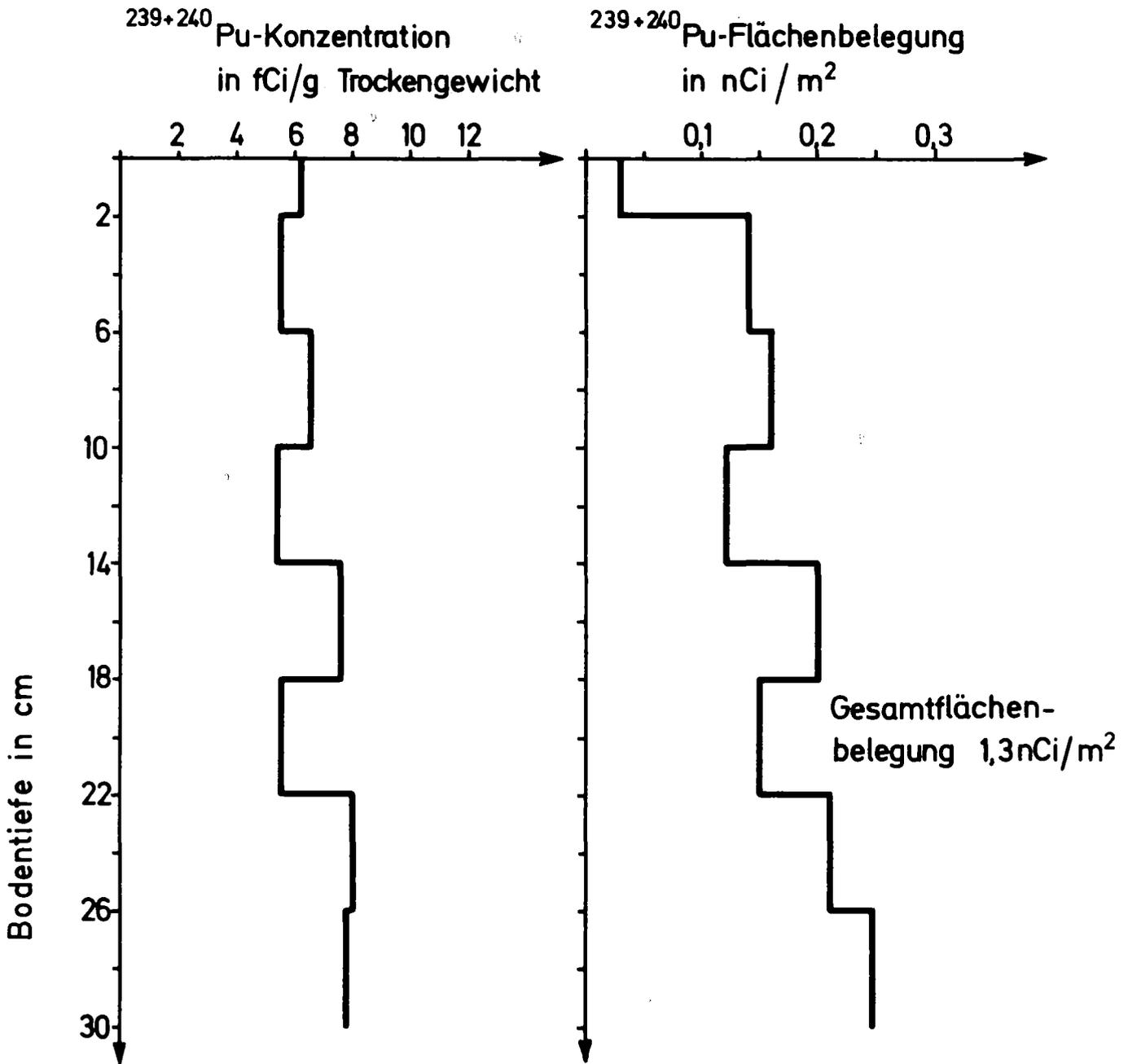


Abb. 6 : $^{239+240}\text{Pu}$ -Konzentration und -Flächenbelegung im Boden, 10 km südwestlich von der WAK (Minimum der Häufigkeit der Windrichtungsverteilung)

Tabelle 10: Die $^{239+240}\text{Pu}$ -Konzentrationen in Organen von Damwild

Probe Geschlecht / Organ	Probengewicht in g		$^{239+240}\text{Pu}$ -Konzentration in fCi/g frisch
	verascht	frisch	
männlich / Nieren	1,7	132	2,3
männlich / Herz	3,6	352	0,22
männlich / Milz	2,2	398	0,29
männlich / Leber	1,5	121	15,8
männlich / Gonaden	1,3	119	0,16
weiblich / Nieren	1,3	113	0,62

im Körper der Rinder gehörten. Die von diesen Verfassern beobachtete Tatsache kann aufgrund der Plutoniummessungen in den Gonaden eines Damhirsches nicht bestätigt werden. Der Vollständigkeit halber soll erwähnt werden, daß alle ^{238}Pu -Konzentrationen unter der Nachweisgrenze lagen und daß dies mit ein Beweis dafür ist, daß die Kontamination der hier untersuchten Organe eine Kontamination, verursacht durch Falloutplutonium, darstellt, das, verglichen mit dem WAK-Plutonium, nur wenig ^{238}Pu enthält. Dies entspricht dem großen Aktionsradius vom Damwild einerseits und dem kleinen Hauptbeaufschlagungsgebiet durch die Abluftfahne der WAK andererseits.

4.2 Die $^{239+240}\text{Pu}$ -Kontamination verschiedener Organe von Kaninchen

Um die Verteilung von Plutonium in verschiedenen Organen von Kaninchen zu messen, wurden am Gelände des Kernforschungszentrums Karlsruhe 10 Kaninchen geschossen und die einzelnen Organe entnommen. Die so erhaltenen Gesamtproben einzelner Organe wurden verascht und die Asche auf Plutonium analysiert. Die Ergebnisse sind in Tabelle 11 wiedergegeben.

Tabelle 11: $^{239+240}\text{Pu}$ -Konzentrationen in verschiedenen Organen von Kaninchen vom Gelände in und um das Kernforschungszentrum Karlsruhe.
 Probenahme: Herbst 1977; die Organe von 10 Tieren wurden gemeinsam analysiert

Organ	Probengewicht in g frisch	$^{239+240}\text{Pu}$ -Konzentration in fCi/g frisch
Herz	47	1,8
Lunge	95	≤0,4
Nieren	100	1,7
Milz	103	1,8
Leber	461	0,92
Fleisch	1279	0,40
Haut	1250	0,26
Oberschenkelknochen	198	4,2
Rückgrat	1150	3,8
Magen + Inhalt	711	0,44
Darm + Inhalt	2665	0,66

Die höchsten Werte wurden in den Oberschenkelknochen und im Rückgrat mit ca. 4 fCi/g Frischsubstanz gefunden. Die Leber- und Nierenwerte gehören zwar zu den hohen Ergebnissen, aber die Plutoniumkontamination von Herz und Milz ist noch höher. Die Haut, das Fleisch, der Magen plus Inhalt und der Darm plus Inhalt gehören zu den niedriger kontaminierten Organen. Überraschend ist, daß die Kontamination der Lunge den niedrigsten Wert aller Plutoniumkontaminationen der verschiedenen Organe darstellt. Da auch bei diesen Messungen kein ^{238}Pu gemessen werden konnte, muß angenommen werden, daß die Organkontamination der Tiere ebenfalls hauptsächlich auf Fallout-Plutonium zurückzuführen ist.

5. Plutonium in den Sedimenten des Altrheins

5.1 Das Längsprofil der Plutoniumkontamination der Sedimente des Altrheins

Das Abwasser des Kernforschungszentrums Karlsruhe und der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe wird nach den üblichen Techniken gereinigt: Destillation, Ionenaustausch und Mitfällung. Nachdem das so gereinigte Abwasser ein Klärwerk passiert hat, wird es in einen ehemaligen Seitenarm des Rheines, den sogenannten Altrhein, abgegeben. Im Altrhein wird das Wasser etwa 20 bis 22 km geleitet, bis es sich in den Rhein ergießt. Auf dieser Strecke lagern sich Radionuklide in den Sedimenten des Altrheines ab.

Das aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe abgegebene Abwasser wird monatlich auf Plutonium analysiert und aus der Abwassermenge und der Plutoniumkonzentration die insgesamt emittierte Plutoniumaktivität berechnet. In Abbildung 7 sind die monatlichen Plutoniumemissionsraten angegeben. Der jährliche Abwasserausstoß beträgt etwa $5 \cdot 10^5 \text{ m}^3$ [13].

Um über die Kontamination der Sedimente auf den ersten 2 km nach der Einleitung des Abwassers einen Überblick zu bekommen, wurden Sedimentproben 10 m, 20 m, 50 m, 100 m, 200 m, 500 m, 1 000 m und 2 000 m unterhalb der Abwassereinleitung und eine Probe als Untergrundwert des Kernwaffenfallouts oberhalb der Einleitung entnommen. Die Sedimente wurden getrocknet, verascht, gesiebt, gemahlen, gewogen und auf Plutonium analysiert. Die Ergebnisse sind in Abbildung 8 wiedergegeben. Daraus geht hervor, daß 10 m unterhalb der Einleitung eine relativ hohe Plutoniumkontamination vorliegt, die aber bereits 20 m nach der Einleitung wesentlich abgesunken ist. Trotzdem bleibt sie bis 2 km um den Faktor 2 bis 4 über dem Falloutuntergrund. Da der höchste Wert direkt nach Einleitung der Abwässer des Kernforschungszentrums Karlsruhe und der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe liegt, wurde hier eine Langzeituntersuchung der Plutoniumkontamination durchgeführt.

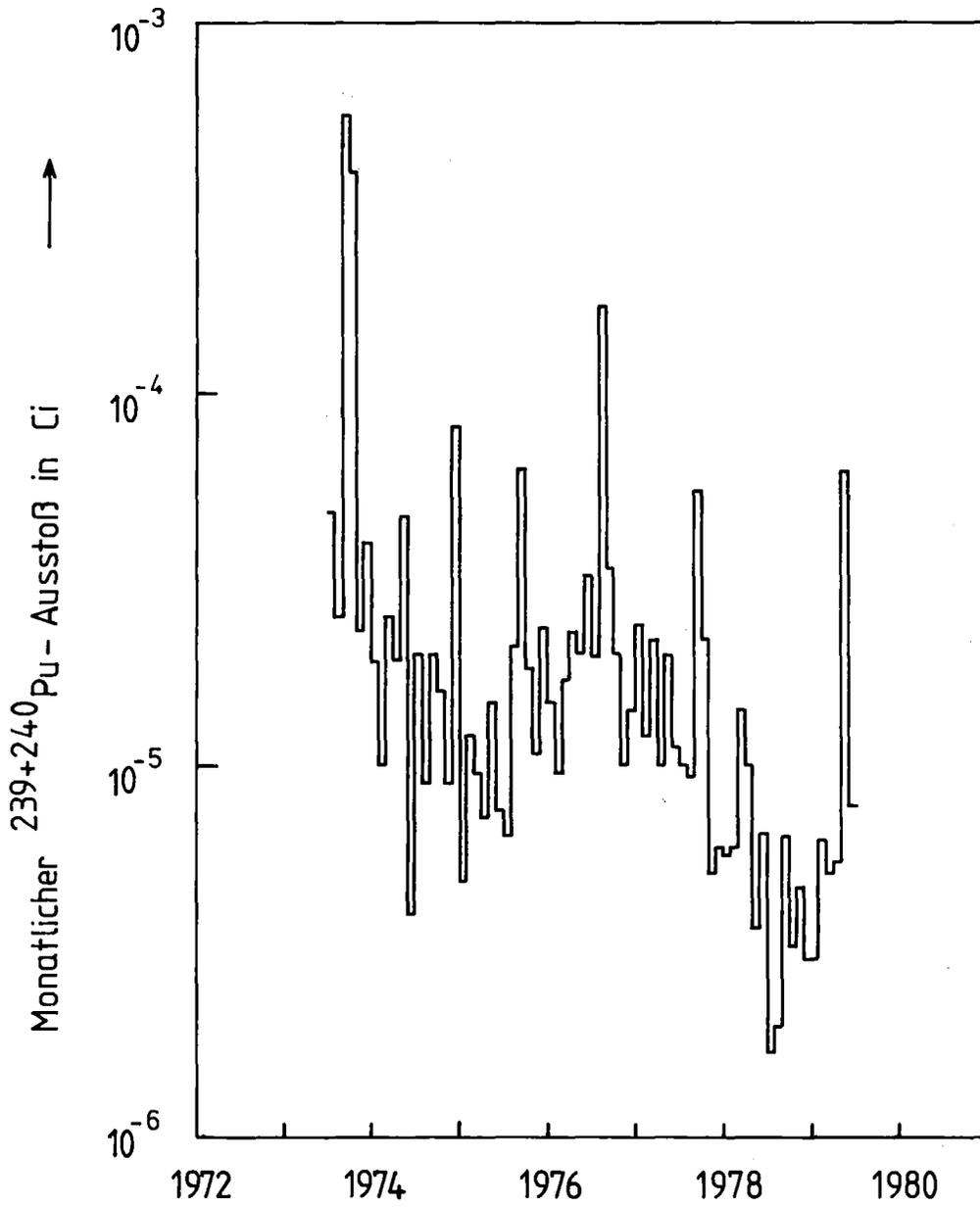


Abb.7: Monatliche $^{239+240}\text{Pu}$ -Emission mit Abwässern aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe

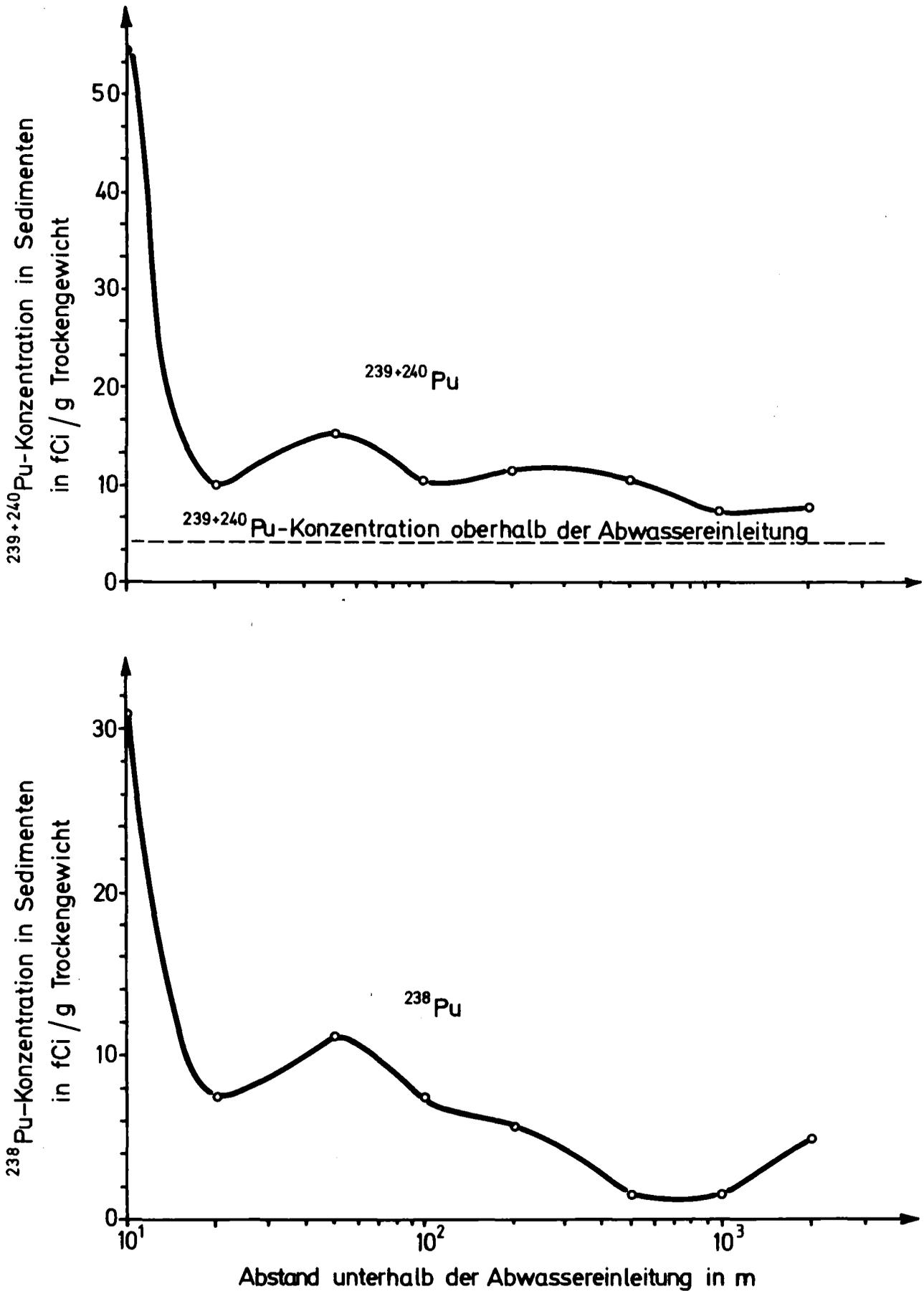


Abb. 8 : Das Längsprofil der Plutoniumkontamination der Sedimente des Altrheins

5.2 Die Plutoniumkontamination der Sedimente direkt unterhalb der Einleitung der Abwässer des KfK

Unterhalb der Einleitung der Abwässer des KfK wurden über mehrere Jahre vierteljährlich Sedimentproben entnommen. Sie wurden wie oben beschrieben aufgearbeitet und auf Plutonium analysiert. Die Ergebnisse sind in Form eines Stufendiagrammes in Abbildung 9 wiedergegeben. Die Plutoniumkontamination schwankt über etwa eine Größenordnung, und im allgemeinen sind die Konzentrationen von $^{239+240}\text{Pu}$ und von ^{238}Pu einander proportional. Eine Beziehung zwischen Abwasserkontamination und Sedimentkontamination kann nicht festgestellt werden. Wohl aber kann festgestellt werden, daß an der Stelle der Probenahme keine permanente Zunahme der Plutoniumkontamination erfolgt, sondern die Werte nach oben und unten schwanken. Dies bedeutet, daß am Ort der Probenahme nicht nur eine reine Sedimentation, sondern auch der Prozeß der Resuspension mit nachfolgendem Abtransport des Plutoniums von Bedeutung ist. Dies entspricht auch der Tatsache, daß an dieser Stelle das Wasser relativ stark bewegt ist und speziell bei Regenfällen eine Aufwirbelung des Schlammes zu erwarten ist.

5.3 Die Plutoniumanreicherung in Flußmuscheln

In [14] wird angegeben, daß sowohl Muschelfleisch als auch Muschelschalen eine Konzentrierung von Plutonium aus dem Wasser bewirken. Werte für die biologischen Akkumulationsfaktoren von 300 bis 600 werden angegeben. Daher sollte einerseits geprüft werden, ob dies auch mit den Flußmuscheln des Altrheines der Fall ist, und andererseits sollte damit die Eignung als Bioindikator für Plutonium untersucht werden. Ein biologischer Indikator für Plutonium in aquatischen Systemen ist deshalb von Interesse, da die Plutoniumkontamination der Flüsse im allgemeinen im Bereich von 0,1 bis 1 fCi/l liegt. Um in diesem Bereich Messungen durchführen zu können, muß man 20 bis 200 l Wasser entnehmen, eindampfen und dann analysieren. Um diese Arbeit zu vermeiden und eine Überwachung der Kontamination eines Flußsystems mit einfacheren Mitteln und Maßnahmen zu erreichen, wäre es wünschenswert, die biologische Voranreicherung mit auszunutzen zu können und dann nur eine geringere Menge an Probematerial zur Analyse zu verwenden.

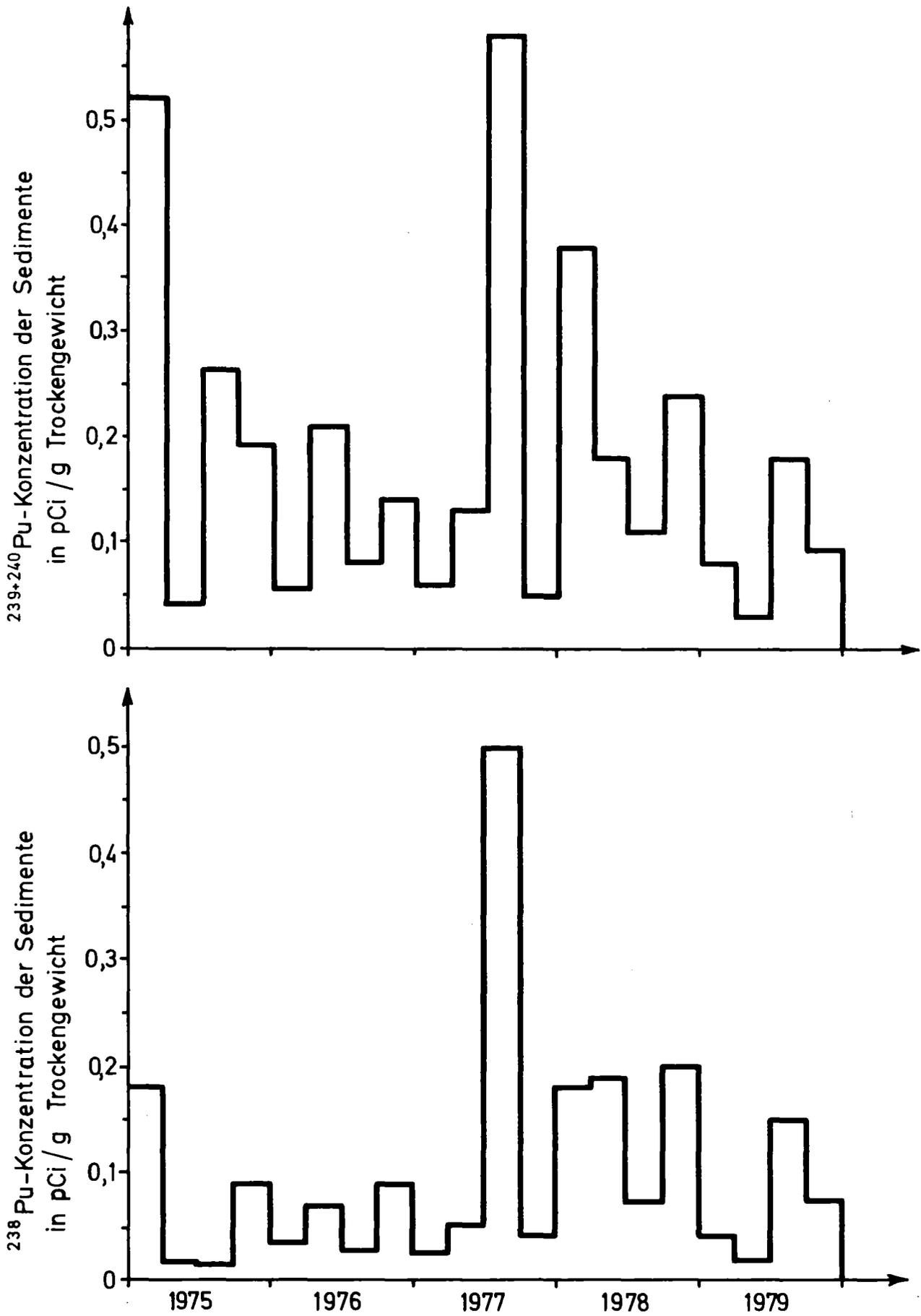


Abb.9: Plutoniumkonzentration in Sedimenten des Altrheins unterhalb der Abwassereinleitung

An einer Stelle des Altrheins, die nicht mit den Abwässern des Kernforschungszentrums Karlsruhe in Berührung kommt, wurden eine Wasserprobe von 50 l genommen und Muscheln gesammelt. Neben den lebenden Muscheln wurden auch die Schalen toter Muscheln aus dem Altrhein entnommen. Alle Proben wurden auf Plutonium analysiert. Die Ergebnisse sind in Tabelle 12 wiedergegeben. Im Einklang mit Messungen des Falloutplutoniums wurde der Pu-Gehalt im Flußwasser im Bereich zwischen 0,1 und 1 fCi/l gefunden. Aus den angegebenen Konzentrationen können 260 als biologischer Akkumulationsfaktor mit der Dimension Ci/kg Muschelfleisch zu Ci/kg Wasser und für Muschelschalen Werte von 15 000 und 25 000, je nachdem, ob die Schalen von toten oder lebenden Tieren stammten, angegeben werden. Dies bedeutet, daß die untersuchten Muschelschalen die höchste biologische Akkumulation von Plutonium aufweisen, die bisher bekannt ist. Die oben angedeuteten Eigenschaften eines Bioindikators und den daraus resultierenden Vorteil der geringeren Probenmenge erfüllen die Muschelschalen in vorzüglicher Weise.

Tabelle 12: $^{239+240}\text{Pu}$ im Altrheinwasser und in verschiedenen Muschelproben

Probenmaterial	$^{239+240}\text{Pu}$ -Konzentration
Flußwasser	0,9 fCi/l
Muschelfleisch	0,23 pCi/kg frisch
Muschelschalen (von lebenden Muscheln)	23 ± 6 pCi/kg frisch
Muschelschalen (von toten Muscheln)	13 ± 3 pCi/kg frisch

6. Literatur

- [1] H. Schüttelkopf, "Entwicklung einer empfindlichen Plutoniumanalytik für Umweltproben", Dissertation Technische Universität München, Institut für Radiochemie, Juli 1981
- [2] K. Vogt, "Atmosphärische Ausbreitung und Ablagerung radioaktiver Stoffe", Fachtagung Radioökologie, 2. - 3. Oktober 1979, Bonn, Deutsches Atomforum e. V.
- [3] H. Kiefer, W. Koelzer (Herausgeber), "Jahresbericht 1978 der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit", Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK-2775, April 1979
- [4] E.P. Hardy, Health and Safety Laboratory, Environmental quarterly, October 1, 1977, Energy Research & Development Administration, New York, N.Y. 10014, HASL-328 and HASL-383, Appendix
- [5] M.C. de Bortoli, P. Gaglione, "SNAP Plutonium-238 Fallout at ISPRA, Italy", Health Physics, Vol. 16, (1969), pp. 197 - 204
- [6] P. Thomas, W. Hübschmann, L.A. König, H. Schüttelkopf, S. Vogt, M. Winter, "Experimental Determination of the Atmospheric Dispersion Parameters over Rough Terrain, Part 1, Measurements at the Karlsruhe Nuclear Research Center", KfK-2285, Juli 1976
- [7] "Allgemeine Berechnungsgrundlagen für die Bestimmung der Strahlenexposition durch Emission radioaktiver Stoffe mit der Abluft", Empfehlungen der Strahlenschutzkommission, Der Bundesminister des Innern, 1977
- [8] E. Holm, R.B.R. Persson, "Fallout Plutonium in Swedish Reindeer Lichens", Health Physics, Vol. 29, 1975, pp. 43 - 57
- [9] E.P. Hardy, P.W. Krey, H.L. Volchok, "Global Inventory and Distribution of Fallout Plutonium", Nature, Vol. 241, February 1973
- [10] E.P. Hardy, P.W. Krey, "Determining the Accumulated Deposit of Radionuclides by Soil Sampling and Analysis", LA-4756: Prov. of Environmental Plutonium Symposium, LASL 04. - 05.08.1971, pp. 37 - 42
- [11] Report of Committee II on Permissible Dose for Internal Radiation, International Commission on Radiological Protection, ICRP Publ. 2, Pergamon Press, London, 1959
- [12] D.D. Smith, S.C. Black, "Actinide Concentrations in Tissues from Cattle Grazing near the Rocky Flats Plant", National Environmental Research Center, USEPA Las Vegas, Nevada, 89114, NERC-LV-539-36, February 1975
- [13] H. Kiefer, W. Koelzer (Herausgeber), "Jahresbericht 1979 der Hauptabteilung Sicherheit, Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK-2939, April 1980
- [14] V.E. Noshkin, "Ecological Aspects of Plutonium Dissemination in Aquatic Environments; What has Pu-Data to tell us about other Transuranics", NYO-2174-132, 11th Hanford Biology Symposium, 26. - 29.09.1971