



KfK 3074

Mai 1982

Die Plutoniumkontamination des Altrheins

**Die Plutoniumkontamination als Funktion
des Teilchendurchmessers der Sedimente**

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
Hauptabteilung Sicherheit
Projekt Nukleare Sicherheit

KfK 3074

Die Plutoniumkontamination des Altrheins:
Die Plutoniumkontamination als Funktion
des Teilchendurchmessers der Sedimente

M. Pimpl, 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

An fünf Positionen im Altrhein wurden Sedimentproben genommen. Diese wurden durch Sieben und Ausschwemmen in Korngrößen über 0,8 mm Durchmesser, in Korngrößen zwischen 0,1 und 0,8 mm Durchmesser und in Korngrößen < 0,1 mm getrennt. Durch Sedimentanalyse wurden die Anteile < 0,1 mm Durchmesser in je fünf Fraktionen aufgetrennt. Von allen so erhaltenen Proben wurden Korngrößenverteilungen und Plutoniumbestimmungen durchgeführt.

Die Auswertung der erhaltenen Ergebnisse bestätigt, daß die Plutoniumkontamination an der Oberfläche der Sedimentteilchen erfolgte und daß keine homogene Kontamination des Gesamtteilchens vorliegt.

Die feinkörnigen Fraktionen enthalten daher auch höhere Plutoniumkonzentrationen in Ci/g als die grobkörnigeren.

The plutonium contamination of the "Altrhein" river: The plutonium contamination as a function of sediment particle diameter

Abstract

At five positions in "Altrhein" river, sediment samples were collected. These sediment samples were divided into fractions of 0.8 mm, 0.1 to 0.8 mm, and < 0.1 mm particle diameter by sieving and rinsing. The < 0.1 mm fractions were divided into five subfractions by sedimentation analysis. In each sample particle diameter distribution and plutonium concentration were determined.

The evaluation of the results received confirmed that plutonium contamination of sediment particles is a surface contamination and not a homogeneous contamination of the whole particle. Fractions with smaller particles contain higher plutonium concentrations than fractions with larger particles.

Inhaltsverzeichnis

	<u>Seite</u>
1. Problemstellung	1
2. Durchführung der Untersuchung	1
2.1 Probenahme und Probenvorbereitung	1
2.2 Trennung der Sedimentproben in Fraktionen unterschiedlicher Korngrößen	3
2.3 Die Messung der Korngrößenverteilung der erhaltenen Sedimentfraktionen	6
2.4 Die Bestimmung des Plutoniumgehaltes der Sedimente	8
3. Ergebnisse	8
3.1 Die Plutoniumkonzentrationen der Siebfraktionen	8
3.2 Die Korngrößenfraktionierung des Sedimentanteils mit Teilchendurchmesser $< 0,1$ mm	11
3.3 Der Plutoniumgehalt der einzelnen nach Korngrößen getrennten Fraktionen	14
4. Diskussion und Auswertung der Ergebnisse	16
4.1 Die Art der Pu-Kontamination von Sedimentteilchen	16
4.2 Die homogene Verteilung von Plutonium in Sedimentteilchen gleichen Durchmessers	18
4.3 Die homogene Verteilung von Plutonium an der Oberfläche der Sedimentteilchen gleichen Durchmessers	20
4.4 Die Berechnung der Oberflächenkontamination der Sedimentteilchen	23
5. Literatur	26

1. Problemstellung

In der Hauptabteilung Sicherheit/Radioökologie wird im Rahmen des Projektes Nukleare Sicherheit das Verhalten von Plutonium in einem aquatischen Ökosystem am Beispiel des Altrheins eingehend untersucht [1, 2]. In den Altrhein werden die geklärten und gereinigten Abwässer des Kernforschungszentrums Karlsruhe eingeleitet. Diese enthalten neben geringen Konzentrationen anderer Radionuklide auch Spuren von Pu-238 und Pu-239+240. Diese Plutoniumisotope liegen gelöst und an Schwebstoffe gebunden im Abwasser des Kernforschungszentrums Karlsruhe vor. In den Sedimenten des Altrheins wurde eine umgekehrt proportionale Beziehung von Plutoniumkontamination und Sedimentdichte festgestellt. In diesem Bericht wird untersucht, ob ein Zusammenhang besteht zwischen dem Durchmesser der Sedimentteilchen und der Plutoniumkontamination. Weiterhin wird geprüft, ob es sich um eine Kontamination an der Oberfläche handelt, oder ob das Plutonium homogen in den Schwebstoffen verteilt ist.

2. Durchführung der Untersuchung

2.1 Probenahme und Probenvorbereitung

An den in Abb. 1 angegebenen Positionen 2, 8, 10, 16 und 19 wurden Proben aus der obersten Sedimentschicht des Linkenheimer Altrheins entnommen. Die Probenahme erfolgte mit einem Metallschöpfer von einem Boot aus. Durch die in [1] mitgeteilten Ergebnisse war sichergestellt, daß an diesen Probenahmestellen Sedimente mit dem größten Dichteunterschied erfaßt wurden.

Die insgesamt vier Liter Sediment wurden über Nacht bei 110 °C getrocknet, gewogen und mechanisch zerkleinert. Durch Sieben mit geeigneten Maschenweiten wurde eine Fraktion > 0,8 mm Teilchendurchmesser, eine Fraktion zwischen 0,1 mm und 0,8 mm und eine Fraktion < 0,1 mm erhalten.

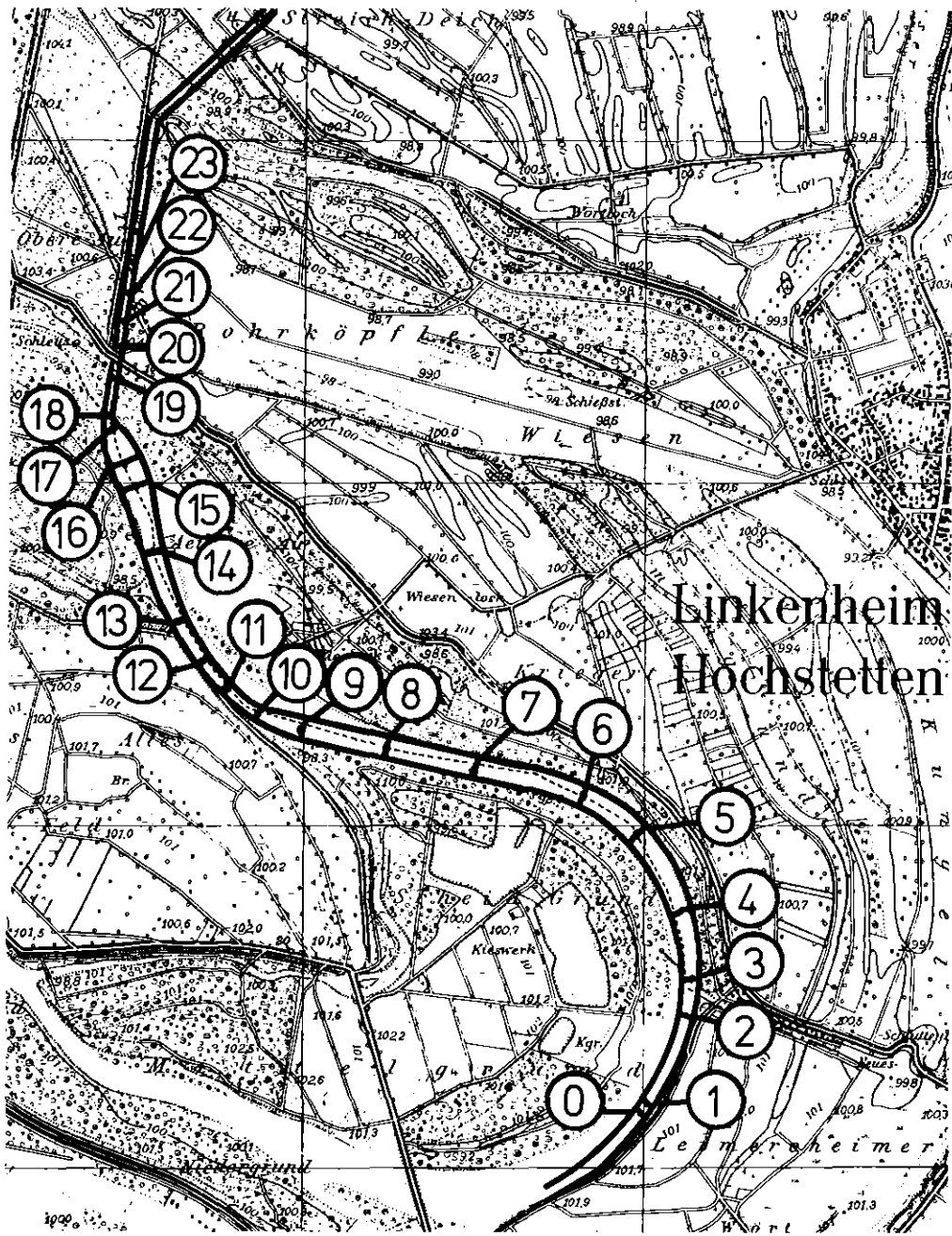


Abb. 1: Lage der Entnahmestellen am Linkenheimer Altrhein

2.2 Trennung der Sedimentproben in Fraktionen unterschiedlicher Korngrößen

Die Trennung der Sedimentproben in Fraktionen unterschiedlicher mittlerer Korngrößen erfolgte entsprechend den Unterschieden der korngrößenabhängigen Sinkgeschwindigkeit (Spülmethode [3]). Wird eine Portion eines Stoffes mit unterschiedlichem Teilchendurchmesser in eine Flüssigkeit gebracht, so hängt die Sinkgeschwindigkeit ab vom Teilchendurchmesser entsprechend dem Stoke'schen Gesetz:

$$v = \frac{(\rho_s - \rho_w) \cdot d^2 \cdot g}{18 \cdot \eta} \quad (1)$$

Darin bedeuten:

ρ_s = Dichte der sedimentierenden Substanz

ρ_w = Dichte des Wassers

d = Durchmesser des sedimentierenden Einzelteilchens

g = Erdbeschleunigung

η = Viskosität des Wassers

Werden Teilchen unterschiedlichen Durchmessers in einen laminaren Flüssigkeitsstrom gebracht, so werden die Teilchen mit größerer Sinkgeschwindigkeit als die Fließgeschwindigkeit des Stromes absinken, solche mit gleicher Sinkgeschwindigkeit schweben und solche mit kleinerer Sinkgeschwindigkeit sich mit dem Flüssigkeitsstrom mitbewegen. Dadurch kann eine Trennung nach Teilchendurchmessern erreicht werden.

Für die lineare Strömungsgeschwindigkeit in einem Zylinder gilt:

$$V = \frac{D}{F} \quad (2)$$

Darin bedeuten:

D = Durchfluß

F = Querschnitt des Zylinders

Setzt man die Sinkgeschwindigkeit der Teilchen gleich der linearen Strömungsgeschwindigkeit, so erhält man bei konstantem Durchfluß:

$$d \sim \frac{1}{\sqrt{F}} \quad (3)$$

dies heißt, daß der Teilchendurchmesser, der gerade noch in einem Zylinder verbleibt umgekehrt proportional zur Wurzel des Zylinderquerschnitts sein wird. Unter Verwendung des gleichen Wasserstromes und verschieden dimensionierter Zylinder ist daher eine Mehrfachfraktionierung nach verschiedenen Korngrößen möglich.

Die von uns benutzte Apparatur wird in Abb. 2 dargestellt. Die für die Konstruktion notwendigen Daten sind aus Tab. 1 zu entnehmen.

Das hier beschriebene Konzept der Sedimentieranalyse gilt streng nur für kugelförmige Teilchen, für exakt laminare Strömung, vollständig gleiche Dichte aller Teilchen und Konstanz der Dichte und der Teilchendurchmesser. Da alle diese Punkte nicht exakt eingehalten werden können, liegen die Teilchendurchmesser nicht zwischen zwei definierten Grenzwerten, sondern man erhält eine Korngrößenverteilung deren Schwerpunkt im Bereich der angegebenen Grenzen liegt [3 bis 5].

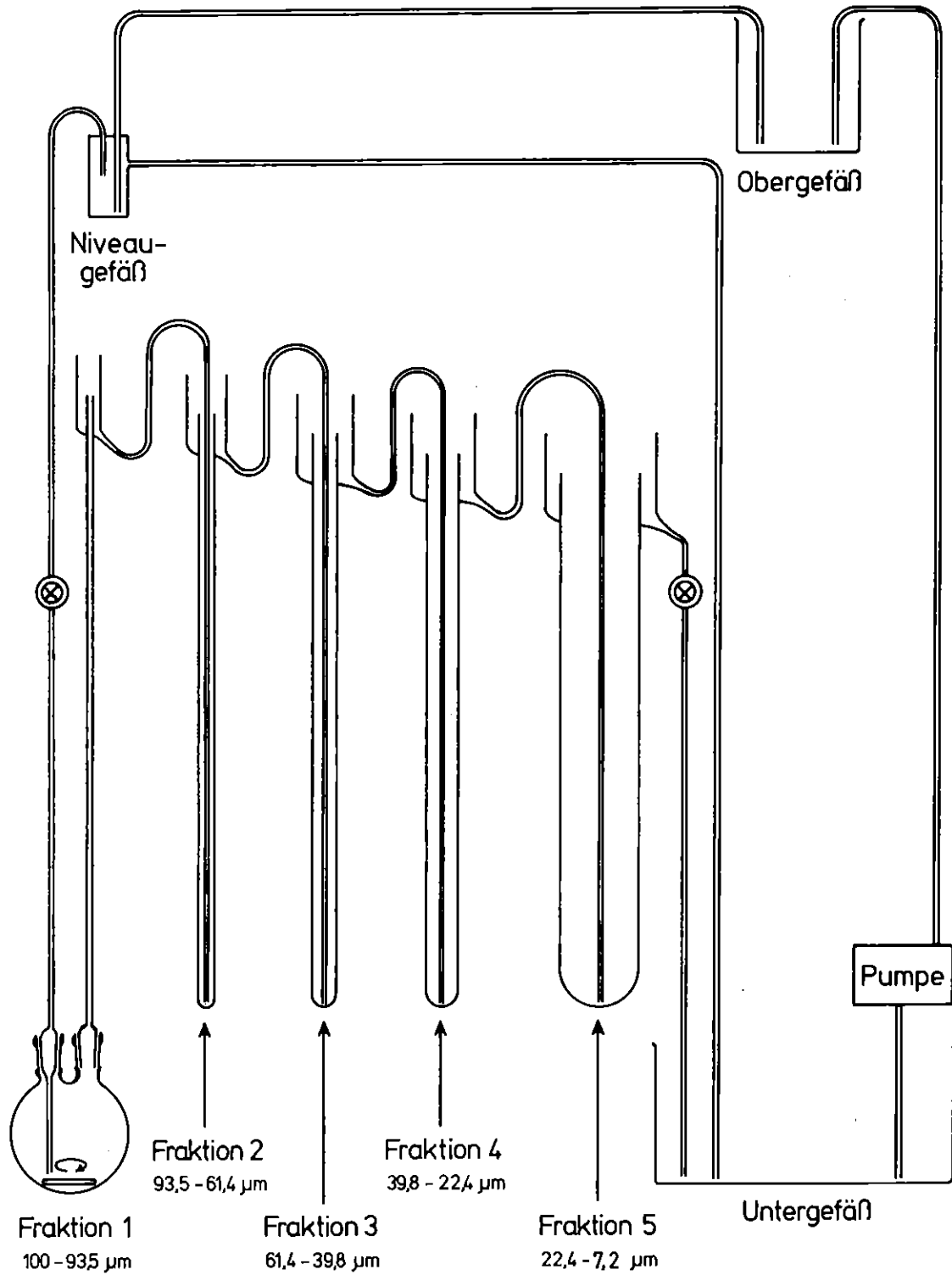


Abb. 2: Schematische Darstellung der Spülanlage, mit der Sedimente des Altrheins in 5 Fraktionen unterschiedlicher Korngrößenverteilung aufgetrennt wurden [3,4,5]

Tab. 1: Zu erwartender Korngrößenbereich in den mit der Spülmethode erhaltenen Sedimentfraktionen bei einem Wasserdurchsatz von 20 ml/min

Innendurchmesser der Glasgefäße	Durchströmte Fläche	Lineare Strömungsgeschwindigkeit	Teilchendurchmesser	Korngrößenbereich in der aufgefangenen Fraktion
cm	cm ²	cm/min	µm	µm
0,8	0,50	40,00	93,5	100 - 93,5
1,4	1,16	17,24	61,4	93,5-61,4
2,0	2,76	7,25	39,8	61,4-39,8
3,4	8,70	2,30	22,4	39,8-22,4
10,4	84,67	0,24	7,2	22,4- 7,2

2.3 Die Messung der Korngrößenverteilung der erhaltenen Sedimentfraktionen

Die Messung der Kornverteilung der erhaltenen Sedimentfraktionen erfolgte mit dem Sedimentographen "Analysette-20" der Firma Fritsch, 6580 Idar-Oberstein. Der Sedimentograph arbeitet nach folgendem Meßprinzip: In einer Glasküvette wird eine kleine Menge des Probenmaterials homogen suspendiert. Diese Glasküvette wird von einem sehr schmalen horizontalen Lichtstrahl durchquert und die Intensität des Lichtstrahls nach Austritt aus der Küvette mit einer Fotozelle gemessen. Die stärkste Lichtstreuung und damit die höchste optische Dichte wird am Beginn der Messung beobachtet. Sie nimmt in Abhängigkeit von der Korngrößenverteilung und von der Zeit ab. Reinem Wasser wird die optische Dichte 0 zugeordnet.

Bei einer gegebenen Fallhöhe h der Suspensionsschicht über dem horizontalen Lichtstrahl verläßt zum Zeitpunkt t_x gerade jene Fraktion von Teilchen die Ebene des Lichtstrahls, die die Fallgeschwindigkeit v_x hat:

$$v_x = \frac{h}{t_x} \quad (4)$$

Für alle Teilchen, die eine höhere Sinkgeschwindigkeit haben gilt, daß sie die Ebene des Lichtstrahls bereits früher verlassen haben und für Teilchen mit geringerer Fallgeschwindigkeit gilt, daß die Zahl der Teilchen, die die Lichtebene verlassen, gleich ist derer, die von oben eindringen.

Die optische Dichte ist um so größer, je größer der Querschnitt aller sedimentierenden Teilchen ist. Die Änderung von t zum Zeitpunkt t_x wird daher um so größer sein, desto größer das Produkt aus Teilchenzahl mit der Sinkgeschwindigkeit v_x und dem Querschnitt derjenigen Teilchen, die die Sinkgeschwindigkeit v_x haben, ist. Da der Querschnitt proportional dem Durchmesser der als kugelförmig angenommenen Teilchen ist, gilt nach (1) und (4), daß die Änderung der optischen Dichte zum Zeitpunkt t_x eine Funktion der Änderung der Teilchenzahl ist.

Durch Messung der Änderung der optischen Dichte in Abhängigkeit von der Zeit kann daher die Änderung der Häufigkeit von Teilchen in Abhängigkeit vom Durchmesser d_x gemessen werden. Die Ergebnisse erhält man integral als Summenkurve in relativen Einheiten bzw. differenziert als Korngrößenverteilung.

Der Meßbereich liegt zwischen 2 und 100 μm . Störungen treten auf, wenn ein wesentlicher Teil des Sediments aus Teilchen $< 2 \mu\text{m}$ besteht. Die Voraussetzungen für die Anwendbarkeit der Stoke'schen-Formel müssen erfüllt sein [6,7].

2.4 Die Bestimmung des Plutoniumgehaltes der Sedimente

Die für die Plutoniumbestimmung vorgesehenen Sedimentteile wurden bei 650 °C zweimal verascht. Zwischen den beiden Veraschungen wurde die Asche mit HNO_3 angefeuchtet. Die Proben wurden mit HNO_3/HF und mit $\text{HNO}_3/\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ je einmal ausgekocht und die erhaltenen Lösungen vereint. Zur Abtrennung des Plutoniums erfolgte eine Extraktion mit Trioctylphosphinoxid und eine Mitfällung mit LaF_3 und ein Anionenaustausch. Zur α -Spektrometrie wurden elektroplattierte Plutoniumpräparate verwendet.

Die chemische Ausbeute des Verfahrens liegt zwischen 70 und 80 %, die Nachweisgrenze bei 0,1 fCi/g und die chemische Ausbeute wird durch Zusatz einer bekannten Aktivität von Pu-236 gemessen [8].

3. Ergebnisse

3.1 Die Plutoniumkonzentrationen der Siebfractionen

Die getrockneten Sedimentproben wurden durch Siebe mit den Maschenweiten 0,8 und 0,1 mm fraktioniert. In Tab. 2 werden die prozentualen Verteilungen der einzelnen Siebfractionen angegeben. Überraschend niedrig ist der Anteil der Fraktion mit einem Teilchendurchmesser $< 0,1$ mm. Dies ist um so überraschender, da alle Sedimentproben einen tonartigen Charakter aufweisen und extrem feine Pulver darstellen.

Tab. 2: Mengenverteilung der Sedimentproben in den einzelnen Siebfraktionen

Entnahmestellennummer	Gesamtmenge in g	Sedimentmengen in %		
		Korngröße über 0,8 mm	Korngröße 0,1 mm bis 0,8 mm	Korngröße unter 0,1 mm
2	4 940	1,0	76,3	22,7
8	935	8,6	72,2	19,3
10	2 388	0,3	96,3	3,4
16	1 530	6,2	89,9	3,9
19	1 985	1,5	76,1	22,4

Es wurde angenommen, daß die extrem feinen Tonteilchen aneinander haften und durch einfaches Sieben nicht voneinander zu trennen sind. Daher wurden die einzelnen Sedimentproben in die in Abb. 2 wiedergegebenen Apparaturen eingefüllt, mit Wasser angeschlämmt und die Fraktion mit einer Korngröße $< 0,1$ mm ausgespült. Die prozentuale Verteilung der einzelnen Fraktionen unter Berücksichtigung des ausgespülten Anteils ist in Tab. 3 wiedergegeben. Aus Tab. 3 geht hervor, daß zwischen 30 und 80 % der Sedimentteilchen zur Korngröße $< 0,1$ mm gehören.

Die je drei Siebfraktionen der fünf Sedimentproben wurden auf Plutonium analysiert. Die Konzentrationen von Pu-238 und von Pu-239+240 sind in den Tabn. 4 und 5 wiedergegeben. Zum Vergleich wird das Ergebnis der Plutoniumkonzentration in der Gesamtprobe angegeben, die zum Sieben eingesetzt wurde.

Tab. 3: Mengenverteilung der Sedimentproben in den einzelnen Siebfractionen nach dem Ausspülen von feinen Partikeln aus der 0,1 mm bis 0,8 mm Fraktion

Entnahmestellennummer	Sedimentmengen in %		
	Korngröße über 0,8 mm	Korngröße 0,1 mm bis 0,8 mm	Korngröße unter 0,1 mm
2	1,0	69,3	29,7
8	8,6	18,1	73,3
10	0,3	60,3	39,4
16	6,2	16,9	76,9
19	1,5	56,3	42,2

Tab. 4: Die Pu-238-Konzentrationen in den Siebfractionen

Entnahmestellennummer	Pu-238-Konzentration in fCi/g trocken			
	Gesamtprobe	Korngröße über 0,8 mm	Korngröße 0,1 mm bis 0,8 mm	Korngröße unter 0,1 mm
2	34,8	34,0	29,4	52,9
8	120,3	125,6	121,9	112,2
10	20,0	11,9	19,7	29,1
16	4,0	2,4	4,1	4,6
19	3,2	3,2	2,2	6,5

Tab. 5: Die Pu-239+240-Konzentrationen in den Siebfractionen

Entnahme- stellen- nummer	Pu-239-Konzentration in fCi/g trocken			
	Gesamtprobe	Korngröße über 0,8 mm	Korngröße 0,1 mm - 0,8 mm	Korngröße unter 0,1 mm
2	38,0	39,0	38,8	69,6
8	200,9	208,3	202,8	190,7
10	28,1	5,1	27,6	43,6
16	9,4	7,4	9,5	10,4
19	23,3	12,7	21,2	31,0

Wie erwartet weisen in den Proben 2, 10, 16 und 19 die Fraktionen mit Korngrößen < 0,1 mm die höchste Plutoniumkonzentration auf. Für alle weiteren Untersuchungen wurden daher diese Fraktionen verwendet.

3.2 Die Korngrößenfraktionierung des Sedimentanteils mit Teilchendurchmesser < 0,1 mm

In der in Tab. 2 angegebenen Apparatur wurden von den Siebfractionen < 0,1 mm Teilchendurchmesser zwischen 100 und 170 g Probenmaterial von den Positionen 2, 8, 10, 16 und 19 eingewogen. Diese Proben wurden mit der Spülmethode in fünf Fraktionen aufgeteilt. Die Mengenverteilung auf die einzelnen Korngrößenbereiche bzw. die Fraktionen von 1 bis 5 der fünf untersuchten Proben sind in Tab. 6 wiedergegeben. Wie aus Tab. 6 hervorgeht, ist die Probe von der Position 2 im wesentlichen ein grobkörniges Material, während die Proben von den anderen Positionen einen nennenswerten Anteil von feinkörnigem Material enthalten.

Tab. 6: Mengenverteilung in den mit der Spülmethode aus den Siebfractionen < 0,1 mm Durchmesser nach Korngrößen aufgetrennten Fraktionen 1 (grobkörnig) bis 5 (feinkörnig)

Pos.	Einwaage an Sieb- fraktion < 0,1 mm in g	Mengenverteilung in den mit der Spül- methode erhaltenen Fraktionen in %				
		Frakt. 1	Frakt. 2	Frakt. 3	Frakt. 4	Frakt. 5
2	170,00	81,9	3,3	5,5	5,1	4,2
8	136,00	39,1	8,7	18,9	28,7	3,6
10	110,00	31,0	7,3	20,9	31,2	9,6
16	110,00	17,6	15,5	31,7	28,2	7,0
19	100,00	18,5	11,5	27,2	37,0	5,8

Sowohl die eingesetzten Siebfractionen < 0,1 mm als auch die durch Sedimentationsanalyse erhaltenen Fraktionen 1 bis 5 der untersuchten fünf Proben wurden mit dem Sedimentographen auf ihre Korngrößenverteilung untersucht. Die Ergebnisse werden in Abb. 3 wiedergegeben. Während die Siebfractionen < 0,1 mm Teilchendurchmesser eine mehr oder weniger ausgeprägte Gleichverteilung aller Korngrößen zwischen 0 und 100 µm erkennen lassen, sind in den mit der Spülmethode aufgetrennten Fraktion 1 bis 5 deutlich Maxima einzelner Korngrößen erkennbar. In der größten Fraktion 1 liegen diese Maxima im Bereich der größten Teilchendurchmesser. Mit fortschreitender Fraktionsnummer bis zur feinkörnigsten Fraktion 5 verschiebt sich dieses Maximum in Richtung kleinerer Teilchendurchmesser.

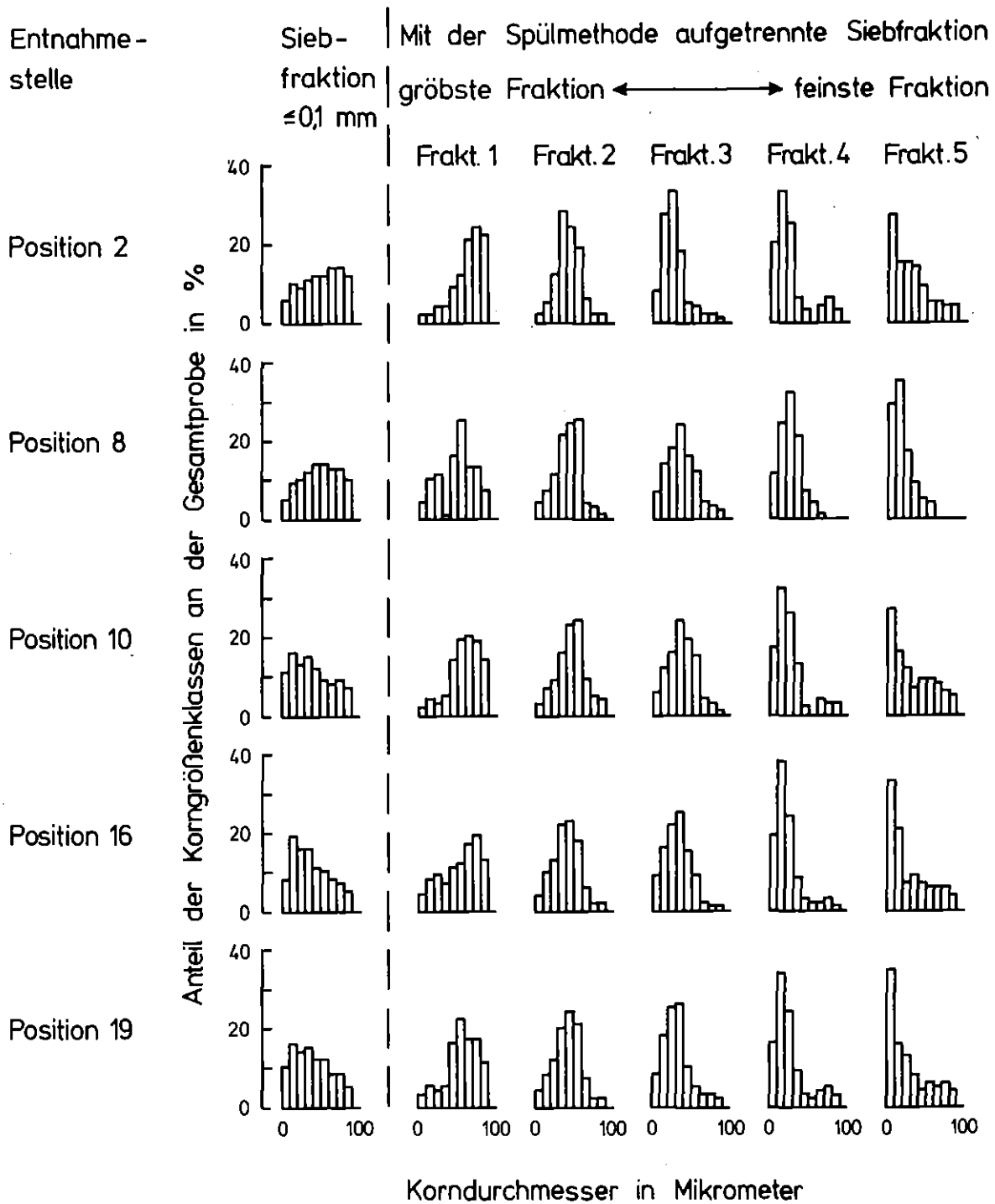


Abb. 3: Korngrößenverteilung in Sedimenten des Altrheins an verschiedenen Stellen: Verteilung in den Siebfraktionen $\leq 0,1 \text{ mm}$ und in den mit der Spülmethode nach Korngrößen aufgetrennten Fraktionen 1 bis 5 dieser Siebfraktionen

3.3 Der Plutoniumgehalt der einzelnen nach Korngrößen getrennten Fraktionen

Alle Fraktionen und die Ausgangsproben mit einer Korngröße < 0,1 mm Teilchendurchmesser wurden auf Plutonium analysiert. In Abb. 4 sind die Konzentrationen von Pu-238 und Pu-239+240 wiedergegeben. Wie aus den Ergebnissen hervorgeht, enthalten die groben Fraktionen weniger Plutonium als die Ausgangsprobe, wohingegen die Plutoniumkonzentrationen der feinsten Fraktionen teilweise wesentlich höher sind als die der zur Untersuchung eingesetzten Fraktionen < 0,1 mm Durchmesser. In Tab. 7 wird die Verteilung des Plutoniums auf die einzelnen Korngrößenfraktionen angegeben. Gleichzeitig werden die Plutoniumgehalte der Siebfraktionen < 0,1 mm Durchmesser angegeben.

Tab. 7: Plutoniumverteilung in den mit der Spülmethode aus den Siebfraktionen < 0,1 mm nach sinkenden Korngrößen aufgetrennten Fraktionen 1 bis 5

Pos.	Pu-Gehalt in der Siebfraktion < 0,1 mm in fCi/g trocken		Pu-Gehalt in den mit der Spülmethode erhaltenen Fraktionen in %				
	Pu-238	Pu-239+240	Frakt. 1	Frakt. 2	Frakt. 3	Frakt. 4	Frakt. 5
2	52,9	69,6	21,2	9,2	21,6	28,0	20,0
8	112,2	190,7	32,7	5,8	19,5	34,8	7,2
10	29,1	43,6	11,4	6,6	25,8	45,4	10,8
16	4,6	10,4	15,3	14,5	25,5	29,1	15,6
19	6,5	31,0	4,4	7,5	27,2	34,6	26,3

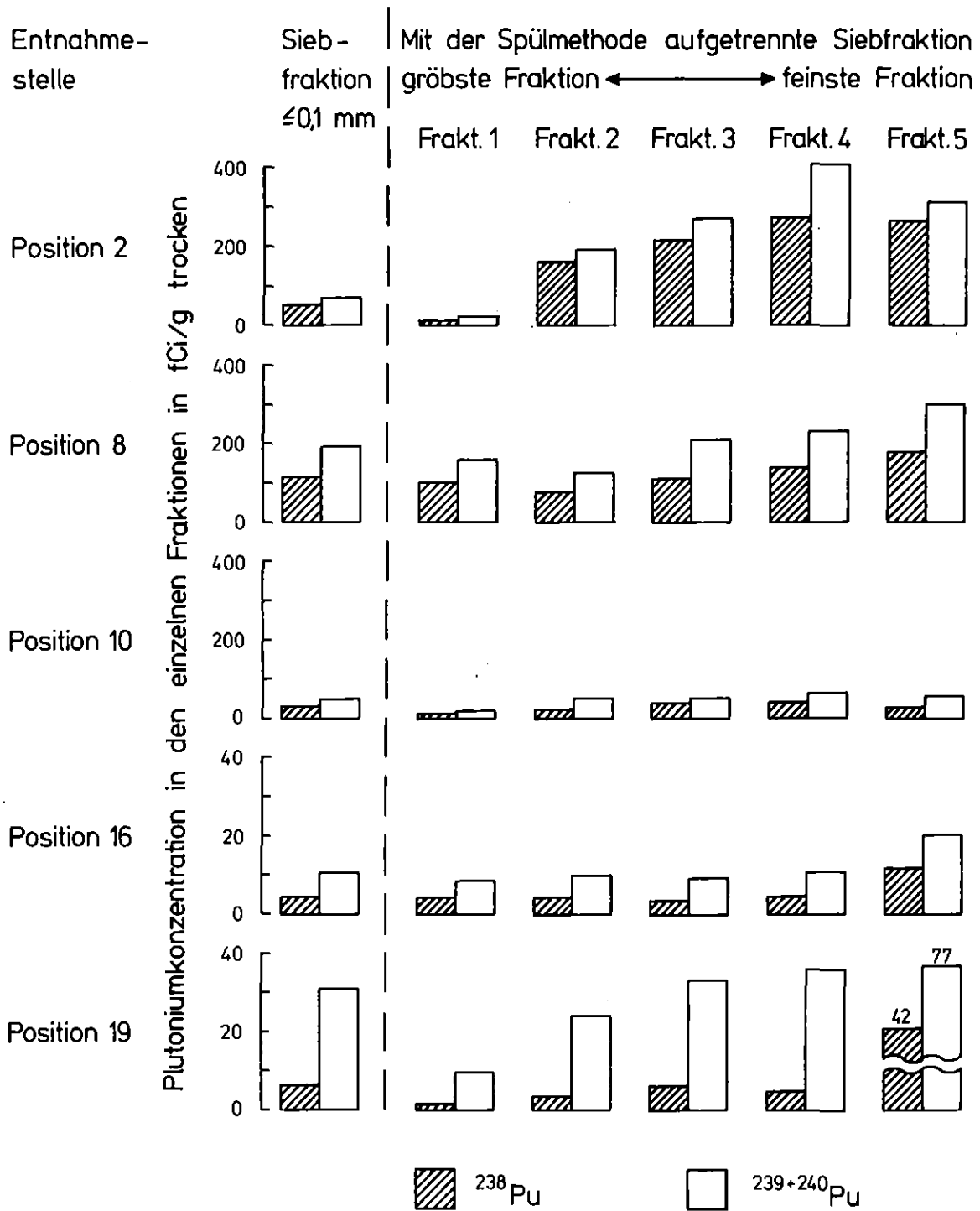


Abb. 4: Plutoniumkonzentrationen in fCi/g trocken in den Siebfractionen $\leq 0,1$ mm und in den mit der Spülmethode erhaltenen Fraktionen 1 bis 5

Eine Gegenüberstellung der Massenverteilung und der Plutoniumverteilung auf die einzelnen Korngrößenfraktionen der Proben von den Positionen 2 bis 19 erfolgt in Abb. 5. In fast allen Proben ist deutlich zu erkennen, daß die Plutoniumverteilung zu Gunsten kleinerer Korngrößen verschoben ist verglichen mit der Massenverteilung.

4. Diskussion und Auswertung der Ergebnisse

4.1 Die Art der Pu-Kontamination von Sedimentteilchen

Die Entstehung von plutoniumkontaminierten Sedimenten kann entweder Folge einer Mitfällung von Plutonium aus dem Altrheinwasser bei der Bildung von Niederschlägen sein, oder aber sie kann verursacht werden durch eine Ablagerung des Plutoniums auf der Oberfläche bereits vorhandener Schwebstoffe bzw. resuspendierter Schwebstoffe. Im ersten Fall ist eine homogene Verteilung des Plutoniums in den abgelagerten Schwebstoffen zu erwarten, da die Mitfällung des Plutoniums entweder durch direkten Einbau oder durch Adsorption an der Oberfläche erfolgt und zwar in einem Stadium extrem kleiner Durchmesser der Niederschlagsteilchen. Bei der nachfolgenden Koagulation wird eine homogene Verteilung des Plutoniums erreicht. Erfolgt die Ablagerung an der Oberfläche bereits vorhandener Schwebstoffe, so wird unter gegebenen Bedingungen eine konstante Oberflächenkonzentration unabhängig von der Korngröße der einzelnen Teilchen vorliegen. Radioökologisch gesehen wäre im ersten Fall das Plutonium nur noch zu einem geringen Teil wirklich verfügbar, zum Beispiel beim Kontakt mit Komplexmitteln, mit Reduktionsmitteln oder durch Auflösung im Darm von Fischen, während im zweiten Fall ein weitgehende Verfügbarkeit vorausgesetzt werden müßte.

Entnahme-
stelle

Massen - Verteilung

Plutonium - Verteilung

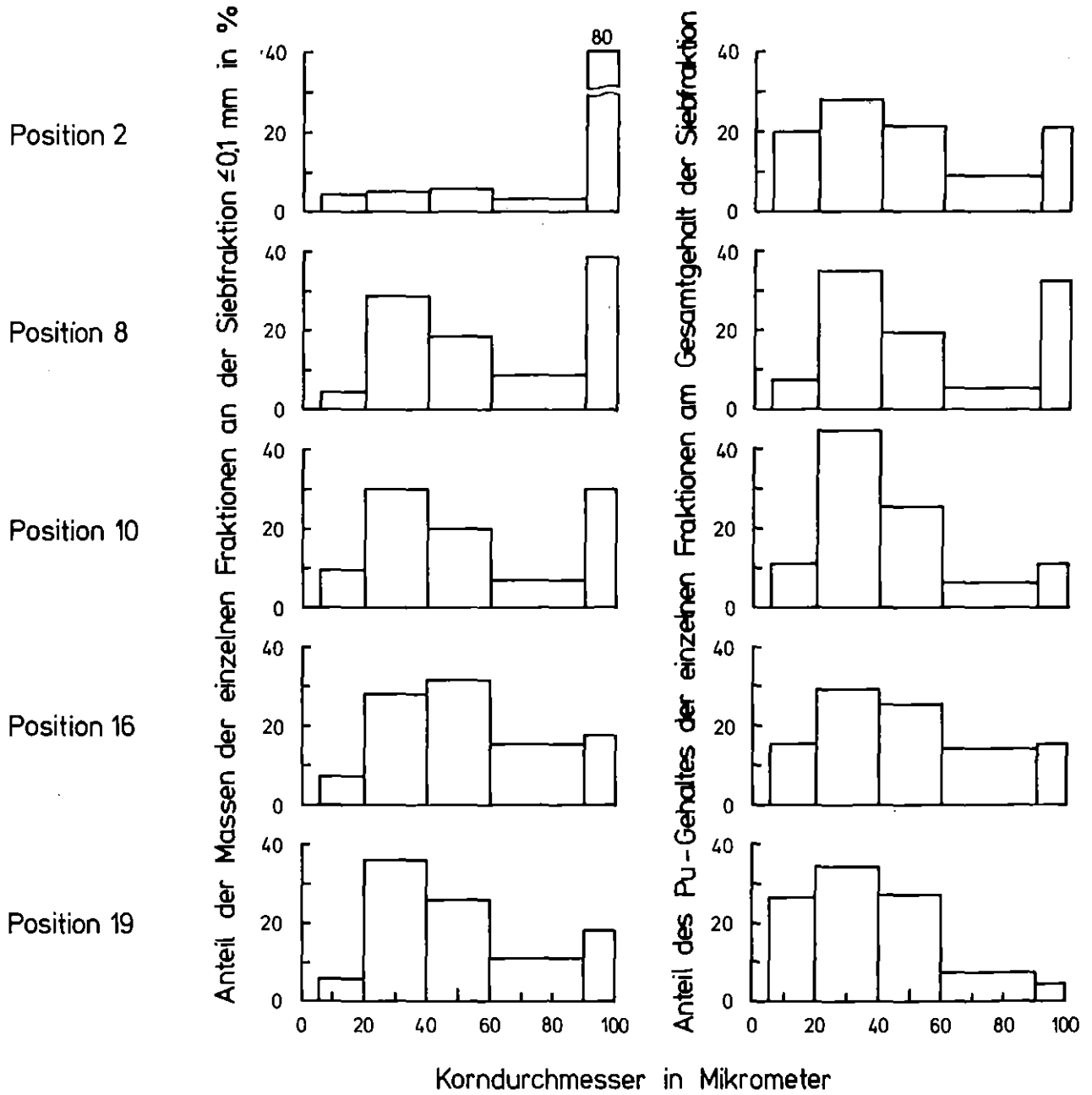


Abb. 5: Vergleich zwischen Massen- und Plutoniumverteilung in Sedimenten des Altrheins, die mit der Spülmethode in 5 Fraktionen unterschiedlicher Korngröße aufgetrennt wurden

4.2 Die homogene Verteilung von Plutonium in Sedimentteilchen gleichen Durchmessers

Für eine gegebene Situation darf bei homogener Verteilung des Plutoniums in den Sedimentteilchen gleichen Durchmessers eine konstante Plutoniumkonzentration in Ci/cm³ Teilchen angesetzt werden. Es gilt

$$C_T = \frac{A_T}{V_T} = \text{konstant} \quad (5)$$

Darin bedeuten:

- A = Aktivität in Curie
- V = Volumen in cm³
- C = Konzentration in Ci/cm³
- T = Index für Teilchen

Da die von uns durchgeführten Plutoniummessungen nur eine Aussage über die Massenkonzentration und nicht über die Volumenkonzentration der Sedimentteilchen ermöglichen, wird wie folgt umgerechnet: Für kugelförmige Teilchen gilt für das Volumen der Teilchen V_T und die Masse der Teilchen M_T :

$$V_T = \frac{4}{3} \left(\frac{d_T}{2}\right)^3 \cdot \pi \quad (6)$$

$$M_T = \frac{4}{3} \left(\frac{d_T}{2}\right)^3 \cdot \eta \cdot \rho \quad (7)$$

Darin bedeuten:

- d_T = Durchmesser der betrachteten Teilchenfraktion in cm
- ρ = Dichte des Teilchenmaterials in g/cm³

Werden nun n Teilchen bei einer Analyse verwendet, so erhält man die Gesamtmasse M_G der n Teilchen und die Gesamtaktivität A_G nach:

$$M_G = M_T \cdot n \quad (8)$$

$$A_G = A_T \cdot n = C_T \cdot V_T \cdot n \quad (9)$$

Darin bedeutet:

G = Index für Gesamt

Aus den Formeln (6) bis (9) läßt sich die Plutoniumkonzentration der Sedimentfraktion F in Ci/g, wie sie bei den Analysen bestimmt wurde, ableiten:

$$C_F = \frac{A_G}{M_G} \quad (10)$$

$$C_F = \frac{C_T \cdot V_T \cdot n}{M_T \cdot n} \quad (11)$$

$$C_F = \frac{C_T \cdot \frac{4}{3}\pi \left(\frac{d_T}{2}\right)^3 \cdot n}{\frac{4}{3}\pi \left(\frac{d_T}{2}\right)^3 \cdot \rho \cdot n} = \frac{C_T}{\rho} = \text{konstant} \quad (12)$$

Darin bedeutet:

F = Index für Fraktion

Wie aus Formel (12) hervorgeht, ist die von uns in den einzelnen Fraktionen gemessene Plutoniumkonzentration bei homogener Verteilung des Plutoniums innerhalb der Teilchen für eine gegebene Situation konstant und unabhängig vom Teilchendurchmesser. Trägt man daher die Plutoniumkonzentrationen der einzelnen Fraktionen auf, müßte man eine Gerade parallel zur Korndurchmesserachse bekommen. In Abb. 6 wurden die Plutoniumkonzentrationen der aus den Proben von Positionen 2 bis 19 gewonnenen Korngrößenfraktionen als Funktion der Korngröße aufgetragen. Wie aus Abb. 6 hervorgeht, nimmt die Plutoniumkonzentration mit wachsendem mittlerem Teilchendurchmesser der Sedimentfraktionen ab. Eine konstante Konzentration, also unabhängig vom Teilchendurchmesser, kann nicht festgestellt werden.

4.3 Die homogene Verteilung von Plutonium an der Oberfläche der Sedimentteilchen gleichen Durchmessers

Erfolgt die Plutoniumkontamination bereits vorhandener Schwebstoffteilchen durch Ablagerung des Plutoniums aus dem Wasser, so wird die Flächenkontamination bei einer gegebenen Plutonium- und Schwebstoffkonzentration für alle Teilchen gleich groß sein und unabhängig vom Teilchendurchmesser. Es gilt daher für Teilchen aller interessierenden Durchmesser:

$$C_{T,O} = \frac{A_T}{O_T} = \text{konstant} \quad (13)$$

Darin bedeuten:

$C_{T,O}$ = Die Oberflächenkontamination von Plutonium auf Schwebstoffteilchen in Ci/cm²

A_T = Aktivität im Teilchen mit der Oberfläche O in Ci

O_T = Die Oberfläche des Teilchens in cm²

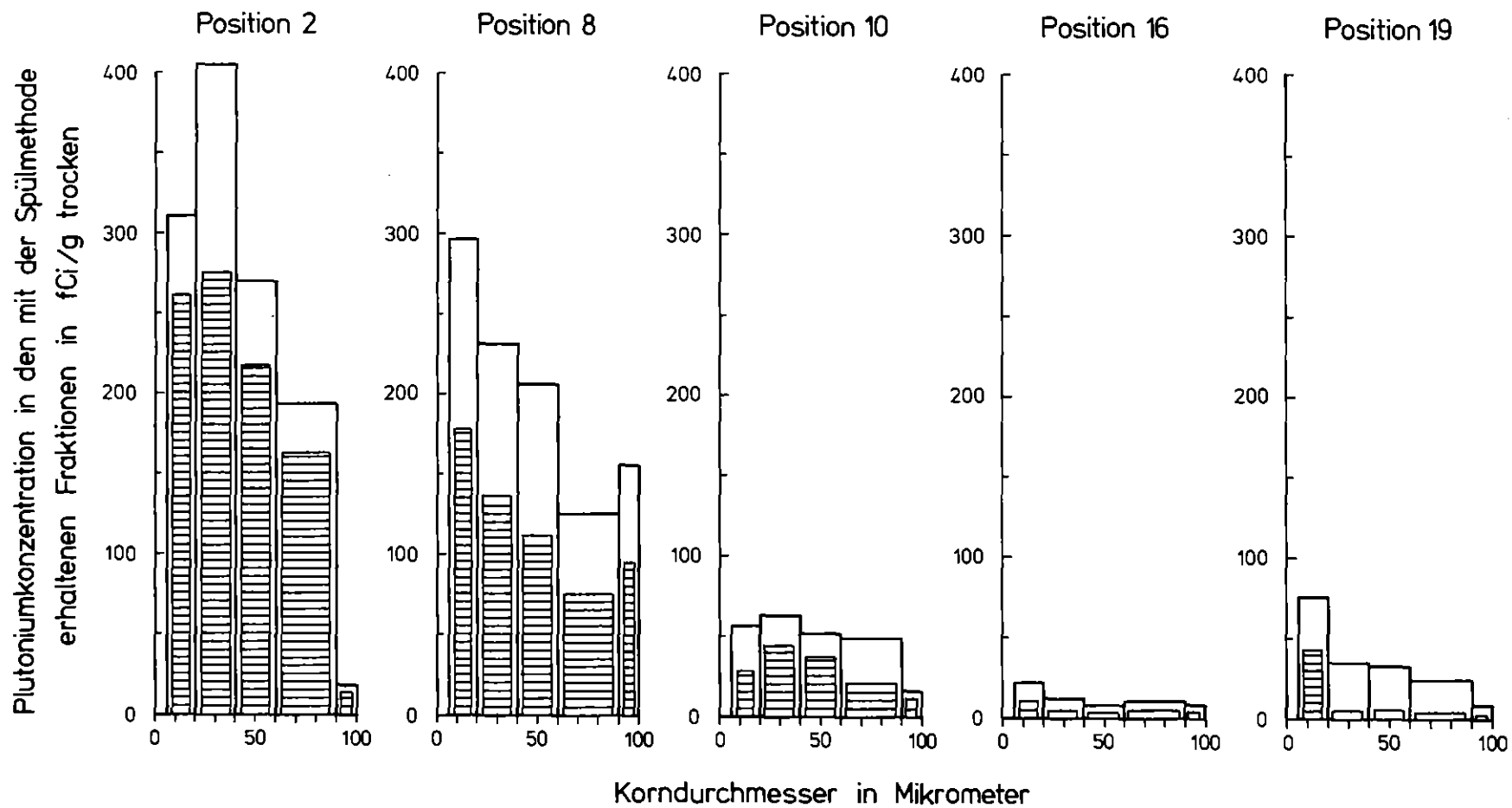


Abb. 6: Die Plutoniumkonzentration in den mit der Spülmethode erhaltenen Sedimentfraktionen in Abhängigkeit von der Korngrößenverteilung. \equiv = ^{238}Pu \square = $^{239+240}\text{Pu}$

Für O_T gilt:

$$O_T = 4 \left(\frac{d_T}{2}\right)^2 \pi \quad (14)$$

für kugelförmige Teilchen und ebenso gilt für M_T , M_G und A_G

$$M_T = \frac{4}{3} \left(\frac{d_T}{2}\right)^3 \pi \cdot \rho \quad (15)$$

$$M_G = M_T \cdot n \quad (16)$$

$$A_G = A_T \cdot n = C_{T,O} \cdot O_T \cdot n \quad (17)$$

Die bei der Plutoniumanalyse bestimmte Fraktionskonzentration C_F ergibt sich dann aus:

$$C_F = \frac{A_G}{M_G} \quad (18)$$

$$C_F = \frac{C_{T,O} \cdot 4 \left(\frac{d_T}{2}\right)^2 \cdot \pi \cdot n}{\frac{4}{3} \left(\frac{d_T}{2}\right)^3 \cdot \pi \cdot \rho \cdot n} \quad (19)$$

$$C_F = \frac{6 \cdot C_{T,O}}{d_T \cdot \rho} \sim \frac{1}{d_T} \quad (20)$$

Nach (20) ist bei der Annahme einer konstanten Dichte der Teilchen und einer konstanten Oberflächenkontamination unter gegebenen Bedingungen die Konzentration der analysierten Fraktion umgekehrt proportional dem Teilchendurchmesser.

Trägt man die Plutoniumkonzentrationen der Fraktionen in Ci/g gegen den mittleren Teilchendurchmesser der Fraktionen auf, müßte eine umgekehrt proportionale Beziehung zwischen C_F und d_T erkennbar sein. Eine solche Beziehung besteht, wie aus Abb. 6 ersichtlich ist, für praktisch alle untersuchten Proben.

4.4 Die Berechnung der Oberflächenkontamination der Sedimentteilchen

Unter der Voraussetzung, daß die Plutoniumablagerung in den Sedimenten tatsächlich eine Ablagerung an der Oberfläche bereits vorhandener Schwebstoffe ist, müßte bei der Berechnung der Plutoniumkontamination der Oberfläche in Ci/cm² für die Proben jeder Position unabhängig von der Korngröße der Sedimentteilchen ein konstanter Wert erhalten werden.

Unter Benützung der Korngrößenverteilungen von Abb. 3 und der Mengenanteile in Tab. 6 sowie des Plutoniumgehaltes der einzelnen Fraktionen, wie er in Abb. 4 angegeben wurde, wurde die Oberflächenkontamination der untersuchten Sedimente in Ci/cm² berechnet. Dabei wurden kugelförmige Teilchen vorausgesetzt und für die Dichte der Sedimentteilchen der Wert 2,4 g/cm³ eingesetzt.

Die Ergebnisse werden in Abb. 7 für die je fünf Korngrößenfraktionen der Proben von den Entnahmestellen 2 bis 19 wiedergegeben. Die erwartete Konstanz der Oberflächenkontamination mit Plutonium ist deutlich erkennbar für die Proben von allen Entnahmestellen. Abweichungen treten nur auf bei der feinsten und bei der größten Korngrößenfraktion. Die oben angeführte Annahme, daß alle Teilchen kugelförmig wären, unabhängig von der Fraktion, und daß die Dichte der Teilchen konstant bei 2,4 g/cm³ liegt, dürfte gerade bei der feinkörnigsten und der grobkörnigsten Fraktion nicht gerechtfertigt sein. Sicher wird zwischen feinen Sandteilchen einerseits, und durch was-

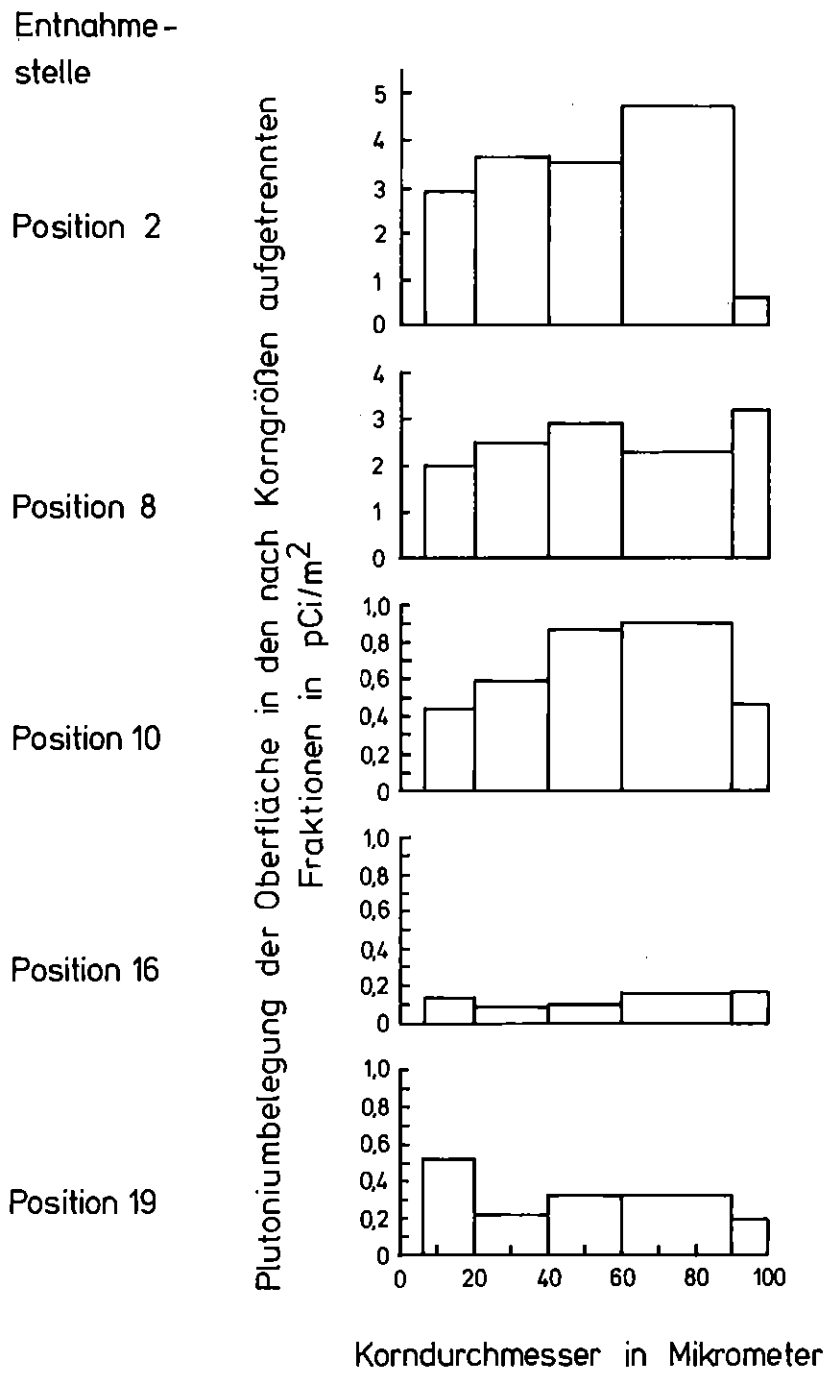


Abb.7: Plutoniumkontamination der Oberflächen der Sedi-
mentteilchen in Abhängigkeit vom Teilchendurch-
messer

seraufgequollene Tonteilchen andererseits, nicht nur ein geometrischer Unterschied der Teilchen, sondern auch ein Dichteunterschied zu erwarten sein. Die Oberflächenkontamination der einzelnen Fraktionen der Proben von den Probenahmestellen 2 bis 19 wird in Tab. 8 wiedergegeben.

Tab. 8: Die Plutoniumkontamination der Oberfläche der Sedimentteilchen

Entnahme- stellen- nummer	Oberflächenkontamination in pCi Pu-239+240/m ² in den Fraktionen				
	1	2	3	4	5
2	0,60	4,7	3,5	3,6	2,9
8	3,2	2,3	2,9	2,5	2,0
10	0,46	0,90	0,86	0,59	0,44
16	0,17	0,16	0,10	0,08	0,14
19	0,16	0,32	0,32	0,23	0,52
Teilchen- durch- messer in µm	90 - 100	60 - 90	40 - 60	20 - 40	5 - 20

Aus den Ergebnissen der Auswertung von Korngrößenverteilung, Massenverteilung und Plutoniumverteilung in den einzelnen Fraktionen der untersuchten Sedimentproben geht mit hoher Wahrscheinlichkeit hervor, daß die Plutoniumkontamination in den Sedimenten des Altrheins eine Kontamination der Oberfläche der vorhandenen oder resuspendierten Schwebstoffe darstellt.

Die feinkörnigen Fraktionen enthalten daher auch höhere Plutoniumkonzentrationen in Ci/g als die grobkörnigeren.

5. Literatur

- [1] M. Pimpl, H. Schüttelkopf, M. Afsar
Die Plutoniumkontamination des Altrheins: Die
Kontamination der Sedimente
KfK 2892, Dezember 1979
- [2] M. Pimpl, H. Schüttelkopf
Die Messung der Abwasserverdünnung im Altrhein mit
der Tritiumemission des Kernforschungszentrums
Karlsruhe
KfK 3073, November 1980
- [3] K.H. Hartge
Die physikalische Untersuchung von Böden
Ferdinand Enke Verlag, Stuttgart, 1971
- [4] E. Schlichting, H.-P. Blume
Bodenkundlichees Praktikum
Verlag Paul Parey, Hamburg und Berlin, 1966
- [5] F. Scheffer, P. Schachtschabel
Lehrbuch der Bodenkunde
Ferdinand Enke Verlag, Stuttgart, 1976
- [6] T. Allen
Particle Size Measurement
Chapman and Hall, London, 1975
- [7] H. Umhauer
Partikelgrößenbestimmung in Suspensionen mit Hilfe
eines Streulicht-Zählverfahrens
Chem. Ing. Tech., 52, 55 - 58, 1980
- [8] H. Schüttelkopf
Entwicklung einer Analysenmethode für Plutonium im
Femtogramm/Gramm-Bereich und ihre Anwendung auf Um-
weltproben
KfK 3035, September 1981

Danksagung

Die Probenahme und die Probenvorbereitung wurde von Herrn H. Bailer durchgeführt.

Die Analysen wurden ausgeführt von Frau G. Hefner.

Die bei den Analysen erhaltenen Plutoniumpräparate wurden von Herrn Dipl.-Phys. H. Feßler α -spektrometriert.

Die Verfasser danken allen, die geholfen haben, diese Arbeiten durchzuführen.