

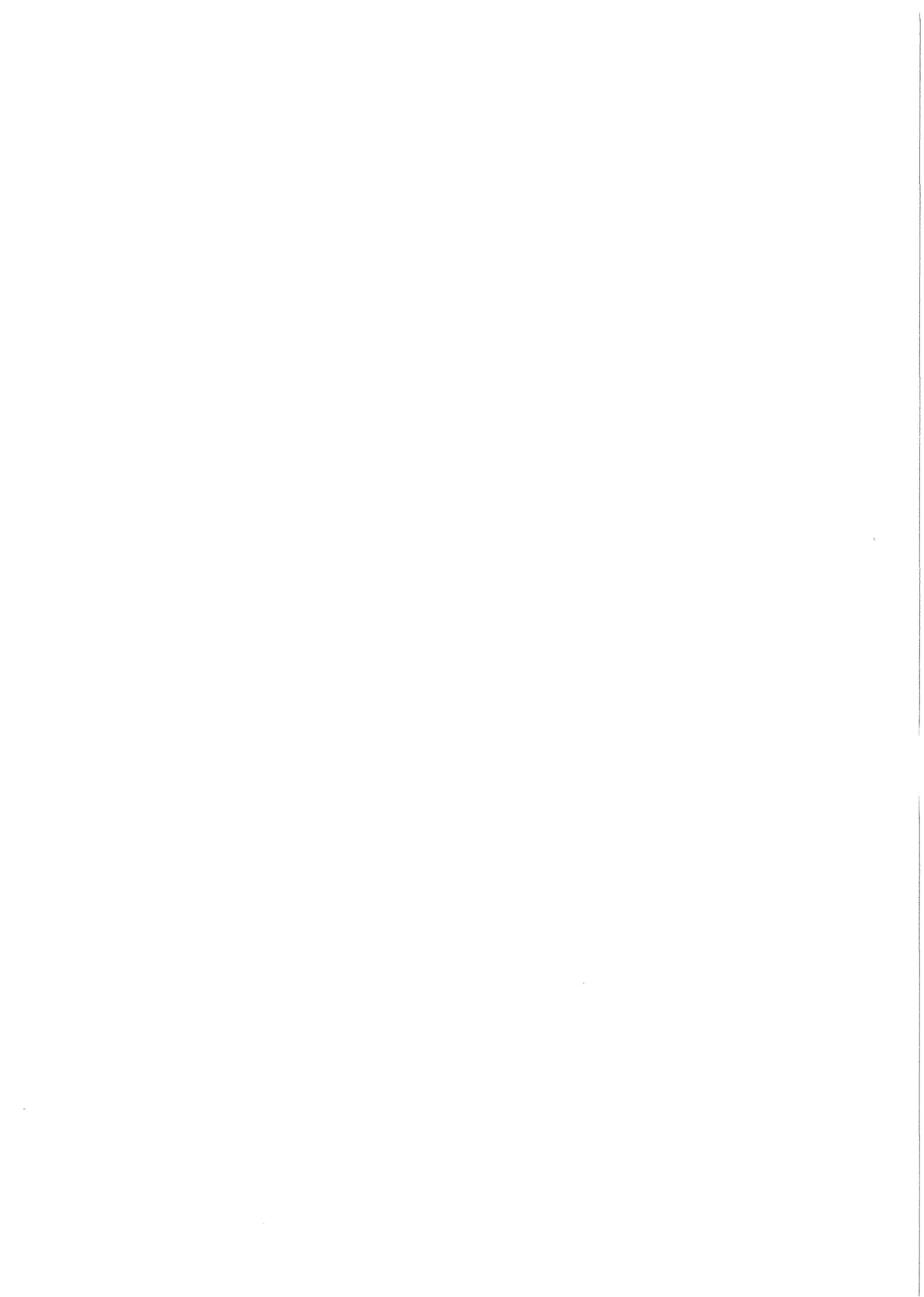
KfK 3459  
Februar 1983

**Radioökologische  
Auswirkungen des langjährigen  
Betriebs der kerntechnischen  
Anlagen des  
Kernforschungszentrums  
Karlsruhe  
auf dessen nähere Umgebung**

**Befristete Einzeluntersuchungen in  
Erweiterung und Ergänzung des  
routinemäßigen Überwachungsprogramms**

L. A. König, H. Fessler, K.-G. Langguth,  
D. Papadopoulos, A. Radziwill  
Hauptabteilung Sicherheit

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE  
Hauptabteilung Sicherheit

KfK 3459

Radioökologische Auswirkungen des langjährigen Betriebs der  
kerntechnischen Anlagen des Kernforschungszentrums Karlsruhe  
auf dessen nähere Umgebung

- Befristete Einzeluntersuchungen in Erweiterung und  
Ergänzung des routinemäßigen Überwachungsprogramms -

L.A. König, H. Fessler, K.-G. Langguth,  
D. Papadopoulos, A. Radziwill

Abschlußbericht des BMI-geförderten Forschungsvorhabens St.Sch. 802

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003

## Zusammenfassung

Im Rahmen eines BMI-geförderten Vorhabens wurden die radioökologischen Auswirkungen des langjährigen Betriebs der kerntechnischen Anlagen des Kernforschungszentrums Karlsruhe auf dessen nähere Umgebung untersucht. Folgende Themen wurden behandelt:

- Beaufschlagung des Bodens und der bebauten Flächen durch Fallout und Washout
- Eindringen der Aktivität in den Boden und Verfolgung - soweit möglich - bis zum Grundwasser
- Belastung des Hirschkanals
- Tritium im Niederschlag infolge von Tritiumfreisetzungen in die Atmosphäre

Wesentliche Ergebnisse des Meßprogramms sind:

- Die im Bereich des Kernforschungszentrums Karlsruhe nachgewiesenen Kontaminationen von Boden und Bewuchs sind in erster Linie auf den Kernwaffenfallout zurückzuführen. Eine Mitverursachung der Kontaminationen durch Emittenten des Kernforschungszentrums Karlsruhe zeigte sich im Bereich der Hauptabteilung Dekontaminationsbetriebe insbesondere in unmittelbarer Nähe der Verbrennungsanlage.
- Die Tritiumkontamination des Bodens als Folge des Tritiumgehalts der Niederschläge ist bis in das Grundwasser hinein nachweisbar. Nach den vorliegenden Meßergebnissen für die Tiefenverteilung der Tritiumkonzentration der Bodenfeuchte erhält man durch Extrapolation Schätzwerte für die vertikale Migrationsgeschwindigkeit tritierten Wassers im Boden zwischen 2 m/a und 4 m/a. Die vertikale Migrationsgeschwindigkeit von  $^{137}\text{Cs}$  liegt zwischen 0,4 cm/a und 1,6 cm/a.
- Die im Hirschkanal gefundene Radioaktivität läßt sich nicht ausschließlich als Folge des Fallouts aus den Kernwaffenversuchen und aus den Ableitungen des Kernforschungszentrums Karlsruhe in die Atmosphäre erklären.
- Aus den Tritiummessungen des Niederschlagswassers folgt ein Wert für die Proportionalitätskonstante  $s = \Lambda/\Theta$  ( $\Lambda$  Washoutkonstante,  $\Theta$  Niederschlagsmenge) zwischen  $1 \cdot 10^{-9}$  a/(mm·s) und  $2 \cdot 10^{-9}$  a/(mm·s).

Radioecological Consequences of Many Years of Operation of the Nuclear Facilities of the Karlsruhe Nuclear Research Center on the Immediate Vicinity of the Center

- Individual Studies Limited in Time as an Extension of and Supplement to the Routine Monitoring Program -

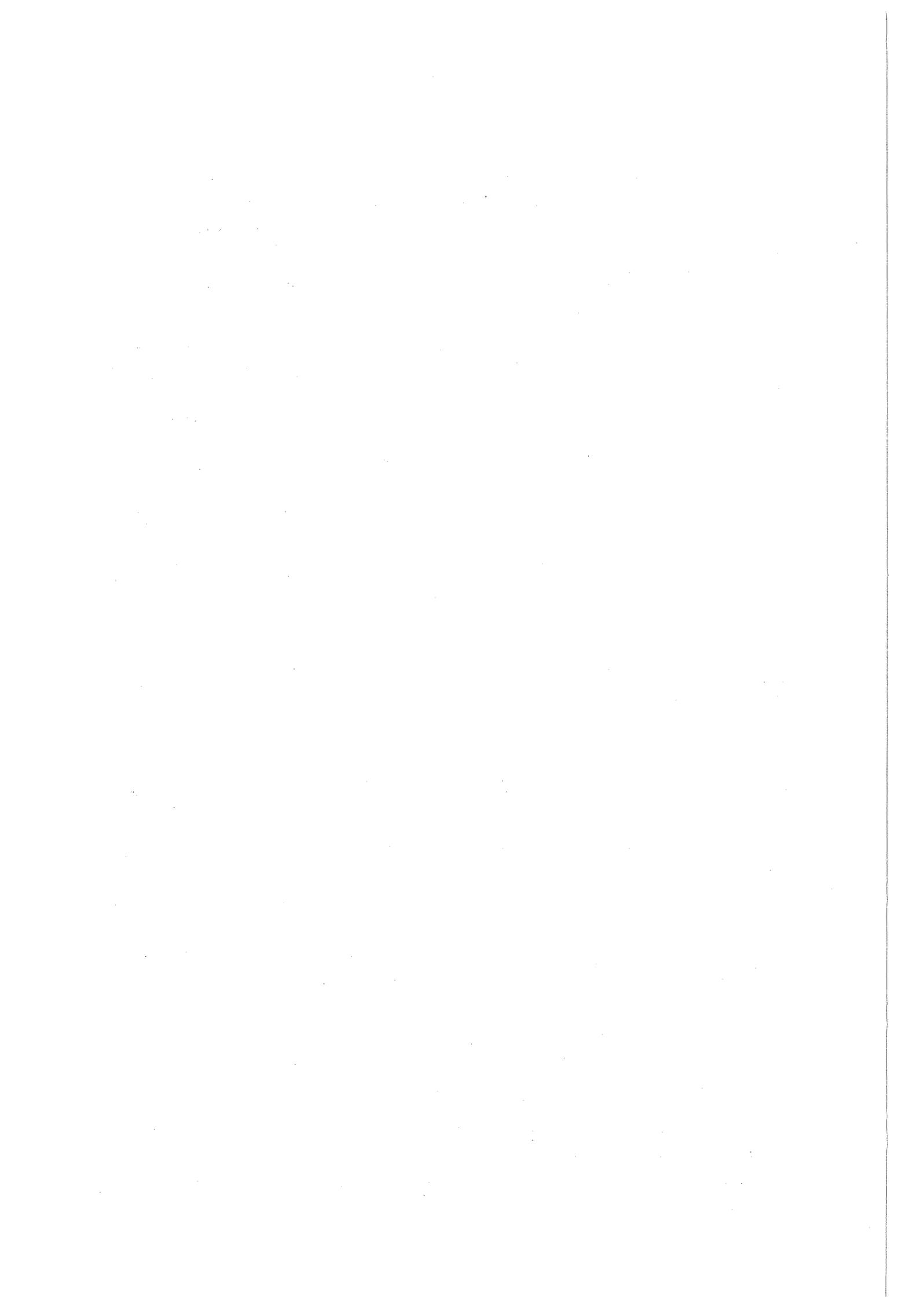
## Summary

Within the framework of a program promoted by the Federal Ministry of the Interior the radioecological consequences were studied which resulted from many years of operation of the nuclear facilities of the Karlsruhe Nuclear Research Center on the immediate vicinity of the latter. The following subjects were treated:

- burden of the soil and the built-up areas due to fallout and washout
- penetration of activity into the soil and tracking - as far as possible - down to the ground water
- radioactive burden of the Hirschkanal
- tritium in the precipitation as a result of tritium releases into the atmosphere.

Major results derived from the measuring program are:

- The contaminations of soil and plants detected within the area of the Karlsruhe Nuclear Research Center are primarily attributable to nuclear weapons fallout. Other sources of contaminations by emitters of the Karlsruhe Nuclear Research Center were found to be the Central Decontamination Department, especially the zone close to the incineration facility.
- The tritium contamination of the soil resulting from the tritium content of the precipitations can be detected down to the ground water. On the basis of measuring results available for the distribution in terms of depth of the tritium concentration of the soil moisture an extrapolation gives estimated values for the vertical migration rate of tritiated water in the soil between 2 m/a and 4 m/a. The vertical migration rate of  $^{137}\text{Cs}$  ranges from 0.4 cm/a to 1.6 cm/a.
- The radioactivity measured in the Hirschkanal cannot be explained solely as a result of fallout from nuclear weapons tests and from the discharges into the atmosphere by the Karlsruhe Nuclear Research Center.
- The tritium measurements in the water of precipitations yield a value for the proportionality constant  $s = \Lambda/\Theta$  ( $\Lambda$  = washout constant,  $\Theta$  = amount of precipitation) between  $1 \times 10^{-9}$  a/(mm·s) and  $2 \times 10^{-9}$  a/(mm·s).



Inhaltsverzeichnis

	<u>Seite</u>
1. Einleitung	1
2. Beaufschlagung des Bodens und der bebauten Flächen durch Fallout und Washout	2
2.1 $\gamma$ -spektrometrische Untersuchung von Niederschlägen	2
2.2 Kontamination von Gebäudedächern durch Ablei- tungen über den Luftpfad	2
2.3 Aktivitätsablagerungen an Straßenrändern	5
2.4 Bodenkontamination im Betriebsgelände des Kern- forschungszentrums Karlsruhe und seiner Umgebung	8
3. Eindringen der Aktivität in den Boden und Verfol- gung - soweit möglich - bis zum Grundwasser	11
3.1 Tritiumkontamination der Bodenfeuchte infolge von Tritiumableitungen in die Atmosphäre	11
3.2 Kontamination des Grundwassers mit Tritium durch Ableitungen über den Luftpfad	13
3.3 Vertikalverteilung von $^{137}\text{Cs}$ im Boden	18
4. Belastung des Hirschkanals	19
5. Tritium im Niederschlag infolge von Tritiumfrei- setzungen in die Atmosphäre	27
6. Schlußfolgerungen und Schlußbemerkungen	35
7. Literatur	36

## 1. Einleitung

Aus den kerntechnischen Anlagen des Kernforschungszentrums Karlsruhe (Reaktoren, Wiederaufarbeitungsanlage, Dekontaminationsbetriebe, Forschungsinstitute) wurden in den letzten drei Jahren im Mittel jährlich 65 TBq Tritium, 40 MBq  $\alpha$ -Aktivität sowie 4 GBq  $\beta$ -Aktivität (ohne Tritium) in die Atmosphäre abgeleitet. Die Abgabe radioaktiver Stoffe mit der Abluft aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe (KfK) wird geregelt durch den jährlich neu zu erstellenden Abluftplan, der auf einer behördlichen Genehmigung und auf Grundsätzen basiert, die mit der Aufsichtsbehörde vereinbart wurden. Sporadische Untersuchungen haben gezeigt, daß der langjährige Betrieb der kerntechnischen Anlagen des KfK aufgrund der erlaubten Radioaktivitätsemissionen mit der Abluft und dem Abwasser zu meßbaren Kontaminationen im Nahbereich dieser Anlagen geführt hat. Durch Washout und Fallout gelangen die in die Atmosphäre abgeleiteten radioaktiven Stoffe zum Teil über die Regenwasserkanalisation in ein Oberflächengewässer (Hirschkanal). Außerdem ist vorstellbar, daß die auf dem Boden abgelagerten radioaktiven Stoffe mit dem im Boden versickernden Regenwasser zum Grundwasser weiterwandern. Ein vom BMI gefördertes Forschungsvorhaben hatte zum Ziel, durch gezielte Erweiterung und Ergänzung des laufenden routinemäßigen Umgebungsüberwachungsprogramms diese Vorgänge zu untersuchen.

Im folgenden wird über Messungen im Kernforschungszentrum Karlsruhe zur genaueren Untersuchung der Kopplung zwischen Luft- und Wasserpfad berichtet. Diese Messungen wurden durch den Umstand erschwert, daß die Zuordnung von Emittenten und Kontaminationen nicht eindeutig ist. Zudem werden in erster Linie solche Radionuklide emittiert, die auch im Kernwaffenfallout enthalten sind, so daß Kontaminationen infolge von Emissionen aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe von jenen infolge von Kernwaffentests nicht ohne weiteres unterschieden werden können. Ferner muß beachtet werden, daß der Standort des KfK nicht uneingeschränkt mit Standorten anderer kerntechnischer Anlagen verglichen werden darf.

Im einzelnen wurden folgende Untersuchungen durchgeführt:

- Beaufschlagung des Bodens und der bebauten Flächen durch Fallout und Washout.
- Eindringen der Aktivität in den Boden und Verfolgung
  - soweit möglich - bis zum Grundwasser.
- Belastung des Hirschkanals.
- Tritium im Niederschlag infolge von Tritiumfreisetzung in die Atmosphäre.

Aufmerksamkeit gewidmet wurde insbesondere der Auswertung der vorliegenden Meßwerte in bezug auf die vertikalen Migrationsgeschwindigkeiten von Radionukliden im Boden, die von der örtlichen Bodenbeschaffenheit abhängen, sowie in bezug auf die Washoutkonstante für wassergebundenes Tritium. Dabei hat sich die Notwendigkeit zur Fortführung der Untersuchungen nach Beendigung der Förderungsdauer herausgestellt. Über die hierbei anfallenden Ergebnisse wird zu einem späteren Zeitpunkt berichtet werden.

## 2. Beaufschlagung des Bodens und der bebauten Flächen durch Fallout und Washout

### 2.1 $\gamma$ -spektrometrische Untersuchung von Niederschlägen

Seit Dezember 1980 bis Juni 1982 wurden regelmäßig an drei Stellen auf dem Betriebsgelände des Kernforschungszentrums (Sammelstellen: Meßhütte "West" am Westzaun des KfK, Meßhütte "Nordost" am Nordostzaun des KfK und "WAK" ca. 250 m nordöstlich des WAK-Abluftkamins) Niederschläge gesammelt und  $\gamma$ -spektrometrisch analysiert. Die Sammlung der Niederschläge erfolgte unter Verwendung von Hiberniatrichtern mit einer Auffangfläche von 0,5 m<sup>2</sup>. Die Probenentnahme erfolgte jeweils halbmonatlich, beginnend mit dem 1. Dezember 1980. Die gesammelten Niederschläge wurden zum Teil in einem Umlaufverdampfer, zum Teil im Trockenschrank bis auf 40 ml Probenmaterial eingengt. Das so gewonnene Konzentrat wurde mit Ge(Li)-Detektoren bei 1000 min Meßzeit  $\gamma$ -spektrometrisch untersucht. Die Meßergebnisse der regelmäßigen Niederschlagsüberwachung sind in Tab. 2/1 zusammengestellt. In der Tabelle wurden nur diejenigen Nuklide berücksichtigt, die mindestens für einen Monat einen Wert oberhalb der Nachweisgrenze aufwiesen. Außer <sup>7</sup>Be, das natürlichen Ursprungs ist, wurde im gesamten Beobachtungszeitraum nur <sup>137</sup>Cs ständig im Niederschlag nachgewiesen. Die übrigen Nuklide wurden in erster Linie in dem Zeitraum Dezember 1980 bis Juli 1981 gefunden.

Als Folge der oberirdischen Zündung einer chinesischen Atombombe am 16. Oktober 1980 im Gebiet von Lop Nor stieg die Aktivitätskonzentration verschiedener Radionuklide in der Luft im November 1980 deutlich an. Mit Beginn der Niederschlagsüberwachung (Dezember 1980) wurden auch im Niederschlag diese Nuklide nachgewiesen. Der gleichmäßige Verlauf der Niederschlagsaktivität bei allen drei Meßhütten zeigt - innerhalb der Schwankungsbreite der angegebenen Fehlergrenzen sind die monatlichen Meßwerte der drei Meßhütten oftmals gleich -, daß die Niederschlagsaktivität in erster Linie auf den Kernwaffentest zurückzuführen ist. Deutliche Unterschiede zwischen den einzelnen Meßstellen werden durch fremde Einflüsse, so z. B. Aktivitätsableitungen aus dem Kernforschungszentrum bzw. unterschiedliche Regenintensität an den Meßhütten, hervorgerufen. Eine Interpretation der einzelnen Meßwerte kann nur im Hinblick auf die Niederschlagsmenge erfolgen. Die monatliche Niederschlagsaktivität der einzelnen Jahre ist z. B. nur bedingt miteinander vergleichbar, da deutliche Unterschiede in den monatlichen Niederschlagsmengen bestehen.

### 2.2 Kontamination von Gebäudedächern durch Ableitungen über den Luftpfad

In Tab. 2/2 sind Meßergebnisse von Moos- und Schmutzproben zusammengestellt, die verteilt über das Betriebsgelände des Kernforschungszentrums (s. Abb. 2/1) auf relativ gut zugänglichen Gebäudedächern genommen wurden. Tab. 2/3 zeigt zum Vergleich Meßwerte einer Schmutzprobe vom Dach des Parkhauses Waldstraße, Karlsruhe (Referenzstelle). Gegenüber dieser Referenzstelle zeigen die Proben vom Gelände des Kernforschungszentrums deutlich erhöhte Meßwerte. Eine Interpretation dieser Werte ist sehr schwierig, da aus den einzelnen Proben nicht auf die gesamte auf der Dachfläche abgelagerte Aktivität geschlossen werden kann. Außerdem muß erwartet werden, daß ein Teil der Aktivität über die Regenwasserkanalisation weggeschwemmt worden ist. Die Nuklidzusammensetzung läßt jedoch keinen Zweifel an der Mitverursachung durch Emittenten des Kernforschungszentrums zu.

Nuklid/ Sammelstelle	Dezember 1980	Januar 1981	Februar 1981	März 1981	April 1981	Mai 1981	Juni 1981	Juli 1981	August 1981	September 1981	Oktober 1981	November 1981	Dezember 1981	Januar 1982	Februar 1982	März 1982	April 1982	Mai 1982	Juni 1982	
Niederschlagsmenge in mm																				
I*	63,7	69,0	34,0	49,2	56,5	79,4	98,2	62,7	38,4	46,7	145,1	52,8	83,6	144,6	14,1	60,0	28,1	55,2	94,4	
II	61,3	65,8	34,0	47,3	56,5	75,9	91,4	63,9	42,2	44,5	142,5	51,6	83,0	148,0	14,5	59,4	31,8	50,0	94,0	
III	60,7	64,1	35,0	50,6	55,5	80,6	87,6	35,8	32,6	55,3	146,3	53,7	96,6	113,8	15,8	59,6	27,8	49,0	112,6	
Aktivitätsflächenbelastung in Bq/m <sup>2</sup> **																				
<sup>7</sup> Be	I	32,5 ±3,5	64 ±7	51 ±8	108 ±9	64 ±6	129 ±8	163 ±9	153 ±11	77 ±7	87 ±10	188 ±9	76 ±7	82 ±6	109 ±9	195 ±3	95 ±9	56 ±7	152 ±10	161 ±11
	II	41,6 ±3,6	51 ±6	26 ±5	90 ±10	60 ±9	128 ±11	129 ±12	141 ±8	86 ±8	82 ±8	190 ±10	74 ±7	82 ±7	120 ±9	27 ±3	89 ±8	65 ±8	61 ±6	135 ±8
	III	50,0 ±4,1	52 ±6	52 ±8	91 ±9	60 ±10	148 ±13	158 ±13	84 ±8	97 ±9	137 ±9	193 ±11	75 ±7	84 ±8	116 ±9	26 ±6	102 ±9	64 ±9	114 ±10	185 ±11
<sup>54</sup> Mn	I	<0,37	<0,44	<0,48	<0,7	0,78±0,26	<1,0	1,11±0,33	<0,9	<0,6	<0,8	<0,6	<0,44	<0,6	<0,7	<0,6	<0,7	<0,7	<0,8	<0,7
	II	<0,37	<0,44	<0,44	<0,8	0,48±0,30	1,30±0,33	1,5 ±0,6	<0,7	<0,6	<0,7	<0,44	<0,6	<0,6	<0,7	<0,6	<0,7	<0,7	<0,7	<0,6
	III	<0,37	<0,44	<0,5	<0,48	0,52±0,30	1,44±0,37	<1,2	0,63±0,33	<0,7	<0,7	<0,8	<0,6	<0,7	<0,7	<0,7	<0,7	<0,7	<0,7	<0,8
<sup>90</sup> Zr	I	4,9 ±0,7	6,5 ±0,7	6,2 ±1,2	18,5 ±1,9	<1,3	26,9 ±2,1	25,6 ±1,6	11,9 ±2,0	<1,9	<1,9	<1,3	<1,2	<1,1	<1,6	<1,4	<1,7	<1,4	<1,8	<1,8
	II	3,00±0,44	5,1 ±1,1	5,6 ±1,3	19,6 ±2,1	15,6 ±1,9	35,1 ±2,3	20,1 ±2,0	9,5 ±1,2	2,6 ±1,2	<1,5	<1,3	<1,3	<1,3	<1,6	<1,1	<1,4	<1,7	<1,7	<1,3
	III	2,2 ±0,7	4,8 ±0,8	7,0 ±1,4	17,4 ±2,3	17,3 ±1,8	36,3 ±2,3	27,1 ±2,7	4,5 ±1,4	<1,7	<3,0	<1,8	<1,2	<1,5	<1,6	<1,5	<1,7	<1,7	<1,9	<1,8
<sup>95</sup> Nb	I	6,3 ±0,6	16,8 ±1,6	19,6 ±2,0	75,1 ±3,7	20,4 ±1,6	86,4 ±3,1	60,2 ±2,1	30,6 ±2,2	7,0 ±1,0	3,9 ±1,5	<0,9	<1,0	<0,8	<1,2	<1,0	<1,3	<1,2	<1,1	<1,5
	II	2,92±0,48	10,1 ±1,1	14,7 ±1,2	71,2 ±3,3	61,7 ±3,1	67,2 ±3,1	67,2 ±3,1	27,4 ±1,6	<1,0	<0,9	2,4 ±1,1	<0,9	<0,9	<1,1	<0,9	<1,1	<1,3	<1,5	<1,0
	III	3,4 ±0,6	7,1 ±0,9	21,1 ±2,1	47,4 ±2,4	66,9 ±3,0	118,6 ±3,7	84,8 ±3,6	16,4 ±1,6	3,4 ±1,2	10,4 ±1,2	<2,1	<1,0	<1,1	<1,2	<1,0	<1,4	<1,4	<1,5	<1,4
<sup>103</sup> Ru	I	7,6 ±1,3	14,9 ±1,0	13,9 ±1,4	30,2 ±2,0	12 ±1	25,0 ±1,6	14,8 ±1,1	6,2 ±1,4	<1,0	<1,4	<0,8	<0,9	<0,7	<1,0	<0,9	<1,0	<1,0	<1,0	<1,3
	II	7,55±0,48	10,6 ±1,0	12,0 ±1,0	17,7 ±1,4	17,9 ±1,6	21,9 ±1,7	13,4 ±1,7	5,9 ±0,9	<0,9	<0,9	<1,2	<0,9	<0,9	<0,9	<0,8	<0,9	<1,1	<1,2	<0,8
	III	10,4 ±0,6	10,2 ±1,0	13,2 ±1,3	31,7 ±1,7	18,8 ±1,6	29,7 ±2,0	16,0 ±1,9	3,4 ±1,0	<1,1	<0,9	<1,6	<0,8	<1,0	<1,0	<0,9	<1,2	<1,1	<1,2	<1,3
<sup>106</sup> Ru/Rh	I	<3,1	<9	<6	12,6 ±3,8	12,0 ±2,9	27,5 ±4,4	25 ±6	16,4 ±4,7	<5	<7	<5	<4,7	<6	<6	<6	<6	<6	<5	<7
	II	<3,2	<3,7	<4,7	13,2 ±3,8	12,6 ±3,0	25,4 ±4,6	<14	17,3 ±3,4	<6	<6	<4,6	<6	<4,1	<6	<4,7	<5	<6	<6	<5
	III	<3,2	<3,6	<6	12,7 ±3,6	14,8 ±3,1	32,4 ±4,6	33 ±7	12,9 ±3,4	<7	<6	<6	<4,7	<6	<6	<6	<6	<6	<6	<5
<sup>125</sup> Sb	I	<0,9	<1,9	<1,6	<1,2	<0,7	<1,6	3,0 ±1,1	<1,8	<1,4	<1,9	<1,4	<1,4	<1,4	<1,8	<1,5	<1,7	<1,7	<1,4	<1,8
	II	<0,9	<1,1	<1,1	<1,8	1,0 ±0,7	<1,7	<2,0	<1,4	<1,8	<1,6	<1,8	<1,8	<1,7	<1,4	<1,3	<1,9	<1,7	<1,7	<1,4
	III	<1,0	<1,2	<1,1	<1,3	<0,7	<1,4	<3,1	<1,1	<1,9	<2,3	<1,9	<1,4	<1,8	<1,8	<1,8	<1,3	<1,9	<1,8	<1,9
<sup>137</sup> Cs	I	0,89±0,30	4,00±0,48	1,89±0,41	2,00±0,41	2,29±0,37	3,6 ±0,5	6,0 ±0,6	3,2 ±0,7	4,6 ±0,5	1,5 ±0,7	1,9 ±0,6	<0,7	2,33±0,37	4,3 ±0,9	2,0 ±0,6	3,8 ±0,7	1,1 ±0,6	<1,2	4,0 ±0,9
	II	1,44±0,33	1,74±0,41	1,92±0,37	2,22±0,41	2,00±0,37	3,55±0,48	2,3 ±0,6	3,40±0,48	1,2 ±0,6	<1,3	3,2 ±0,6	8,7 ±0,7	5,5 ±0,7	2,4 ±0,7	1,2 ±0,5	2,7 ±0,6	1,6 ±0,7	<0,7	2,2 ±0,6
	III	1,04±0,37	1,30±0,37	1,63±0,41	2,66±0,41	1,70±0,37	4,14±0,48	4,9 ±0,8	1,9 ±0,7	1,9 ±0,7	1,0 ±0,6	2,2 ±0,7	2,1 ±0,6	<1,0	<0,7	<0,8	1,3 ±0,7	<1,1	1,8 ±0,5	1,8 ±0,5
<sup>141</sup> Ce	I	1,59±0,44	9,2 ±1,7	15 ±8	14,0 ±3,3	4,3 ±1,2	7,8 ±2,0	5,7 ±1,3	<1,6	<1,4	<2,7	<1,2	<1,5	<1,3	<1,5	<1,6	<1,8	<1,5	<1,6	<2,6
	II	1,8 ±0,5	3,9 ±1,2	3,8 ±1,1	10,8 ±2,6	4,9 ±2,2	4,7 ±1,8	5,0 ±1,7	<1,7	<1,7	<1,7	<1,9	<1,5	<1,6	<1,5	<1,4	<1,1	<2,3	<1,9	<1,3
	III	4,1 ±0,5	3,5 ±1,0	9,5 ±2,5	9,4 ±2,4	7,4 ±2,2	6,9 ±2,4	6,1 ±1,6	<2,1	<2,1	<1,7	<2,4	<1,2	<1,9	<2,0	<1,7	<2,4	<2,3	<1,8	<1,8
<sup>144</sup> Ce	I	<1,7	7,8 ±2,0	7,4 ±2,2	21,5 ±2,4	10,7 ±1,7	40,3 ±3,5	56,5 ±3,6	26,1 ±2,0	5,8 ±1,4	<5	<3,5	<4,0	<3,8	<4,9	<4,4	<3,8	<3,8	<3,4	<5
	II	<1,8	<6	4,5 ±1,9	13,8 ±2,6	15,5 ±2,3	30,0 ±2,7	38,8 ±3,3	28,0 ±2,8	11,0 ±3,3	<4,8	<4,4	<4,1	<4,0	<3,8	<3,8	<3,9	<5	<4,0	<3,7
	III	<1,9	<2,5	5,7 ±2,1	13,4 ±2,4	23,1 ±2,6	46,6 ±3,6	48,9 ±3,4	8,7 ±2,3	<10	11,5 ±2,7	<4,5	<4,5	<5	<4,9	<5	<5	<5	<5	<5
<sup>241</sup> Am	I	<1,6	<3,6	6,7 ±1,5	7,3 ±1,3	3,8 ±1,1	<3,0	<3,8	<1,6	<3,1	<2,0	<2,1	<1,9	<1,5	<1,8	<1,9	<1,8	<1,8	<1,7	<2,1
	II	<1,2	<4,0	4,4 ±1,5	<7	<1,6	<2,3	<2,4	<2,6	<2,8	<2,3	<2,1	<1,9	<1,8	<1,9	<1,9	<1,9	<1,9	<1,9	<2,0
	III	<1,2	5,6 ±1,1	6,4 ±1,6	6,7 ±1,3	<1,4	<3,1	<1,7	<2,7	<3,8	<1,9	<2,4	<1,7	<1,9	<1,9	<1,9	<1,9	<1,9	<2,1	<2,1

\*I: Meßhütte "West", II: Meßhütte "Nordost", III: Sammelstelle "WAK"

\*\*Fehlerangabe: 3σ

Tab. 2/1: Niederschlagsmenge und Aktivitätsflächenbelastung an drei Sammelstellen auf dem Betriebsgelände des KfK

Nuklid	Probenahmeort, Gebäudenummer									
	IRCh, 321	IRCh, 321a	Gästelabor, 342	Zyklotron, 351/352	FR2, 601/609	HDB, 536	HDB, 545	INE, 712	IHCh, 721	IHCh, 725
spezifische Aktivität in mBq/g TS*										
<sup>7</sup> Be	710 ± 60	890 ± 90	1140 ± 90	1650 ± 100	420 ± 100	670 ± 190	540 ± 140	670 ± 170	460 ± 140	750 ± 120
<sup>40</sup> K	1040 ± 80	1584 ± 120	1070 ± 90	1380 ± 100	900 ± 120	1750 ± 160	1030 ± 120	3290 ± 300	1400 ± 190	1940 ± 170
<sup>54</sup> Mn	10 ± 4	130 ± 60	30 ± 6	12 ± 6	-	-	-	-	-	-
<sup>60</sup> Co	7 ± 6	-	10 ± 6	11 ± 10	12 ± 10	78 ± 19	15 ± 11	-	-	22 ± 11
<sup>95</sup> Zr	54 ± 9	58 ± 15	225 ± 18	81 ± 13	62 ± 17	39 ± 17	96 ± 22	-	-	52 ± 19
<sup>95</sup> Nb	116 ± 9	138 ± 13	551 ± 19	188 ± 12	165 ± 16	118 ± 14	266 ± 22	52 ± 22	93 ± 22	131 ± 16
<sup>103</sup> Ru	-	-	20 ± 8	-	-	-	-	-	-	-
<sup>106</sup> Ru/Rh	263 ± 48	200 ± 60	1200 ± 70	53 ± 9	420 ± 130	2830 ± 140	1080 ± 120	-	740 ± 140	830 ± 120
<sup>125</sup> Sb	64 ± 14	59 ± 22	263 ± 26	122 ± 22	85 ± 26	1660 ± 70	311 ± 41	-	170 ± 48	218 ± 37
<sup>131</sup> I	-	-	-	-	-	-	115 ± 37	-	-	-
<sup>134</sup> Cs	10 ± 4	14 ± 5	33 ± 6	33 ± 7	11 ± 7	192 ± 17	67 ± 13	-	39 ± 13	66 ± 12
<sup>137</sup> Cs	446 ± 14	540 ± 22	873 ± 22	1010 ± 26	518 ± 22	6550 ± 80	1658 ± 41	118 ± 33	766 ± 33	1469 ± 37
<sup>144</sup> Ce	360 ± 30	418 ± 44	1520 ± 60	633 ± 44	520 ± 50	350 ± 80	890 ± 80	300 ± 110	230 ± 80	400 ± 60
<sup>154</sup> Eu	16 ± 7	-	-	-	-	-	-	-	-	-
<sup>155</sup> Eu	232 ± 18	30 ± 22	-	22 ± 19	-	-	-	-	-	-
spezifische Bruttoaktivität in mBq/g TS										
α	3080±320	1200±200	720±170	1200±200	1050±190	1990±260	1200±200	470±140	430±130	610±150
β	5270±380	5500±370	7470±390	6500±380	4840±320	11870±440	8880±370	3180±320	2900±260	4800±320

\*Fehlerangabe: 3σ; Meßwert unter der Nachweisgrenze: "-"

Tab. 2/2: Spezifische Aktivität von Moos- und Schmutzproben von Dächern verschiedener Anlagen des Kernforschungszentrums

N u k l i d	spezifische Aktivität in mBq/g TS*
<sup>7</sup> Be	122 ± 8
<sup>54</sup> Mn	1,5 ± 0,4
<sup>95</sup> Zr	54 ± 1,5
<sup>95</sup> Nb	101 ± 1,5
<sup>103</sup> Ru	16 ± 0,8
<sup>106</sup> Ru/Rh	17 ± 5
<sup>125</sup> Sb	2,7 ± 1,6
<sup>134</sup> Cs	0,85 ± 0,37
<sup>137</sup> Cs	54 ± 1,1
<sup>141</sup> Ce	18 ± 1,1
<sup>144</sup> Ce	78 ± 4

\*Fehlerangabe: 3σ

Tab. 2/3: Spezifische Aktivität einer Schmutzprobe vom Dach des Parkhauses Waldstraße, Karlsruhe (Referenzprobe)



### 2.3 Aktivitätsablagerungen an Straßenrändern

Im März 1982 wurden bei einer einmaligen Probenahmeaktion Schmutzproben von Straßenrändern genommen und auf künstliche Radioaktivität untersucht. Die Probenahmestellen (s. Abb. 2/1) liegen verteilt über das Betriebsgelände des Kernforschungszentrums, konzentrieren sich jedoch in erster Linie auf den Bereich der Hauptabteilung Dekontaminationsbetriebe (HDB). Die Schmutzproben wurden unmittelbar neben der asphaltierten Straße genommen. Das Probenmaterial wurde getrocknet und  $\gamma$ -spektrometrisch untersucht. Ferner wurden jeweils  $\alpha$ + $\beta$ -Bruttomessungen durchgeführt. Die Meßergebnisse dieser Untersuchung sind in den Tabn. 2/4 und 2/5 enthalten.

Probenahme- stelle	1 (HDB)	2 (HDB)	3 (HDB)	4 (HDB)	5 (HDB)	6 (HDB)	7	8
Nuklid	spezifische Aktivität in mBq/g TS*							
<sup>7</sup> Be	96 ±30	63 ±15	137 ±23	152 ±41	59 ±19	93 ±15	48 ±15	17 ±9
<sup>60</sup> Co	7,0± 4,8	1,6± 1,4	-	-	4,1± 2,6	-	-	-
<sup>95</sup> Zr	-	-	-	-	4,1± 2,6	-	-	-
<sup>95</sup> Nb	5,2± 2,6	-	-	-	5,9± 1,9	-	-	-
<sup>106</sup> Ru/Rh	104 ±26	28 ±15	20 ±18	13 ±11	81 ±15	28 ±19	-	-
<sup>125</sup> Sb	44 ± 7	16 ± 5	5,2± 4,4	7,0± 4,1	-	10 ± 6	-	-
<sup>134</sup> Cs	15,5± 3,3	5,9± 1,9	15,5± 3,0	3,1± 1,4	7,0± 1,9	4,4± 2,2	-	-
<sup>137</sup> Cs	318 ± 7	111,0± 3,7	192 ± 6	50,7± 3,3	214,6± 3,7	100 ± 7	8,1± 2,2	3,4±1,4
<sup>144</sup> Ce	24 ±12	-	-	-	-	13 ±10	6 ± 5	-
	spezifische $\alpha$ -, $\beta$ -Bruttoaktivität in mBq/g TS							
$\alpha$	104±78	81±78	<78	190±100	366±122	192±100	<78	140±90
$\beta$	1060±230	932±211	840±230	821±244	1402±255	1066±233	862±211	610±220

\*Fehlerangabe: 3 $\sigma$ ; Meßwert unter der Nachweisgrenze: "-"

Tab. 2/4: Spezifische Aktivität von Schmutzproben von Straßenrändern im Betriebsgelände des KfK

Probenahme- stelle	9	10	11	12	13	14	15	16
Nuklid	spezifische Aktivität in mBq/g TS*							
<sup>7</sup> Be	41 ±11	26 ±12	22 ± 9	56 ±11	74 ±15	59 ±15	30 ±12	52 ±19
<sup>60</sup> Co	-	-	-	-	-	-	-	-
<sup>95</sup> Zr	-	-	-	-	3,6± 2,8	-	-	-
<sup>95</sup> Nb	1,3± 1,0	-	-	1,7± 1,3	7,8± 2,2	-	-	3,0± 1,6
<sup>106</sup> Ru/Rh	-	-	-	-	-	33 ±16	16 ±11	59 ±15
<sup>125</sup> Sb	-	-	-	-	20 ±13	7 ± 5	4,1± 3,3	10,0± 4,8
<sup>134</sup> Cs	2,4± 1,4	-	2,3± 1,2	-	-	4,1± 1,9	-	7,0± 1,9
<sup>137</sup> Cs	15,9± 1,9	24,8± 2,2	36,6± 2,2	6,3± 1,9	-	74,0± 3,7	48,1± 3,3	114,7± 3,7
<sup>144</sup> Ce	-	-	<3,7	-	59 ±11	-	20 ± 9	16 ±10
	spezifische $\alpha$ -, $\beta$ -Bruttoaktivität in mBq/g TS							
$\alpha$	120±90	100±80	96±89	<78	420±120	160±90	210±110	<90
$\beta$	870±120	840±180	760±230	730±220	1390±240	1050±190	1400±240	880±230

\*Fehlerangabe: 3 $\sigma$ ; Meßwert unter der Nachweisgrenze: "-"

Tab. 2/4: Fortsetzung

Probenahme- stelle	17 (HDB)	18 (HDB)	19 (HDB)	20 (HDB)	21	22	23
Nuklid	spezifische Aktivität in mBq/g TS*						
<sup>7</sup> Be	-	-	35 ±14	126 ±22	23 ±12	19 ±11	-
<sup>60</sup> Co	-	-	-	3,6± 2,1	-	1,5± 0,9	-
<sup>95</sup> Nb	-	-	-	1,7± 1,4	-	-	-
<sup>106</sup> Ru/Rh	-	-	13 ±11	118 ±15	20 ±12	14 ± 8	-
<sup>125</sup> Sb	6,3±2,6	9,6±4,8	8,9±4,1	44 ± 7	19,2± 4,4	10,7± 4,4	-
<sup>134</sup> Cs	2,5±1,0	2,4±1,9	4,1±1,5	15,2± 2,2	4,4± 1,5	2,8± 1,7	-
<sup>137</sup> Cs	29,2±1,9	63,0±3,7	77,7±3,7	311 ± 7	104,0±3,3	48,1±2,6	10,7±1,9
<sup>144</sup> Ce	-	-	-	15 ±11	-	-	-
spezifische α-, β-Bruttoaktivität in mBq/g TS*							
α	<220	<200	<190	400±260	<220	<220	130±90
β	460±220	750±280	780±260	1290±290	830±290	690±280	810±240

\*Fehlerangabe: 3 ; Meßwert unter der Nachweisgrenze: "-"

Tab. 2/5: Spezifische Aktivität von Schmutzproben von Straßenrändern in der Nähe des Kamins der Verbrennungsanlage der HDB

In den meisten Schmutzproben vom Gelände der HDB (Probenahmestellen 1 bis 6 und 17 bis 20 in Abb. 2/1) wurden die folgenden künstlichen Radionuklide identifiziert: <sup>60</sup>Co, <sup>95</sup>Zr, <sup>95</sup>Nb, <sup>106</sup>Ru/Rh, <sup>125</sup>Sb, <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs, <sup>144</sup>Ce. Die spezifische Aktivität einzelner Nuklide lag zum Teil deutlich über der Nachweisgrenze. In den Proben aus der unmittelbaren Nähe des HDB-Geländes - außerhalb des Betriebszaunes - wurden teilweise nur noch Spuren dieser Radionuklide nachgewiesen (Probenahmestellen 14 bis 16, 21 und 22 in Abb. 2/1). In den Proben vom übrigen Gelände des Kernforschungszentrums war in erster Linie <sup>137</sup>Cs enthalten. Nur vereinzelt wurden auch in diesen Proben noch Spuren anderer Nuklide gefunden. γ-spektrometrische Untersuchungen von Aerosolfiltern der Verbrennungsanlage der HDB zeigen mit den hier analysierten Proben übereinstimmende Nuklidzusammensetzungen. Ferner wurden die in der Kaminabluft der Verbrennungsanlage der HDB am stärksten auftretenden Nuklide <sup>137</sup>Cs, <sup>106</sup>Ru/Rh und <sup>125</sup>Sb auch in den hier untersuchten Proben am deutlichsten nachgewiesen. Die Bodenkontaminationen im Bereich der HDB müssen in erster Linie auf die Verbrennungsanlage zurückgeführt werden. Ferner können die Emissionen aus der LAW- und MAW-Eindampfung geringfügig zur Bodenkontamination beitragen. Die Emissionen der übrigen HDB-Anlagen sind vernachlässigbar klein. Eine genauere Interpretation der einzelnen Meßwerte ist jedoch nicht möglich, da die Aktivität am Straßenrand nicht allein aus Ablagerungen aus der Luft resultiert. Vom Regen wird zusätzlich auf der Straße abgelagerte Aktivität an den Straßenrand gespült. Auch können Überlagerungen von Emissionen verschiedener Anlagen nicht völlig ausgeschlossen werden.

2.4 Bodenkontamination im Betriebsgelände des Kernforschungszentrums Karlsruhe und seiner Umgebung

Im Rahmen einer Ingenieurarbeit [1] wurde untersucht, ob und inwieweit Bodenkontaminationen aufgrund von Aktivitätsableitungen mit der Abluft aus Anlagen des Kernforschungszentrums Karlsruhe nachweisbar sind und ob sich gegebenenfalls die Ablagerungen infolge von Emissionen aus dem Kernforschungszentrum in die Atmosphäre von jenen infolge von Kernwaffentests unterscheiden lassen. Verteilt über das Betriebsgelände des Kernforschungszentrums Karlsruhe (s. Abb. 2/2) sowie an verschiedenen Referenzstellen, die als vom Kernforschungszentrum unbeeinflusst angesehen werden können, wurden eine Reihe von Boden- und Bewuchsproben (Gras, Laub) genommen. Als Probenmaterial wurde von jeder Probenahme- stelle jeweils der Bewuchs mit Wurzelwerk, Boden aus der 5 cm dicken Oberflächenschicht sowie Boden aus 5 bis 20 cm Tiefe verwendet und getrennt untersucht. Das Probenmaterial wurde getrocknet, homogenisiert und für die Messung in 100-ml-Plastikfläschchen abge- füllt. Die so aufbereiteten Proben wurden  $\gamma$ -spektrometrisch untersucht. Die  $\gamma$ -Spektro- metrie erfolgte mit Ge(Li)-Detektoren bei 1000 min Meßzeit. Aus Zeitgründen und mit Rücksicht auf die verfügbare Labor- und Arbeitskapazität wurde bei der Durchführung des gesamten Programms auf radiochemische Analysen verzichtet. Andernfalls hätte die Anzahl der untersuchten Proben drastisch verringert werden müssen. Zudem liegen über die radiochemisch in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe nachweisbaren Radionuklide eine Reihe von Daten vor [2-5].

Bei der  $\gamma$ -Spektrometrie der Boden- und Bewuchsproben wurden eine Reihe künstlicher Radio- nuklide nachgewiesen. Die Meßergebnisse sind in den Tabn. 2/6 bis 2/8 zusammengestellt.

Probenbezeich- nung	spezifische Aktivität in mBq/g TS*									Bemerkung
	<sup>95</sup> Zr	<sup>95</sup> Nb	<sup>103</sup> Ru	<sup>106</sup> Ru	<sup>125</sup> Sb	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>144</sup> Ce	<sup>60</sup> Co	
<u>Betriebsgelände</u>										
1	15±13*	37±11	-	-	-	-	126±15	-	-	Laub
2	-	59±19	-	-	37±19	-	122±15	56±41	-	Laub
3	-	89±19	-	74±41	27±11	-	107± 7	41±22	-	Laub
4	29±12	63±11	10± 8	70±60	-	-	74±11	37±33	-	Gras
5	9± 8	31± 7	-	-	-	-	41± 7	26±19	-	Gras
6	-	59± 4	-	-	-	-	22± 5	-	-	Gras
7	37±19	122±22	12±11	80±70	21±18	-	133±15	41±26	-	Gras
8	26±12	63±11	-	89±48	-	6±5	56± 7	41±33	-	Gras
9	-	89±37	-	110±50	24±14	6±6	174±11	-	-	Gras
10	27±10	56±11	14± 8	110±70	15±13	-	148±15	44±30	-	Gras
11	10±10	29± 7	-	52±37	23±12	-	155±15	23±18	-	Gras
12	-	37±15	-	100±90	26±19	-	155±19	56±33	11±9	Gras
13	34±15	78±15	13± 9	210±80	67±26	-	281±26	85±48	-	L + K
14	22±14	56±15	-	300±90	52±22	-	289±30	-	-	L + K
15	-	67±19	-	-	-	-	174±22	74±41	-	Kiefernnadeln
16	33±24	89±19	-	-	-	-	52±19	107±44	-	Laub
17	29±17	78±15	-	-	-	-	70±11	140±60	-	Laub
18	41±19	89±15	-	-	-	-	30±10	170±60	-	L + K
19	-	34±12	-	-	-	-	16± 8	-	-	Gras
20	30±10	44± 7	-	44±41	-	-	30± 6	56±26	-	Gras
21	20± 9	41± 7	-	85±44	18±14	-	148±11	67±26	-	Gras
22	-	52±15	-	-	-	-	59±11	-	-	Gras
23	23±16	41±11	-	-	-	-	70±11	44±30	-	Gras
24	-	37±11	-	-	-	-	36± 9	44±41	-	Gras
25	-	89±22	-	-	-	-	25±13	93±44	-	Gras
26	52±15	126±19	19± 9	60±50	24±23	-	63±11	148±44	-	Kiefernnadeln
<u>Referenzstellen</u>										
Neuburgweiher	17± 8	33± 7	-	-	-	-	16± 5	23±22	-	Gras
Blankenloch	-	44±11	-	110±80	20±7	-	137±15	41±37	-	Gras
Eggenstein	41±19	74±11	-	-	-	-	41±11	118±30	-	Laub

\*Fehlerangabe: 3 $\sigma$ ; Meßwert unter der Nachweisgrenze: "-"; Laub und Kiefernnadeln: L + K

Tab. 2/6: Spezifische Aktivität von Bewuchsproben aus dem Betriebsgelände des KfK sowie von verschiedenen Referenzstellen

Probenbezeichnung	spezifische Aktivität in mBq/g TS*						Bemerkung
	<sup>60</sup> Co	<sup>95</sup> Nb	<sup>106</sup> Ru/Rh	<sup>125</sup> Sb	<sup>137</sup> Cs	<sup>155</sup> Eu	
<u>Betriebsgelände</u>							
1	-	-	-	-	32,9±2,6	-	Waldboden
2	-	-	-	-	56 ±7	-	Waldboden
3	-	-	-	-	48,1±3,7	-	Waldboden
4	-	-	-	-	21,1±2,6	-	Waldboden
5	-	-	-	-	24,1±1,9	-	Sandboden
6	-	-	-	-	21,1±3,0	-	Sandboden
7	-	-	-	-	10,7±1,9	-	Sandboden
8	-	-	-	-	13,3±2,2	-	Sandboden
9	-	-	-	-	11,5±1,9	-	Sandboden
10	-	70±44	-	-	13,0±2,6	-	Sandboden
11	3,3±3,0*	3,7±1,9	-	8,1±4,4	93 ±7	-	Sandboden
12	-	-	14±13	-	70,3±3,7	-	Sandboden
13	-	-	-	-	133,2±3,7	-	Waldboden
14	-	-	-	-	63 ±3,7	-	Waldboden
15	-	26±9	-	-	51,8±3,7	-	Waldboden
16	-	-	-	-	40,7±3,7	23±5	Waldboden
17	-	5,6±2,2	-	-	48,1±3,7	-	Waldboden
18	-	-	-	-	55,5±3,7	-	Waldboden
19	-	-	-	-	23,3±2,2	-	Sandboden
20	-	-	-	-	17 ±1,9	-	Sandboden
21	-	-	-	-	32,9±2,2	-	Sandboden
22	-	-	-	3,7±3,0	23,3±3,0	-	Sandboden
23	-	-	-	-	13,7±1,9	-	Sandboden
24	-	-	-	-	9,3±1,5	-	Sandboden
25	-	-	-	-	15,9±2,2	-	Sandboden
26	-	-	-	-	100 ±7	-	Waldboden
<u>Referenzstellen</u>							
Neuburgweiher	-	-	-	-	18,1±2,6	-	Lehmboden
Blankenloch	-	3,0±1,9	-	-	11,8±1,9	-	Sandboden
Blankenloch	-	10±8	-	-	13,7±2,2	-	Sandboden
Blankenloch	-	-	-	-	40,7±3,7	-	Waldboden
Eggenstein	-	9,3±2,2	-	-	7,0±1,5	-	Sandboden
Linkenheim	-	-	-	-	17,8±2,2	-	Sandboden
Graben	-	3,0±1,9	-	-	14,4±1,9	-	Sandboden
Wiesental	-	-	-	-	14,1±1,9	-	Sandboden
Tauberbischofsheim	-	8,5±3,7	-	-	24,1±2,6	-	Lehmboden

\*Fehlerangabe: 3σ; Meßwert unter der Nachweisgrenze: "-"

Tab. 2/7: Spezifische Aktivität von Bodenproben aus dem KfK sowie von verschiedenen Referenzstellen (Probenmaterial aus der 5 cm dicken Oberflächenschicht)

Der Vergleich der Meßergebnisse der Proben aus dem Betriebsgelände des Kernforschungszentrums mit jenen von verschiedenen Referenzstellen zeigt, daß die nachgewiesenen Kontaminationen von Boden und Bewuchs im Bereich des Kernforschungszentrums in erster Linie auf Kernwaffenfallout zurückzuführen sind.

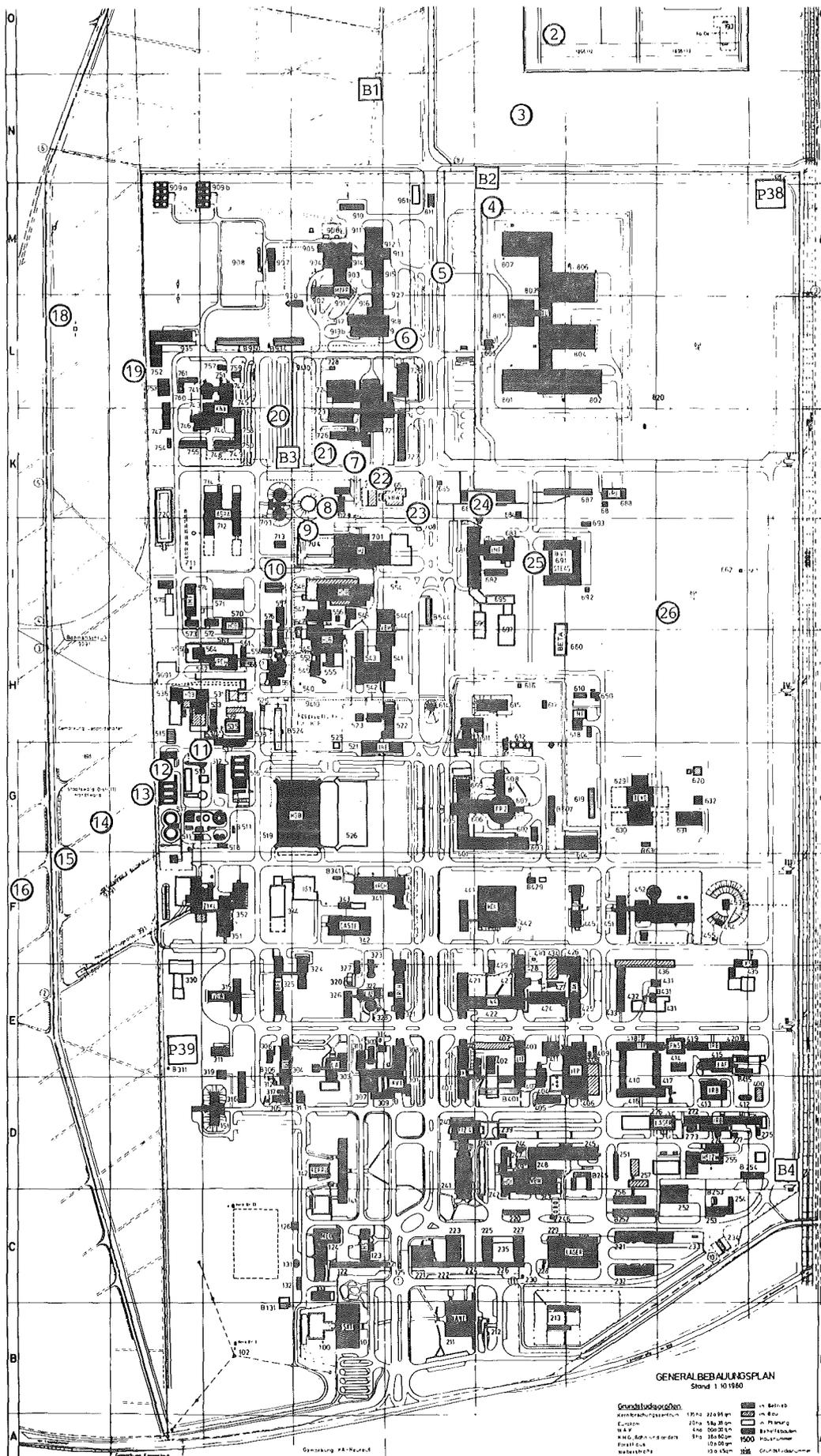


Abb. 2/2: Lageplan der Probenahme- und Bohrstellen

- Probenahmestelle für Bewuchs- und Bodenproben
- Bohrstellen

Probenbezeichnung	spezifische Cs-137-Aktivität in mBq/g TS*
Betriebsgelände	
1	4,4 ± 1,5*
2	5,9 ± 1,9
3	3,7 ± 1,9
4	16,3 ± 1,1
5	10,7 ± 1,9
6	5,9 ± 1,9
7	13,0 ± 1,9
8	8,9 ± 1,9
9	8,5 ± 1,9
10	9,3 ± 1,9
Referenzstellen	
Neuburgweiher	12,2 ± 1,9
Blankenloch	17,0 ± 2,2
Linkenheim	7,4 ± 1,9
Graben	16,7 ± 2,2
Wiesental	13,0 ± 1,9
Tauberbischofsheim	17,8 ± 2,6

\*Fehlerangabe: 3σ

Tab. 2/8: Spezifische <sup>137</sup>Cs-Aktivität in Bodenproben aus dem Betriebsgelände des KfK sowie von verschiedenen Referenzstellen (Probenmaterial aus 5 bis 20 cm Bodentiefe)

### 3. Eindringen der Aktivität in den Boden und Verfolgung - soweit möglich - bis zum Grundwasser

#### 3.1 Tritiumkontamination der Bodenfeuchte infolge von Tritiumableitungen in die Atmosphäre

Im Juni und Juli 1981 wurden im Rahmen eines befristeten Meßprogramms eine Reihe von Bodenproben genommen, um zusätzlich zur Tritiumkonzentration im Niederschlag für die entsprechenden Probenahmestellen auch den Tritiumgehalt der Bodenfeuchte zu bestimmen. Insgesamt wurden 20 Probenahmestellen ausgewählt in einem Umkreis von 250 bis 1000 m um den MZFR-Kamin (s. Abb. 3/1). Regenwasserproben wurden jedoch nur an 12 dieser Probenahmestellen gesammelt (Nr. 1 bis 12). Über die Untersuchung der Niederschlagsproben wird im Kap. 5 berichtet. Bei der Entnahme von Bodenproben wurde die oberste Schicht mit Gras und vermoderten Blättern entfernt, und es wurde dann mit einem Zylinder von 8,4 cm Durchmesser bis zu 10 cm Tiefe Proben - meist Sand - ausgestochen. Die Bodenfeuchte wurde mit Hilfe der azeotropen Destillation aus den Bodenproben gewonnen. Die Meßergebnisse dieser Untersuchung sind in Tab. 3/1 zusammengestellt. Die Interpretation der gemessenen Tritiumkonzentration in der Erdfeuchte ist schwierig, da diese sowohl vom Tritiumgehalt der Niederschläge und der Niederschlagsmenge während der Laufzeit des Meßprogramms als auch von der zuvor vorhandenen Bodenkontamination beeinflußt wird. Ein nicht vernachlässigbarer Parameter ist auch die zeitlich veränderliche Verdunstungsrate. Die Größenordnung der Tritiumkonzentration in der Erdfeuchte entspricht der Größenordnung der Tritiumkonzentration im Niederschlag (s. Kap. 5).

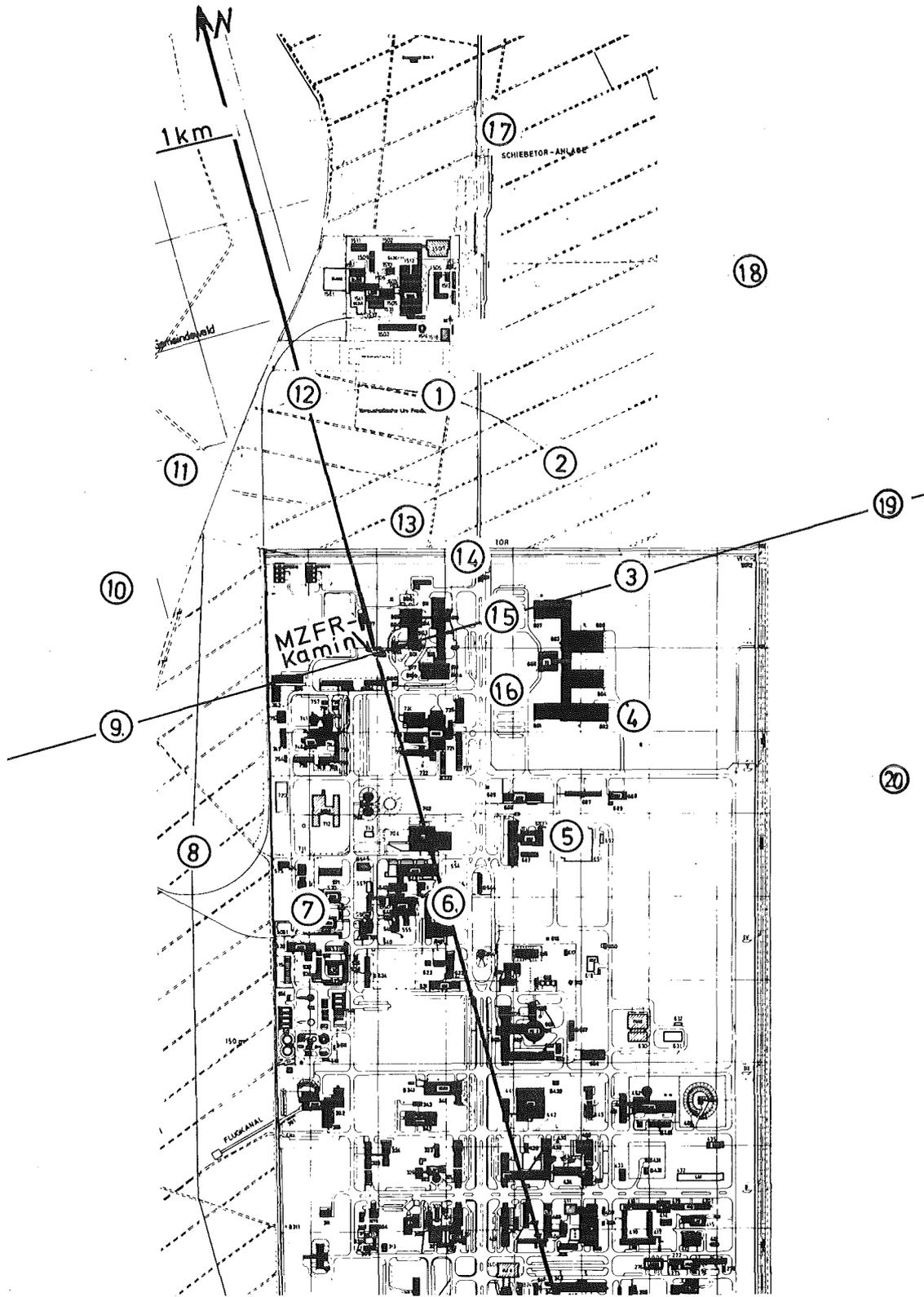


Abb. 3/1: Lageplan der Probenahmestellen zur Bestimmung der Tritiumkonzentration in der Bodenfeuchte

Probenahmestelle			Probenahmedatum							
Nr.	Polarkoordinaten (R = O, $\phi = 0$ : Emittent)		16.06.1981		22.06.1981		06.07.1981		14.07.1981	
			f	C <sub>B</sub>	f	C <sub>B</sub>	f	C <sub>B</sub>	f	C <sub>B</sub>
	R (m)	$\phi$ Grad	ml/kg TS	mBq/ml	ml/kg TS	mBq/ml	ml/kg TS	mBq/ml	ml/kg TS	mBq/ml
1	515	30	129	19,61	104	19,98	113	25,16	108	27,01
2	500	60	145	47,73	163	40,33	134	32,56	136	39,59
3	500	90	130	25,90	130	31,82	129	25,90	73	24,79
4	505	120	40	28,49	46	30,71	48	18,87	27	22,94
5	480	150	99	20,35	97	20,72	113	18,87	-	-
6	560	180	70	20,72	45	29,97	58	13,32	-	-
7	500	210	117	59,94	97	51,43	63	27,75	-	-
8	495	240	100	22,94	73	23,31	77	25,53	-	-
9	485	270	-	-	127	17,39	133	15,17	-	-
10	500	300	-	-	111	8,14	157	8,88	-	-
11	450	330	-	-	57	13,32	72	11,10	-	-
12	540	360	110	14,43	104	9,62	200	12,58	-	-
13	250	30	-	-	-	-	-	-	55	34,04
14	250	60	-	-	-	-	-	-	62	83,62
15	250	90	-	-	-	-	-	-	42	18,50
16	250	120	-	-	-	-	-	-	50	15,44
17	1000	30	-	-	-	-	-	-	55	24,42
18	1000	60	-	-	-	-	-	-	98	37,00
19	1000	90	-	-	-	-	-	-	100	22,20
20	1000	120	-	-	-	-	-	-	70	20,72

"-": keine Probenahme

Tab. 3/1: Bodenfeuchte f und Tritiumkonzentration C<sub>B</sub> in der Bodenfeuchte der oberen 10 cm (Numerierung wie in Abb. 3/1)

### 3.2 Kontamination des Grundwassers mit Tritium durch Ableitungen über den Luftpfad

Seit 1971 wird die Tritiumkonzentration im Regenwasser regelmäßig gemessen. Hierbei wurden meistens deutlich über der Nachweisgrenze liegende Meßwerte gefunden. Ein Teil des gefallenen Niederschlagswassers verdunstet bevor es im Boden versickern kann, ein Teil wird jedoch durch nachfolgende Niederschläge immer tiefer in den Boden gedrückt.

Zur Untersuchung der Möglichkeit einer Kontamination des Grundwassers durch Ableitungen über die Abluft wurden an fünf Stellen im Betriebsgelände des Kernforschungszentrums Tiefenbohrungen niedergebracht und Tiefenprofile der Tritiumkonzentration erstellt. Die Lage der Bohrstellen ist Abb. 2/2 zu entnehmen. Für die Bohrstellen B3 und B4 wurde eine maximale Bohrtiefe von 6 m, für die Bohrstellen B1, P38 und P39 eine Bohrtiefe von 10 m festgelegt. Die beiden Bohrstellen P38 und P39 wurden nach Beendigung der Bohrung zu Beobachtungspegeln ausgebaut. Aus bohrtechnischen Gründen mußte die Bohrung B1 bei 9 m Tiefe beendet werden. Die Probenahme an der Bohrstelle P38 wurde bereits bei 5 m Tiefe abgebrochen. Das Einsetzen starker Regenfälle hatte hier zur Vermischung der Erdfeuchte mit Regenwasser geführt, so daß eine eindeutige Zuordnung der <sup>3</sup>H-Konzentration zur Erdfeuchte nicht mehr gegeben war. Die Bodenproben wurden mit Hilfe eines Bohrrohres - 70 cm lang, Durchmesser ca. 25 bis 30 cm - entnommen, das mit Preßluft in das Erdreich getrieben wurde. Aus dem so gewonnenen Bohrkern wurde bis zu einer Tiefe von 2 m alle 25 cm, dann alle 50 cm Erdproben entnommen. Ab 6 m Tiefe wurde jeweils nur noch alle 100 cm eine Probe genommen.

Das Meßgut wurde mit Hilfe der azeotropen Destillation aus den Bodenproben gewonnen. Um eine möglichst gleichbleibende Qualität zu erhalten, wurden alle Wasserproben ein weiteres Mal destilliert. Die Abbn. 3/2, 3/3, 3/4 und 3/6 zeigen Beispiele für das Tiefenprofil der Tritiumkonzentration.

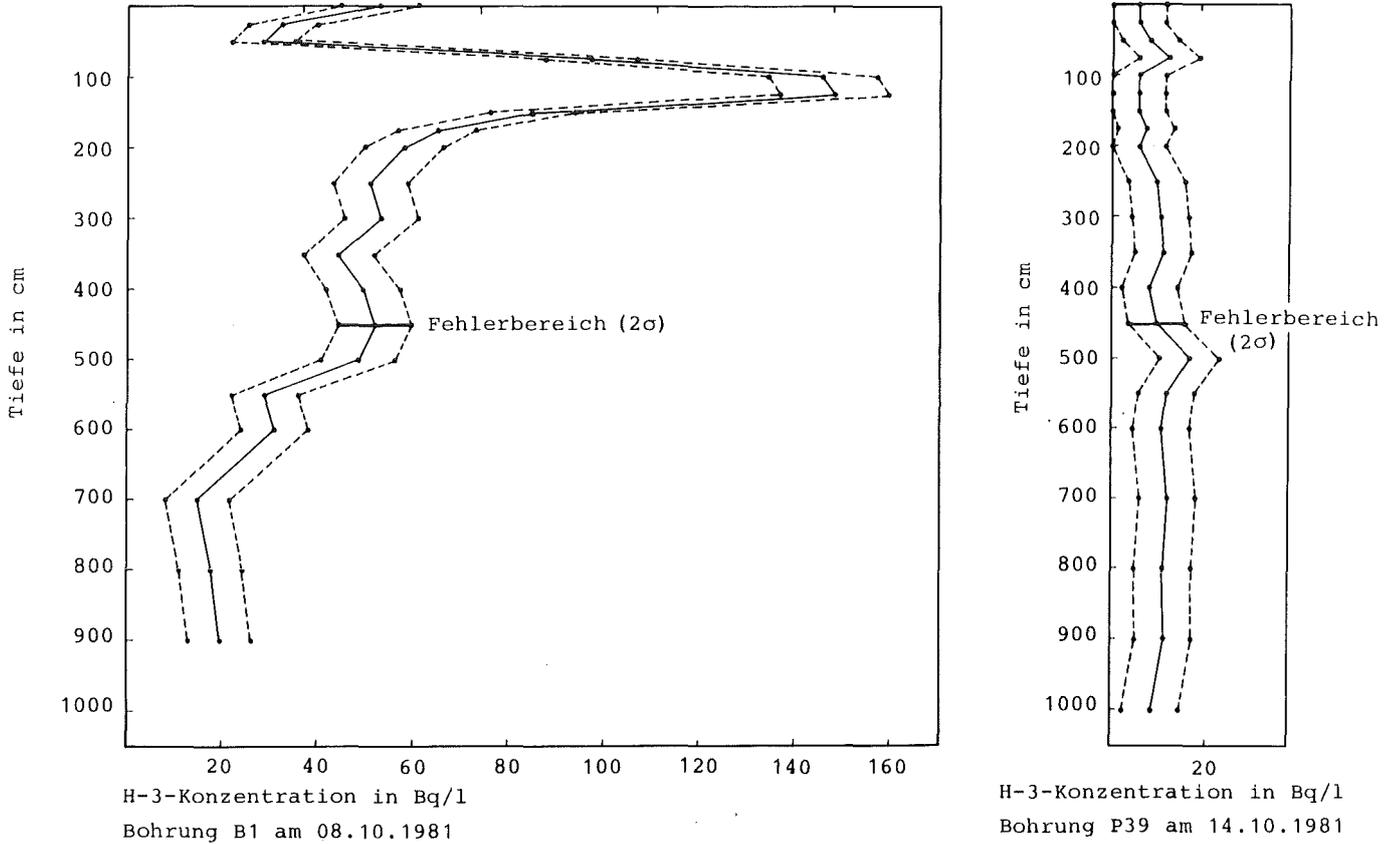


Abb. 3/2: Tiefenprofil der Tritiumkonzentration der Erdfeuchte für die Bohrungen B1 und P39

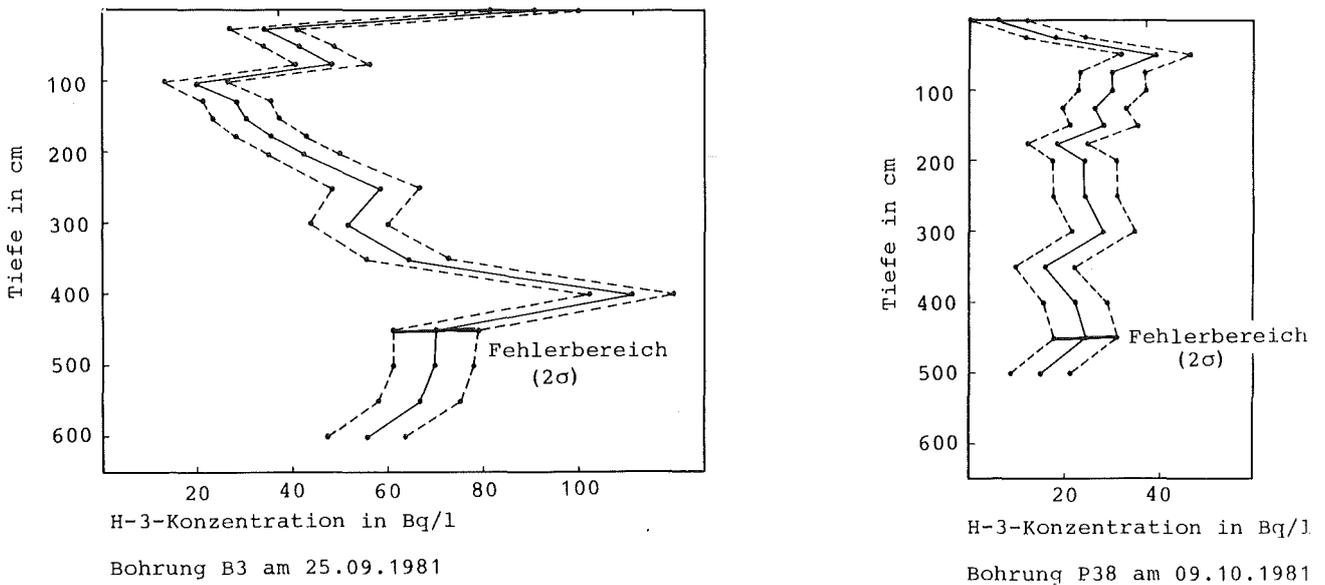


Abb. 3/3: Tiefenprofil der Tritiumkonzentration der Erdfeuchte für die Bohrungen B3 und P38

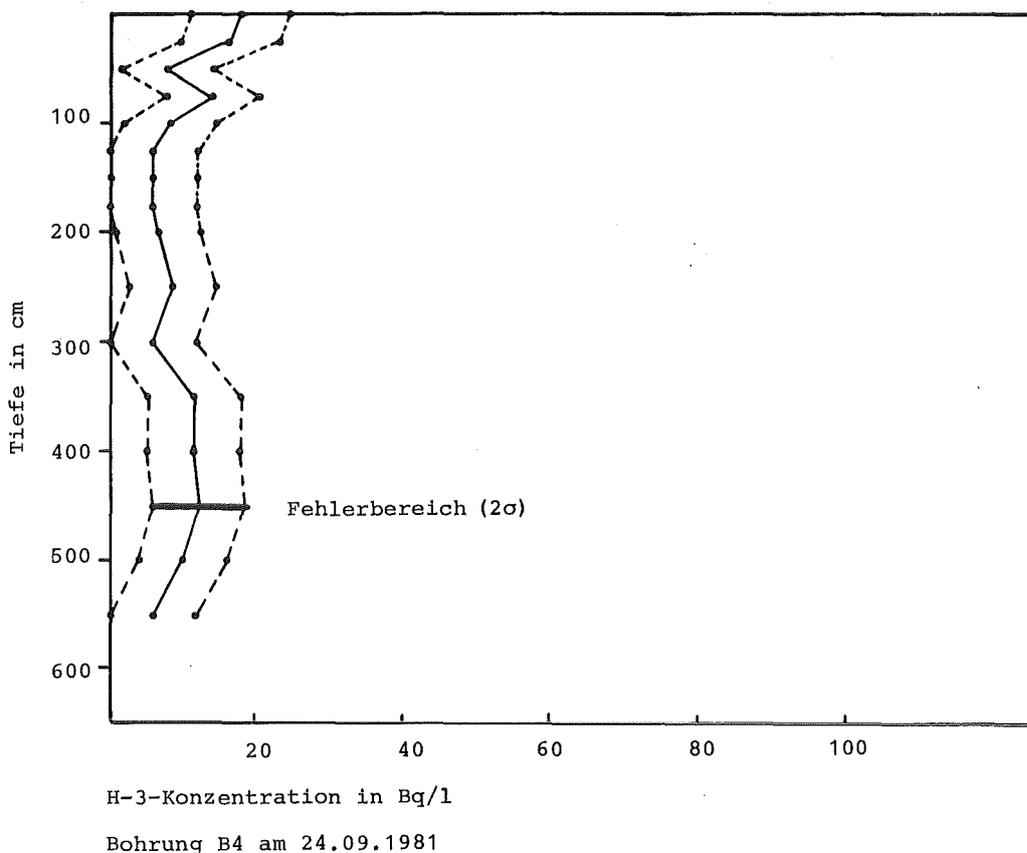


Abb. 3/4: Tiefenprofil der Tritiumkonzentration der Erdfeuchte für die Bohrung B4

In der Abb. 3/5 ist das Tritiuminventar pro Quadratmeter zwischen der Erdoberfläche und der abzulesenden Tiefe graphisch dargestellt. Nimmt man pauschal an, daß 40 % des Niederschlags verdunsten, so findet man, daß dem Wasserinventar des Bodens bis zum Grundwasserspiegel in ca. 5 m Tiefe der Niederschlag von 1,24 Jahren entspricht. Dies bedeutet eine durchschnittliche vertikale Wandergeschwindigkeit von etwa 4,0 m/a. An zwei Stellen - dort hatte die Untersuchung besonders markante Tiefenprofile ergeben - wurden nach 68 Tagen erneut Tiefenprofile erstellt (Bohrung B1b und B3b). Aus der Peakwanderung (s. Abb. 3/6) lassen sich vertikale Wandergeschwindigkeiten von 2,1 bzw. 2,7 m/a berechnen.

Es ist zu beachten, daß bei der zugrundeliegenden Modellvorstellung die Fortbewegung des Wassers nicht mit konstanter Geschwindigkeit, sondern schubweise entsprechend der Niederschlagstätigkeit erfolgt. Insofern ist nur die Angabe des Mittelwertes eine sinnvolle Größe, und bei der Messung muß über einen längeren Zeitraum gemittelt werden, um nicht rein zufällige Werte zu erhalten. Andererseits darf die Zeitspanne zwischen zwei Bohrungen nicht zu lang sein, um die beide Male gemessenen Tiefenverteilungen miteinander vergleichen zu können: Der vertikalen Bewegung der Bodenfeuchte ist eine Diffusion überlagert, die zu einer Verwischung des Tiefenprofils führt. Außerdem läßt sich die vertikale Wanderung nur bis zum Grundwasserspiegel verfolgen.

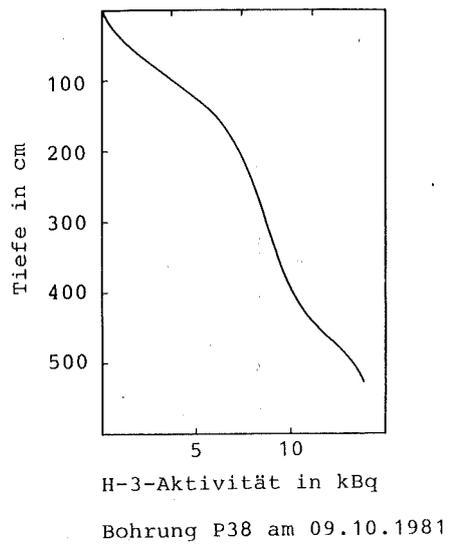
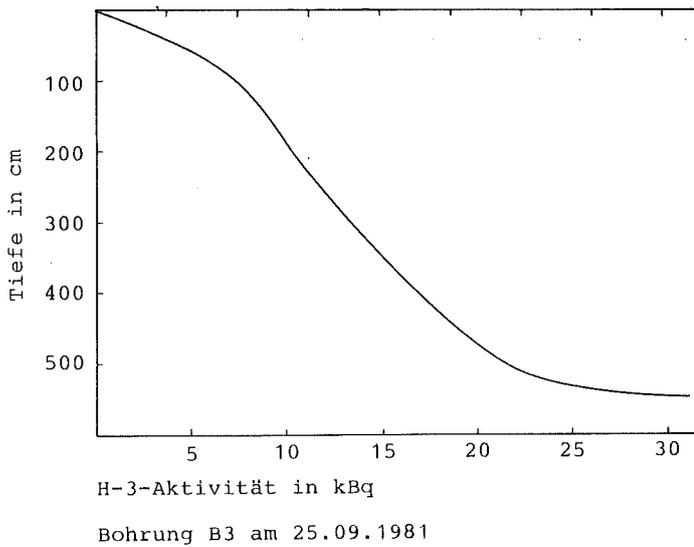


Abb. 3/5: Tritiuminventar pro Quadratmeter zwischen Oberfläche und angegebener Tiefe für die Bohrungen B3 und P38

Vorliegende Meßwerte für die vertikale Wandergeschwindigkeit stimmen gut mit Meßwerten aus dem Institut für Umweltp Physik der Universität Heidelberg [6] überein.

Ein wesentliches Ergebnis der Messung der Bohrproben ist, daß die Tritiumkonzentration im Grundwasser jener des darüberliegenden Erdreichs entspricht. Messungen an anderen Radionukliden haben gezeigt, daß diese sehr langsam in die Tiefe wandern. Eine Grundwasserkontamination durch diese Radionuklide kann daher ausgeschlossen werden, soweit sie nicht in Form besonderer löslicher Verbindungen vorliegen. Vorliegende Meßergebnisse können auch auf nicht radioaktive konventionelle Schadstoffe übertragen werden.

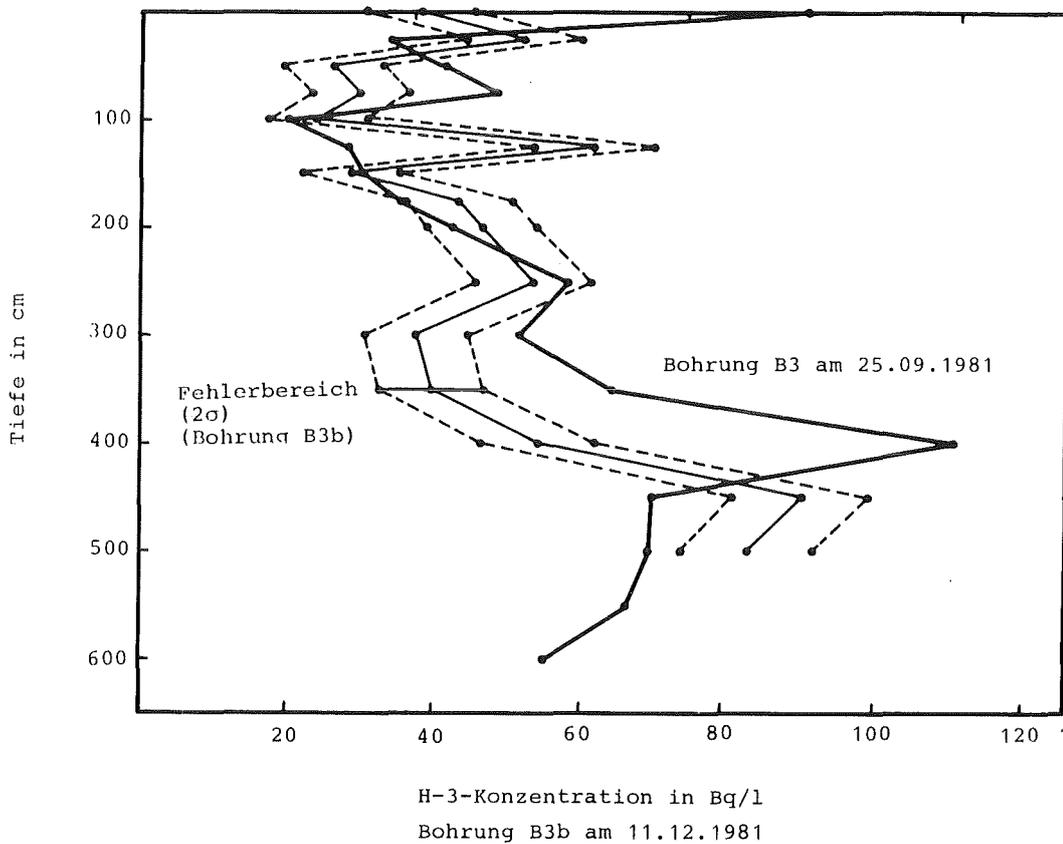
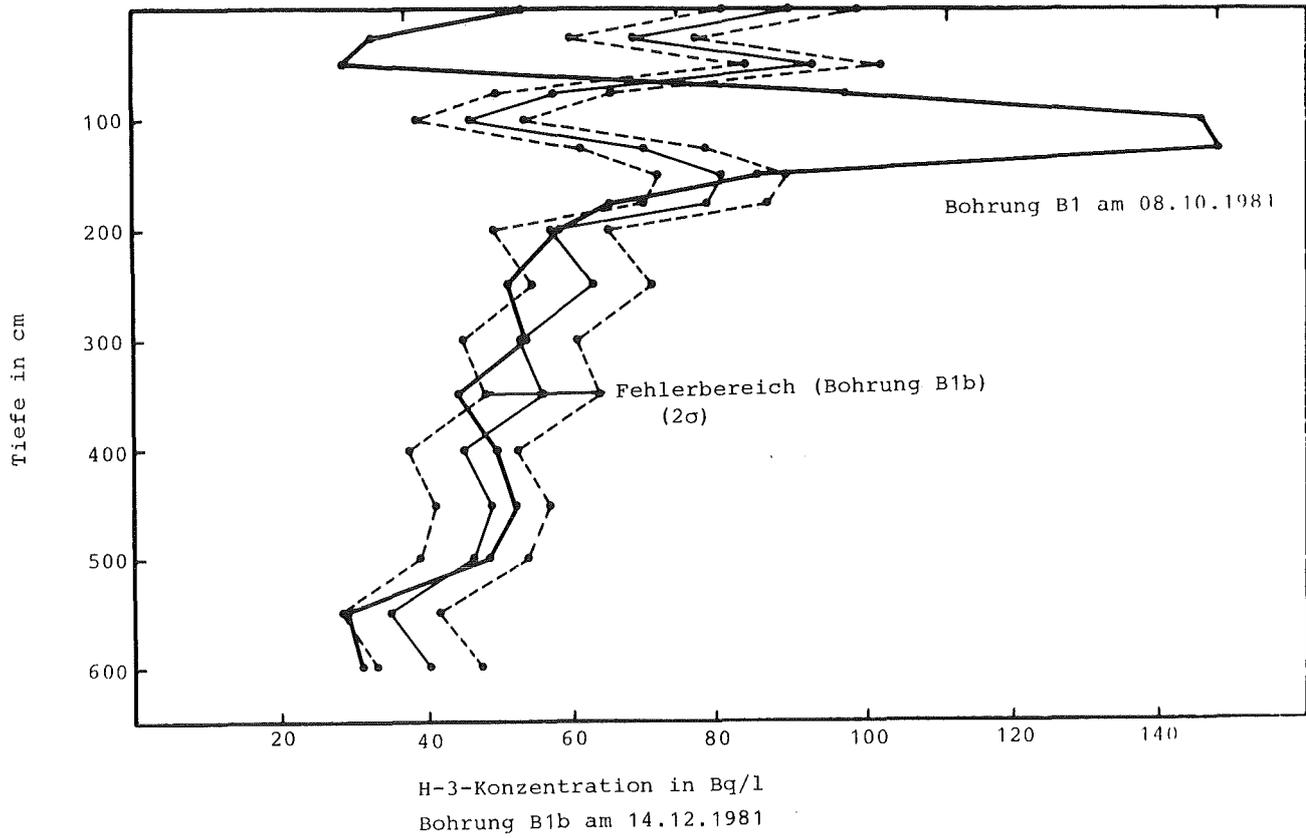


Abb. 3/6: Tiefenprofil der Tritiumkonzentration der Erdfeuchte für die Bohrungen B1b und B3b (Um die im Abstand von rund 70 Tagen an den gleichen Stellen durchgeführten Bohrungen unmittelbar miteinander vergleichen zu können, wurde jeweils das Tiefenprofil der ersten Bohrung nochmals miteingezeichnet (dicke ausgezogene Linie).)

### 3.3 Vertikalverteilung von $^{137}\text{Cs}$ im Boden

Die Untersuchung der Tiefenverteilung von  $^{137}\text{Cs}$  im Boden wurde zunächst an einer einzelnen Probenahmestelle im Betriebsgelände des KfK durchgeführt (s. Abb. 2/2, Probenahmestelle 24). Die Meßergebnisse dieser Untersuchung sind in Tab. 3/2 wiedergegeben. An dieser Probenahmestelle wurde Probenmaterial in den Tiefen 0 bis 3, 3 bis 7 und 7 bis 10 cm genommen. Von der insgesamt an dieser Probenahmestelle im Boden bis zu einer Tiefe von 10 cm enthaltenen spezifischen  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität (mBq/g TS) waren rund 63 % in den obersten 3 cm, 26 % in 3 bis 7 cm Tiefe und 11 % in 7 bis 10 cm Tiefe enthalten. Dagegen ergab sich der Maximalwert der  $^{137}\text{Cs}$ -Flächenbelegung (Bq/m<sup>2</sup>) in 3 bis 7 cm Bodentiefe.

In Übereinstimmung mit den in der Literatur angegebenen Werten nimmt die  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentration im Boden mit zunehmender Tiefe ab [7]. Jedoch liegen die für das Kernforschungszentrum ermittelten Werte zum Teil deutlich niedriger.

Tiefe in cm	Cs-137-Aktivität in mBq/g TS*	Cs-137-Flächenbelegung in Bq/m <sup>2</sup> *
0 - 3	22,2±2,6	318±33
3 - 7	9,3±1,5	390±70
7 - 10	3,7±1,5	190±70

\*Fehlerangabe: 3σ

Tab. 3/2:  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität und -Flächenbelegung in einer Bodenprobe aus dem KfK

Im Oktober 1982 wurde an einer weiteren Probenahmestelle im Gelände des Kernforschungszentrums die Tiefenverteilung von  $^{137}\text{Cs}$  im Boden untersucht (s. Abb. 2/2, Probenahme bei Bohrstelle B1). An der Probenahmestelle wurde ein Bohrkern von 10 cm Durchmesser und 150 cm Länge entnommen. Dieser Bohrkern wurde in 3 cm dicke Schichten unterteilt, wobei jede Schicht als einzelne Probe untersucht wurde. Die Proben wurden getrocknet, homogenisiert und  $\gamma$ -spektrometriert. Die Meßergebnisse dieser Untersuchung sind in Tab. 3/3 zusammengefaßt. Mit zunehmender Tiefe nimmt die  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentration im Boden ab. Das Maximum der  $^{137}\text{Cs}$ -Flächenbelegung dagegen liegt in 6 bis 9 cm Tiefe. Es kommt durch Unterschiede der Dichte der Bodenproben zustande. Insgesamt konnte  $^{137}\text{Cs}$  bis zu einer Tiefe von 30 cm nachgewiesen werden. Im Vergleich mit den Meßergebnissen der ersten Untersuchung der Vertikalverteilung von  $^{137}\text{Cs}$  im Boden ist die  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentration in diesen Bodenproben deutlich höher. Diese höhere  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität läßt sich dadurch erklären, daß bei dieser Untersuchung die Proben im Wald genommen wurden. Frühere Untersuchungen haben bereits gezeigt, daß die Humusschicht des Waldbodens, weil sie im wesentlichen aus vermoderten Blättern besteht, eine höhere Aktivität aufweist (vergl. Tab. 2/7).

Der Übergang von der Humusschicht zum mineralischen Boden ist deutlich an der relativ starken Abnahme der  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentration in den Proben 3 bis 5 zu erkennen. Während die Probe 3 nur aus Humusboden besteht, ist Probe 4 bereits eine Mischprobe aus Humusschicht und mineralischem Boden. Probe 5 besteht nur noch aus mineralischem Boden. Dieser Übergang der verschiedenen Bodenschichten läßt sich in gleicher Weise auch am spezifischen Gewicht der einzelnen Proben verfolgen.

Bezieht man die Eindringtiefe von  $^{137}\text{Cs}$  in den Boden von ca. 30 cm auf den Zeitpunkt der maximalen Aktivitätsablagerung durch Kernwaffenfallout im Jahr 1963, so ergibt sich für  $^{137}\text{Cs}$  eine maximale Wandergeschwindigkeit von  $\sim 1,6$  cm pro Jahr. Hätte man statt dessen die maximale Flächenbelegung pro 3 cm Schichtdicke der maximalen Beaufschlagung zugeordnet, so hätte man eine Wandergeschwindigkeit von 0,4 cm pro Jahr für  $^{137}\text{Cs}$  erhalten, was mit dem von Frissel und Jakubick [8] publizierten Wert übereinstimmt.

Proben-Nr.	Tiefe in cm	Cs-137-Aktivität in mBq/g TS*	Cs-137-Flächenbelegung in Bq/m <sup>2</sup> *
1	0 - 3	72,2 ± 5,9	862 ± 70
2	3 - 6	54,0 ± 3,7	1018 ± 70
3	6 - 9	44,8 ± 2,6	1214 ± 74
4	9 - 12	14,1 ± 2,6	507 ± 93
5	12 - 15	6,3 ± 1,5	278 ± 67
6	15 - 18	4,1 ± 1,9	215 ± 85
7	18 - 21	2,7 ± 1,7	137 ± 89
8	21 - 24	1,8 ± 1,7	85 ± 78
9	24 - 27	1,4 ± 1,3	81 ± 70
10	27 - 30	2,4 ± 1,3	122 ± 67
11	30 - 33	< 1,4	< 78
12	33 - 36	< 1,4	< 70

\*Fehlerangabe: 3σ

Tab. 3/3: Vertikalverteilung von  $^{137}\text{Cs}$  im Boden (Probenahme: Oktober 1982)

#### 4. Belastung des Hirschkanals

Niederschlags- und Kühlwässer aus dem Kernforschungszentrum werden in sechs getrennten Entwässerungssystemen dem Hirschkanal, einem Wassergraben am Ostzaun des Kernforschungszentrums, über Sandfänge zugeführt. Mit dem Niederschlagswasser gelangen radioaktive Stoffe infolge von Fallout und Washout von den entwässerten Flächen in den Hirschkanal. Diese radioaktiven Stoffe stammen teils von Kernwaffenversuchen, teils auch von den genehmigten radioaktiven Ableitungen des Kernforschungszentrums in die Atmosphäre. Um die mit Niederschlägen dem Hirschkanal zugeführte Aktivität abschätzen zu können, wurden die entwässerten Flächen des Kernforschungszentrums erfaßt. In Tab. 4/1 wird eine Übersicht über die entwässerten Gebäudeflächen, die entwässerten Gesamtflächen sowie über die durchschnittlichen Niederschlagsmengen, aufgeschlüsselt nach den sechs Sandfängen, gegeben. Die Bestimmung der Flächen wurde dadurch erschwert, daß die Entwässerung sowohl von Straßenflächen als auch von Dächern zum Teil nur unvollständig ist.

Durch zwei Probenahmeaktionen wurde das Aktivitätsinventar des Hirschkanals sowie die dort abgelagerte Schlammmenge abgeschätzt. Die Lage der Probenahmestellen ist aus Abb. 4/1 zu ersehen. Für jede Probenahmestelle wurde Sedimenttiefe sowie Aktivitätskonzentration im Sediment bestimmt. Für die Strecke zwischen zwei Probenahmestellen wurde mit der mittleren Aktivitätskonzentration und der mittleren Sedimenttiefe gerechnet. Die Ortsabhängigkeit der Breite der Wasseroberfläche im Hirschkanal ist in Abb. 4/2 dargestellt. In den Abbn. 4/3 bis 4/5 sind

die Meßergebnisse zusammengefaßt. Angegeben werden sowohl die Schlammengen als auch die  $^{134}\text{Cs}$ - und  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsablagerungen im Sediment entlang dem Kanal. Ferner werden integrierte Schlamm- bzw. Aktivitätsmengen ausgehend vom Sandfang I entsprechend der Fließrichtung des Hirschkanals in den Abbn. 4/6, 4/7 und 4/8 dargestellt.

Sandfang Nr.	Entwässerte Gebäudefläche in ha	Entwässerte Gesamtfläche in ha	Durchschnittliche Niederschlagsmenge in $\text{m}^3/\text{a}$
I	2,57	5,91	44 900
II	3,72	5,91	44 900
III	3,37	3,53	26 100
IV	1,12	1,42	10 800
V	4,32	4,32	32 900
VI	3,25	4,04	30 700
Summe	18,35	25,13	191 000

Tab. 4/1: Den einzelnen Sandfängen zugeordnete entwässerte Flächen sowie durchschnittliche Niederschlagsmengen

Die Ergebnisse zeigen deutlich, daß das Kernforschungszentrum - wie jede andere bebaute Fläche - infolge von Fallout und Washout Aktivität sammelt und damit zur Erhöhung der Sedimentaktivitätskonzentration im Vorfluter Hirschkanal beiträgt. Neben den beiden überall entlang dem Hirschkanal nachgewiesenen Radionukliden  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{137}\text{Cs}$  wurden in den verschiedenen Proben folgende Radionuklide identifiziert:  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{106}\text{Ru/Rh}$ ,  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{141}\text{Ce}$ ,  $^{144}\text{Ce}$  und  $^{241}\text{Am}$ . In allen Sedimentproben ist  $^{137}\text{Cs}$  das überwiegende Radionuklid. Die Anwesenheit von  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{241}\text{Am}$  zeigt den Beitrag des Kernforschungszentrums zu der nachgewiesenen Sedimentaktivität. Auch in der Aktivitätsverteilung im Hirschgraben zeigt sich der direkte Einfluß des Kernforschungszentrums. Die Proben 5 bis 13 weisen gegenüber den übrigen Proben deutlich höhere  $^{134}\text{Cs}$ - und  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentrationen auf. Ebenso wurden die neben Cäsium identifizierten Radionuklide in erster Linie in diesen Proben nachgewiesen. Die höhere Sedimentaktivität in diesem Teil des Hirschgrabens wird dadurch hervorgerufen, daß hier die Niederschlagswässer aus dem gesamten HDB-Bereich sowie aus dem Hauptbeaufschlagungsgebiet des Emittenten "Verbrennungsanlage HDB" eingeleitet werden (Sandfänge IV, V und VI).

Der Vergleich der Meßwerte für 1981 und 1982 zeigt keine Veränderung in der Schlammmenge, jedoch eine Aktivitätsabnahme im abgelagerten Schlamm. Es erscheint verfrüht, diesen Befund interpretieren zu wollen, da die Abnahme durch den Stichprobencharakter der Probenahme bestimmt sein könnte. Betrachtet man die Ergebnisse der routinemäßig durchgeführten Überwachung der Sedimentaktivität des Hirschkanals (hinter Einmündung Sandfang VI), so findet man zum Teil erhebliche Schwankungen der Schlammaktivität (bis zu Faktor 4 bei nur einwöchigem Abstand der Probenahmen), obwohl es sich exakt um die gleiche Probenahmestelle handelt und die Proben in gleicher Weise aufbereitet wurden. Es ist daher anzunehmen, daß die räumliche Aktivitätsverteilung im Hirschgraben einer ständigen Veränderung unterworfen ist und daß jede Probe-

nahmeaktion jeweils nur den momentanen Zustand wiedergegeben hat. Verfolgt man andererseits die Schwankungen der Sedimentaktivität im Hirschgraben an der regelmäßig überwachten Probenahmestelle über die letzten Jahre (s. Abb. 4/9), so ist insgesamt seit 1979 eine Abnahme der Sedimentaktivität an dieser Stelle zu beobachten. Endgültige Klarheit über die Genauigkeit der ermittelten Ergebnisse wird durch eine Wiederholung der Messung nach einem weiteren Jahr gegeben.

Unter Zugrundelegung der in Tab. 4/1 angegebenen entwässerten Flächen und der gemessenen Niederschlagsaktivität läßt sich die dem Hirschkanal zwischen den beiden Probenahmeaktionen zugeführte Aktivität abschätzen. Für dieses Zeitintervall ergibt sich eine Aktivitätszufuhr durch Niederschlag von 10 MBq  $^{137}\text{Cs}$ . Die durch Trockenablagerung zugeführte Aktivität ist demgegenüber vernachlässigbar. Im Vergleich mit dem Schätzwert des  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsinventars des Hirschkanals von der Größenordnung GBq ist dieser Beitrag unbedeutend, d. h. die Aktivitätszufuhr ist vor der ersten 1981 durchgeführten Aktivitätsbestimmung erfolgt.

Unter Berücksichtigung der wachsenden, entwässerten Gebäudefläche des KfK sowie der jährlich unterschiedlichen Aktivitätszufuhr durch Niederschläge wurde für den Zeitraum 1965 bis März 1982 (Zeitpunkt der zweiten Probenahmeaktion) die in jedem Jahr in den Hirschkanal gelangende  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität abgeschätzt. Nach dieser Abschätzung, die in Tab. 4/2 zusammengefaßt wurde, sind dem Hirschkanal in diesem Zeitraum ca. 65 MBq  $^{137}\text{Cs}$  durch Niederschlagsaktivität zugeführt worden. Die Abschätzung erfaßt jedoch nur den Aktivitätsanteil, der auf Kernwaffentests zurückzuführen ist. Eine entsprechende Abschätzung für die radioaktiven Ableitungen des Kernforschungszentrums ergibt für diesen Zeitraum eine  $^{137}\text{Cs}$ -Zufuhr von maximal 200 MBq. Bei dieser Abschätzung wurde nur der Emittent "Verbrennungsanlage HDB" berücksichtigt, da alle übrigen Emittenten auf dem Gelände des Kernforschungszentrums demgegenüber in bezug auf  $^{137}\text{Cs}$  vernachlässigbar sind.

Vorstehende Abschätzung zeigt, daß die Höhe der im Hirschkanal vorhandenen  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität nicht durch Fallout erklärt werden kann. Vielmehr muß sie auf länger zurückliegende Vorfälle, bei denen Aktivität über die Regenwasserkanalisation in den Hirschkanal gelangen konnte, zurückgeführt werden. In der Zwischenzeit durchgeführte Sanierungsmaßnahmen dürften dies für die Zukunft unterbinden.

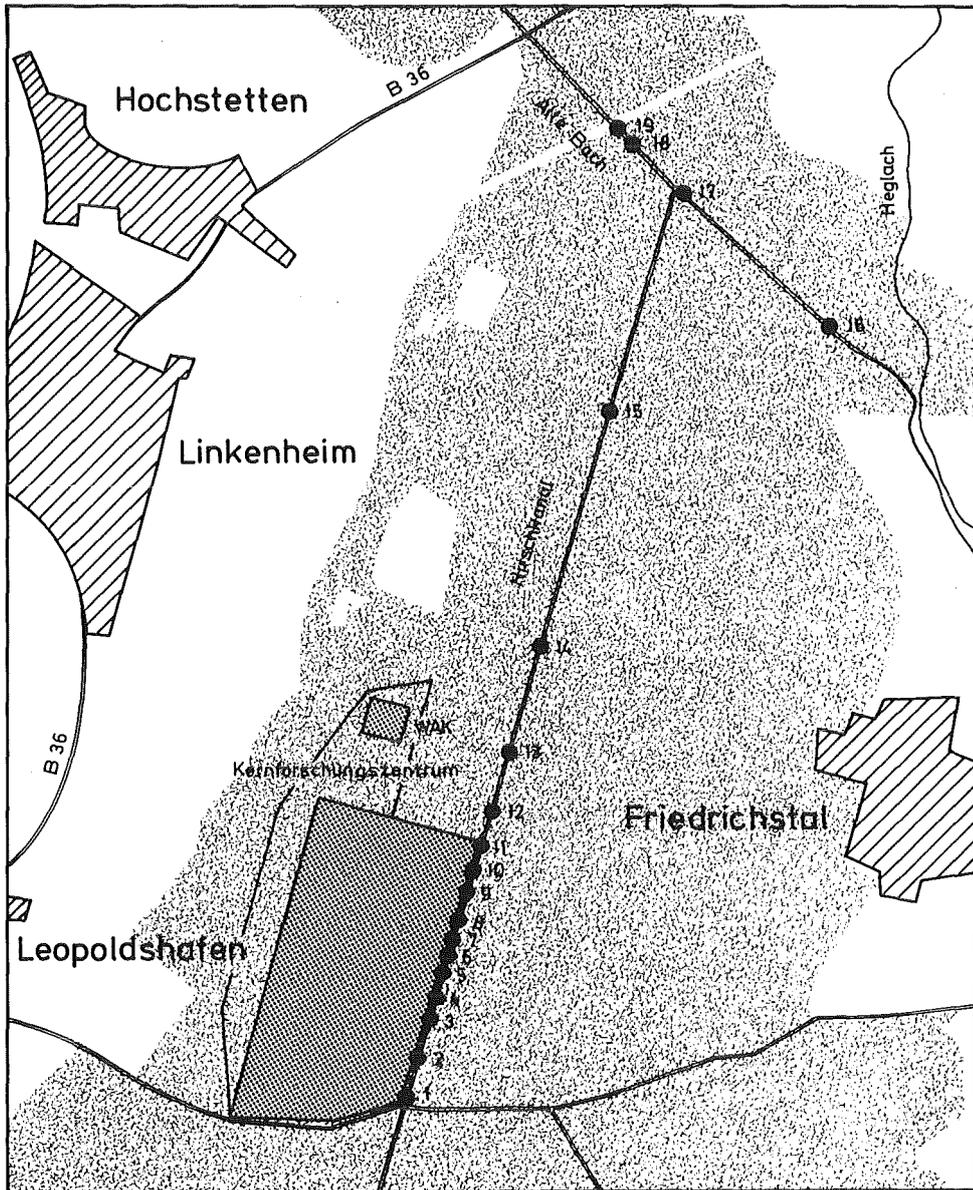


Abb. 4/1: Lageplan der Probenahmestellen im Hirschkanal

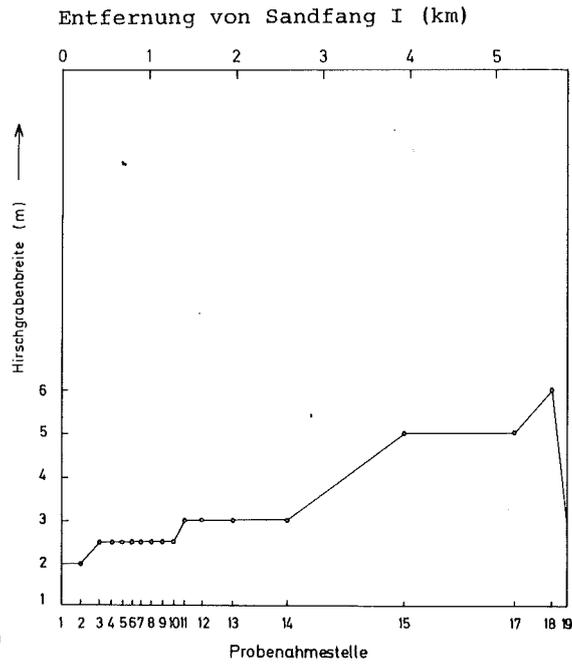


Abb. 4/2: Breite der Wasseroberfläche im Hirschkanal

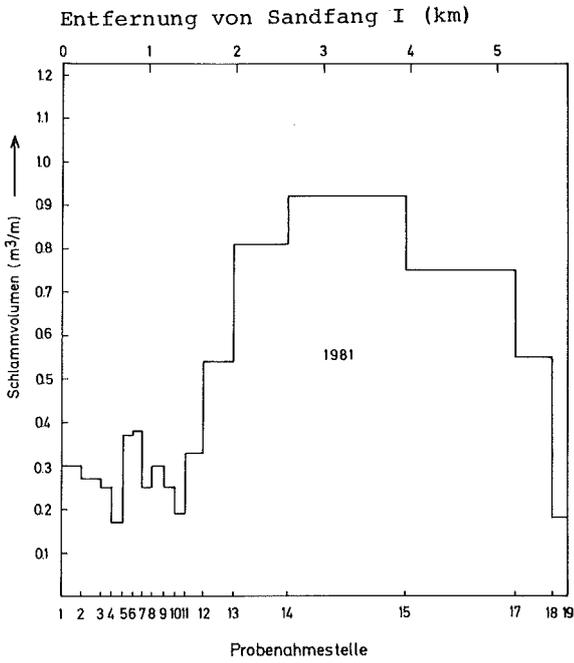


Abb. 4/3a: Schlammverteilung im Hirschkanal, März 1981

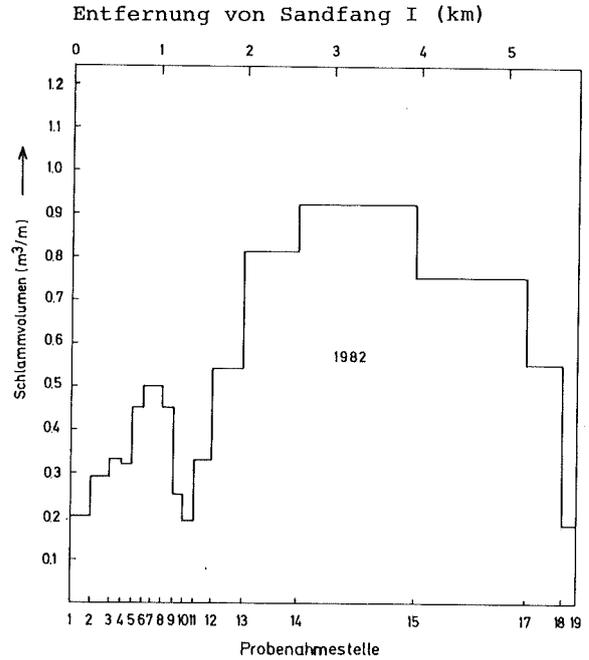


Abb. 4/3b: Schlammverteilung im Hirschkanal, April 1982

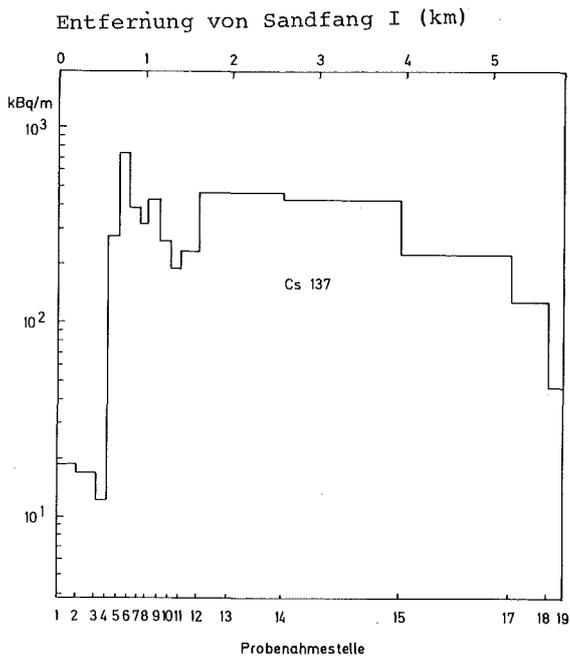


Abb. 4/4a: <sup>137</sup>Cs-Aktivität pro laufendem Meter im Schlamm im Hirschkanal in Abhängigkeit von der Entfernung vom Sandfang I in km, März 1981

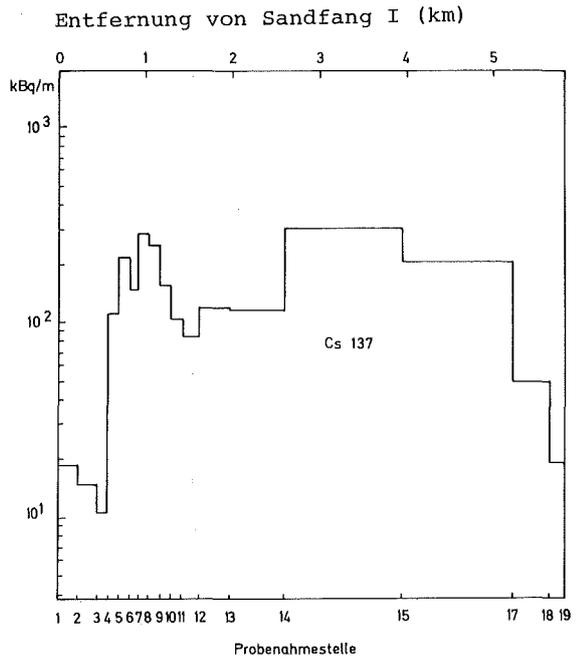


Abb. 4/4b: <sup>137</sup>Cs-Aktivität pro laufendem Meter im Schlamm im Hirschkanal in Abhängigkeit von der Entfernung vom Sandfang I in km, April 1982

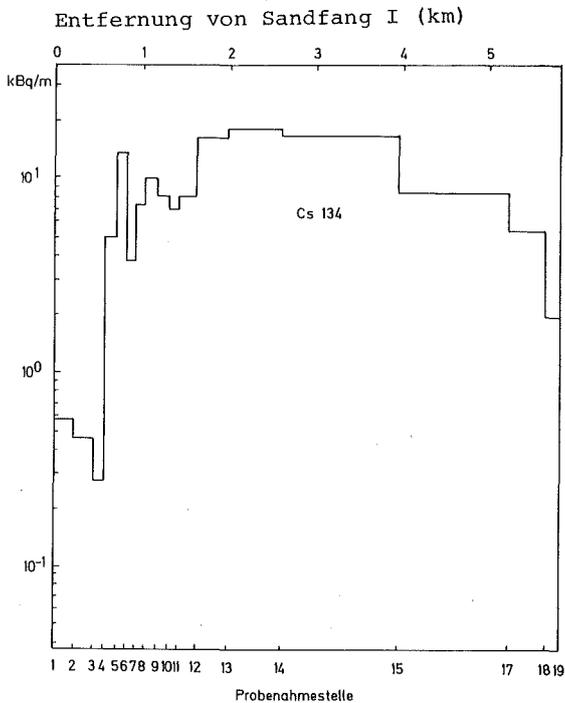


Abb. 4/5a: <sup>134</sup>Cs-Aktivität pro laufendem Meter im Schlamm im Hirschkanal in Abhängigkeit von der Entfernung vom Sandfang I in km, März 1981

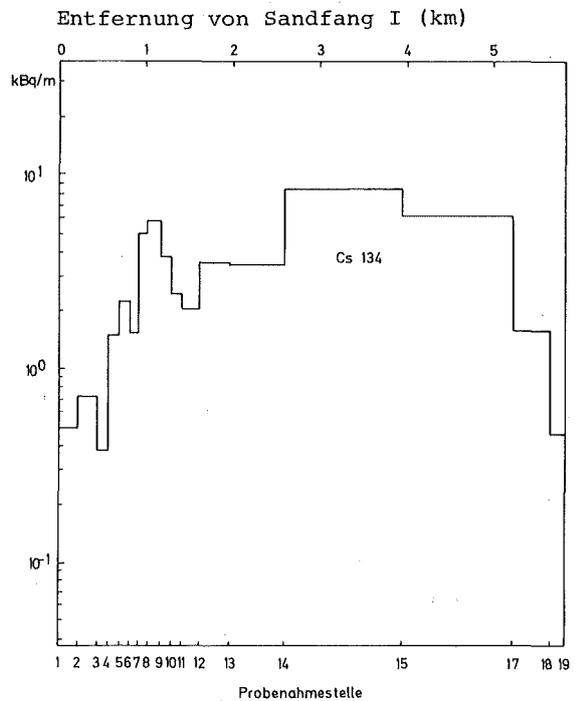


Abb. 4/5b: <sup>134</sup>Cs-Aktivität pro laufendem Meter im Schlamm im Hirschkanal in Abhängigkeit von der Entfernung vom Sandfang I in km, April 1982

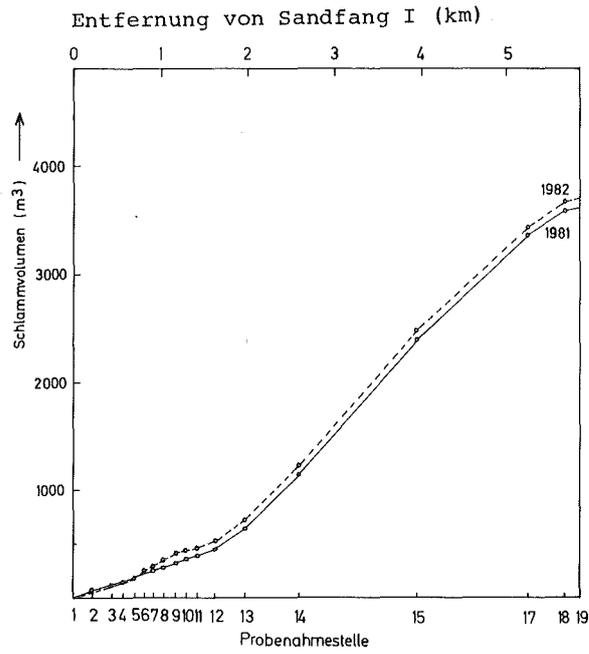


Abb. 4/6: Geschätzte, integrale Schlammmenge in m<sup>3</sup> zwischen den Probenahmestellen 1 bis 19, März 1981, April 1982

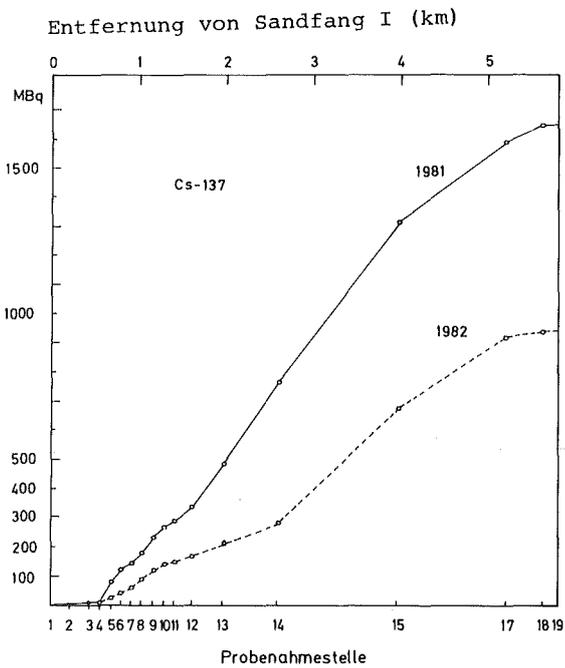


Abb. 4/7: Integrale <sup>137</sup>Cs-Aktivität im Schlamm in MBq zwischen den Probenahmestellen 1 bis 19, März 1981, April 1982

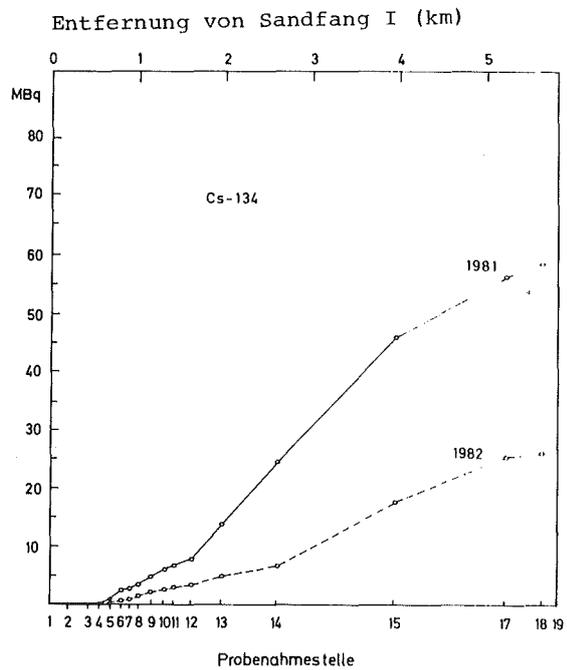


Abb. 4/8: Integrale <sup>134</sup>Cs-Aktivität im Schlamm in MBq zwischen den Probenahmestellen 1 bis 19, März 1981, April 1982

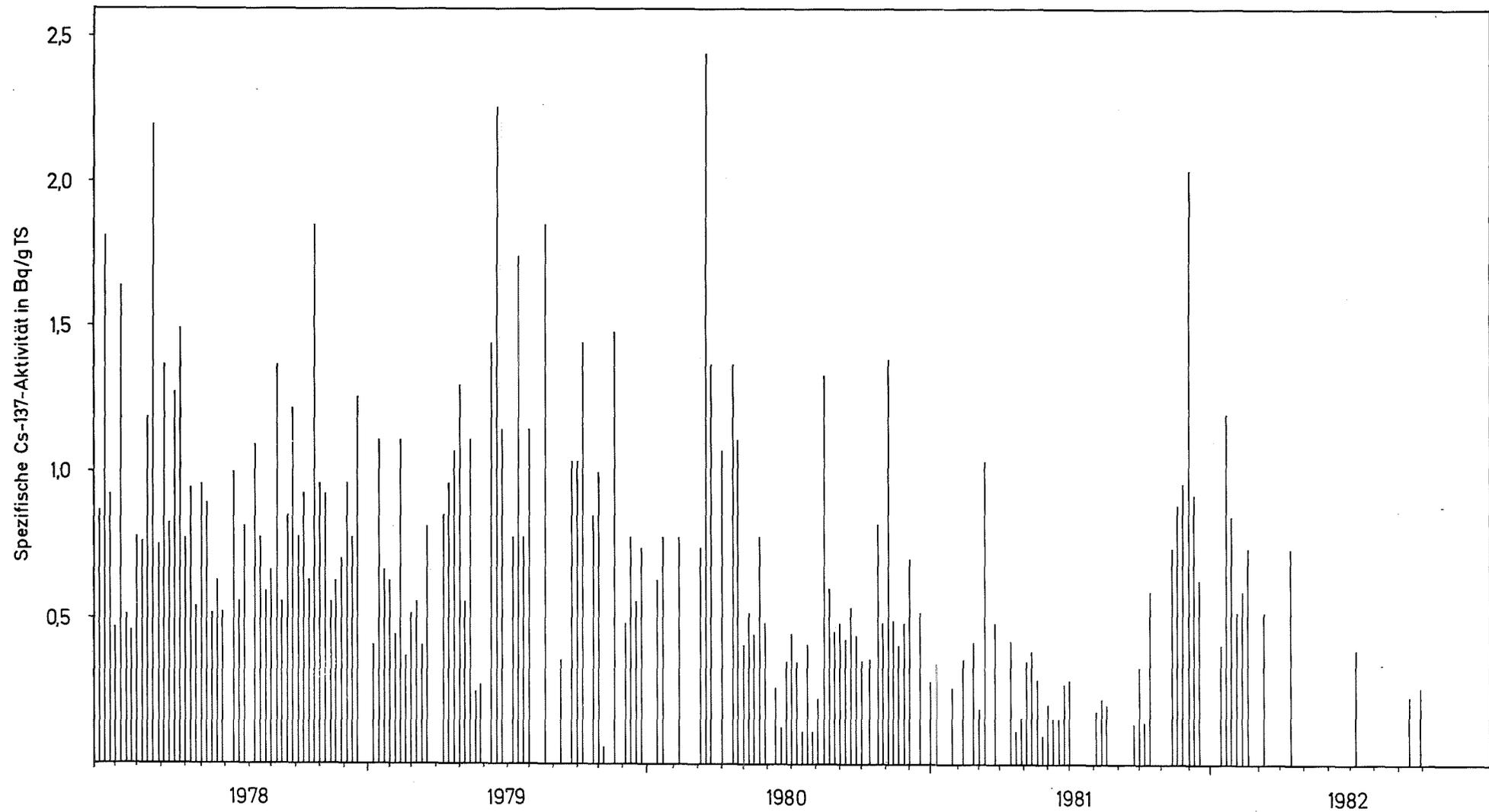


Abb. 4/9: Spezifische  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität in Sedimentproben aus dem Hirschkanal (routinemäßige, wöchentliche Probenahme im Hirschgraben in der Nordostecke des KfK, hinter der Einmündung des Sandfang VI)

Jahr	entwässerte Gesamtfläche in km <sup>2</sup> *	Cs-137-Flächenbelastung in MBq/km <sup>2</sup>	dem Hirschgraben zugeführte Cs-137-Aktivität in MBq
1965	0	327,38**	0,00
1966	0,0148	143,86**	2,15
1967	0,0296	97,09**	2,89
1968	0,0443	97,68**	4,33
1969	0,0591	105,82**	6,25
1970	0,0739	69,93***	5,18
1971	0,0887	50,39***	4,48
1972	0,1035	22,46***	2,33
1973	0,1183	5,40***	0,63
1974	0,1330	33,60***	4,48
1975	0,1478	20,17***	3,00
1976	0,1626	8,51***	1,37
1977	0,1774	37,52***	6,66
1978	0,1922	30,82***	5,92
1979	0,2070	11,58***	2,41
1980	0,2217	10,36**	2,29
1981	0,2365	35,74****	8,47
bis März 1982	0,2513	8,21****	2,07
Summe			64,91

\*Unter der Annahme eines linearen Anstiegs seit 1965 und eines vernachlässigbar kleinen Anteils der Gesamtfläche vor 1965

\*\*Meßdaten aus [9] für New York; berechnet aus <sup>90</sup>Sr-Konzentration im Niederschlag und dem Verhältnis <sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr in der Luft

\*\*\*Meßdaten aus [10]; gemessen in Offenbach a. M.

\*\*\*\*Messungen auf dem Gelände des KfK

Tab. 4/2: Mit dem Niederschlag über die entwässerten Flächen des KfK jährlich in den Hirschkanal gelangende <sup>137</sup>Cs-Aktivität

##### 5. Tritium im Niederschlag infolge von Tritiumfreisetzungen in die Atmosphäre

In der Zeit von 1971 bis 1980 wurden aus dem Kernforschungszentrum 562 TBq Tritium freigesetzt [11]. Die Ableitungen, aufgeschlüsselt für die einzelnen Anlagen des Kernforschungszentrums, sind in Tab. 5/1 zusammengestellt. Es lag nahe, im Rahmen des Forschungsvorhabens berechnete mit gemessenen Tritiumkonzentrationen im Niederschlagwasser zu vergleichen, um Erfahrungen über die Genauigkeit des Rechenmodells und der darin benutzten Parameter zu gewinnen.

Wegen seines hohen Anteils an den Tritiumemissionen wurde der MZFR als Emittent für das Programm ausgewählt. Das ISOLA-III-Computerprogramm [12] und die aus langjährigen Messungen erstellte vierparametrische meteorologische Statistik für das Kernforschungszentrum Karlsruhe [13] wurde benutzt, um ISO-Linien gleicher Tritiumkonzentration im Regenwasser aus den Ableitungen des MZFR zu bestimmen (s. Abb. 5/1). Die Ergebnisse zeigen, daß meßbare Tritiumkonzentrationen im Regenwasser innerhalb eines Kreises mit einem Radius von ca. 500 m um den MZFR-Kamin zu erwarten sind und daß die Emittenten FR2, Verbrennungsanlage der HDB und WAK nur geringe Beiträge zu diesen Konzentrationen erbringen. Deshalb wurden die Regenwassersammelstellen 1 bis 12 auf der Peripherie dieses Kreises aufgebaut (s. Abb. 5/2). Die Hauptausbreitungsrichtung mit der größten Beaufschlagung wurde auf der Grundlage der Abb. 5/1 festgestellt. In dieser Richtung wurde ein zusätzlicher Beaufschlagungspunkt A für die arbeitstäglige Regenwasserprobenahme im Abstand von 250 m vom MZFR-Kamin ausgewählt (s. Abb. 5/2).

Emittenten	Emissionshöhe in m	1971	1972	1973	1974	1975	1976	1977	1978	1979	1980	Summe
WAK/LAVA	60	-	-	-	-	-	-	7,0	4,7	6,2	3,0	20,9
KTB/FR2	99	23,5	22,3	17,9	11,8	10,6	6,3	7,1	5,3	5,8	6,3	116,9
KBG/MZFR	99,5	41,8	20,1	40,4	40,7	28,3	26,0	37,7	38,4	36,7	43,6	353,7
HDB-Verbrennungsanlage	70	-	-	-	-	-	7,9	12,2	32,7	6,2	7,1	66,1
HDB, Bau 545	19	-	-	-	-	-	2,7	1,3	0,8	-	-	4,8
HDB, Bau 548	15	-	-	-	-	-	0,5	-	-	-	-	0,5
Summe		65,3	42,4	58,5	52,5	38,9	43,4	65,3	81,9	54,9	60,0	562,9

"-": Vernachlässigbar kleine Emissionen

Tab. 5/1: Tritiumemissionen mit der Abluft des Kernforschungszentrums Karlsruhe in den Jahren 1971 bis 1980 in TBq

In einem ersten Meßprogramm wurde Regenwasser an den zwölf Sammelstellen (Nrn. 1 bis 12 in Abb. 5/2) zwischen dem 16. Juni 1981 und 6. Juli 1981 gesammelt. Die <sup>3</sup>H-Emission aus dem MZFR-Kamin für diesen Zeitraum gibt Tab. 5/2 wieder. An der Sammelstelle A wurde Regenwasser nach jedem Regenfall arbeitstäglich während des Jahres 1981 entnommen. Zur Auswertung der Meßergebnisse lagen die Werte der täglichen Emissionen des MZFR und die Daten der während der Laufzeit des Meßprogramms herrschenden meteorologischen Bedingungen vor. Die meteorologischen Daten wurden an dem 200 m hohen Mast der Hauptabteilung Sicherheit/Umweltmeteorologie gemessen und in das ISOLA-III-Computerprogramm eingesetzt.

Probenahmedatum	<sup>3</sup> H-Emission in GBq/d	Probenahmedatum	<sup>3</sup> H-Emission in GBq/d	Probenahmedatum	<sup>3</sup> H-Emission in GBq/d
01.06.1981	101	16.06.1981	101	01.07.1981	400
02.06.1981	83	17.06.1981	124	02.07.1981	133
03.06.1981	119	18.06.1981	131	03.07.1981	114
04.06.1981	91	19.06.1981	93	04.07.1981	103
05.06.1981	79	20.06.1981	91	05.07.1981	88
06.06.1981	60	21.06.1981	122	06.07.1981	109
07.06.1981	65	22.06.1981	150	07.07.1981	187
08.06.1981	52	23.06.1981	110	08.07.1981	160
09.06.1981	106	24.06.1981	142	09.07.1981	144
10.06.1981	198	25.06.1981	186	10.07.1981	129
11.06.1981	74	26.06.1981	140	11.07.1981	116
12.06.1981	106	27.06.1981	115	12.07.1981	101
13.06.1981	85	28.06.1981	111	13.07.1981	147
14.06.1981	71	29.06.1981	119	14.07.1981	147
15.06.1981	151	30.06.1981	124	15.07.1981	116

Tab. 5/2: Tritiumabgabe mit der Kaminabluft des MZFR vom 1. Juni 1981 bis 15. Juli 1981 (Reaktor in Betrieb)

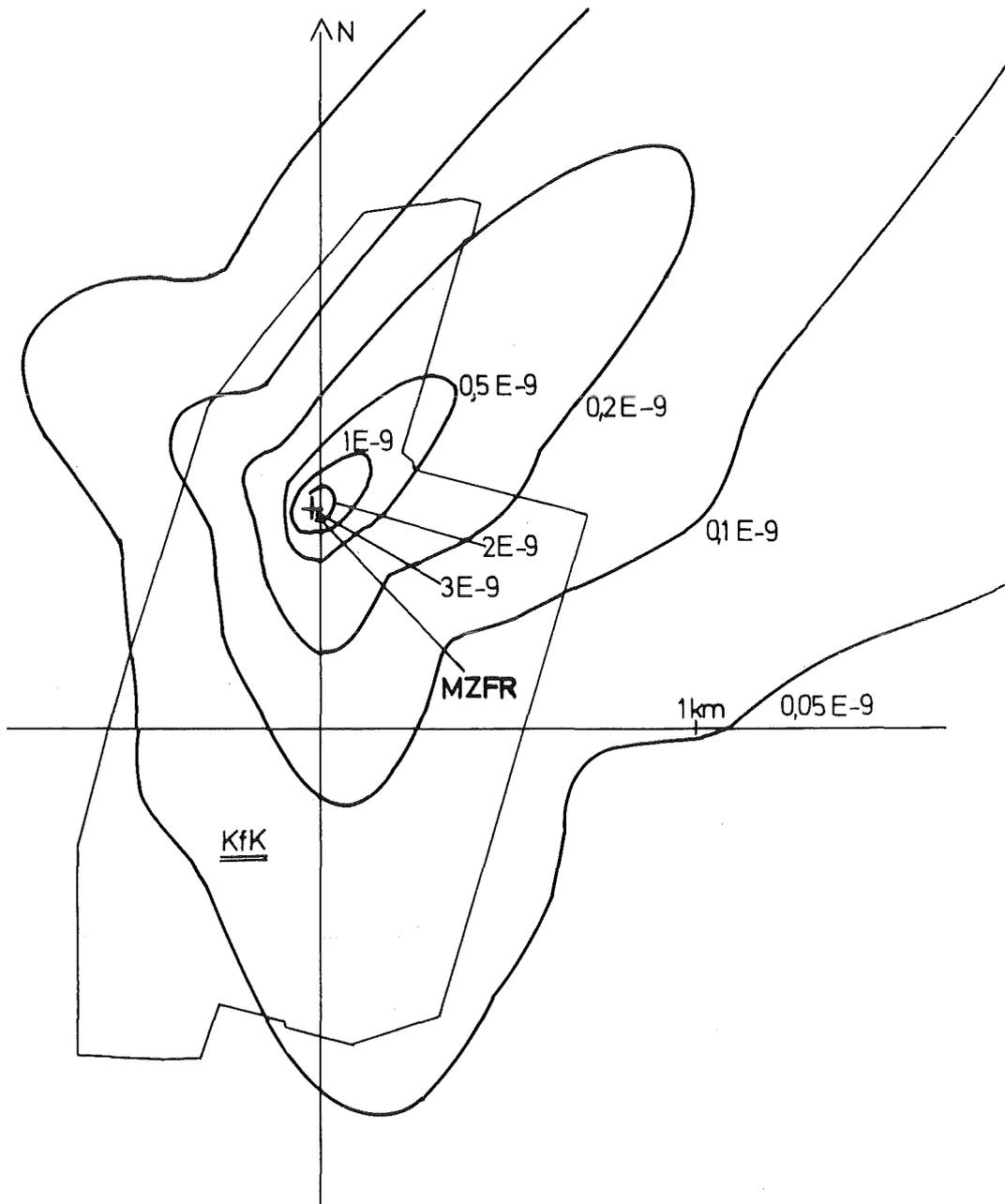


Abb. 5/1: Linien gleichen Washouts in  $m^{-2}$   
ISOLA-III-Ausgabe für Emissionshöhe 100 m  
und Washoutproportionalitätskonstante  
 $s = 3 \cdot 10^{-9} \text{ a}/(\text{mm} \cdot \text{s})$

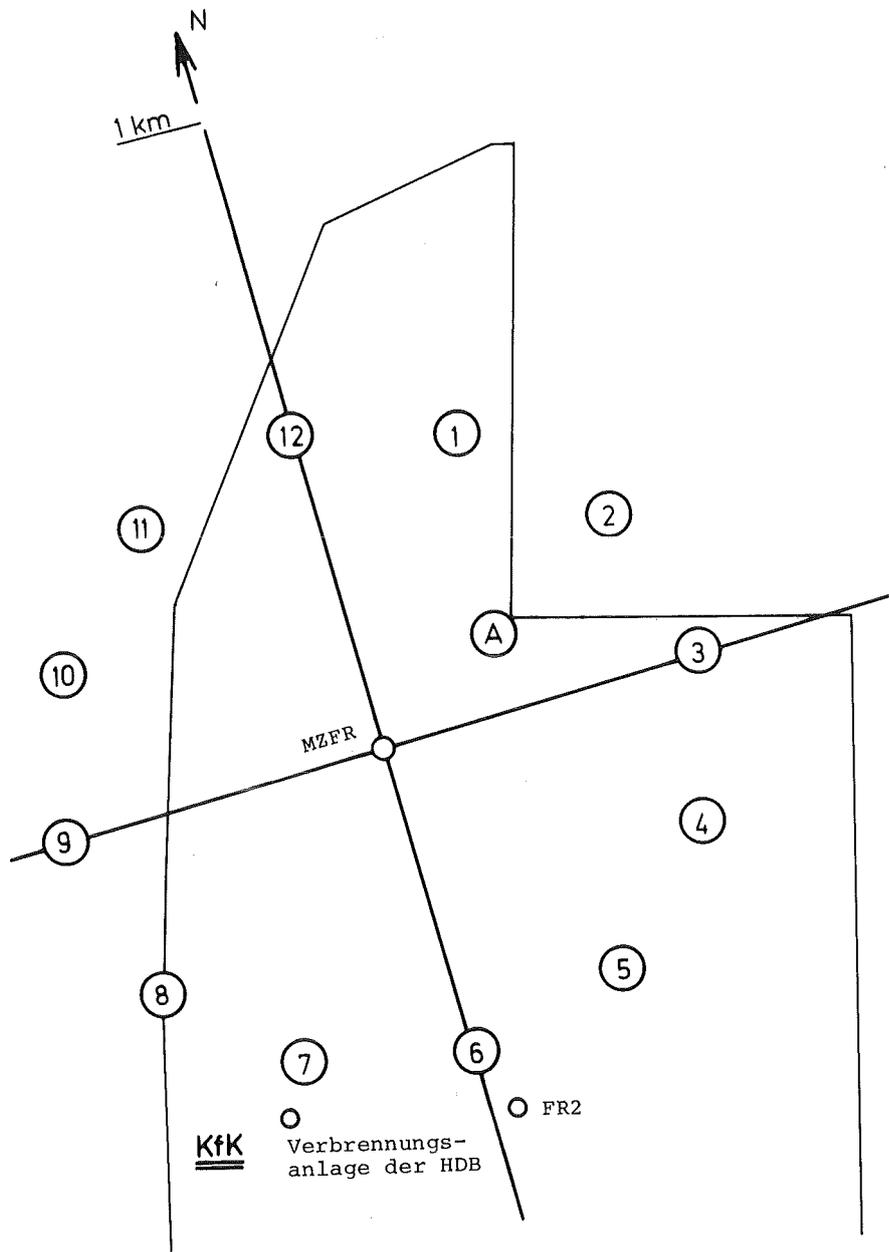


Abb. 5/2: Probenahmestellen für Regenwasser

Die Niederschlagsproben an den Probenahmestellen 1 bis 12 wurden in Plastikflaschen unter Verwendung eines Trichters von 15,7 cm Durchmesser an der Oberkante genommen. Die Probenahme an der Stelle A erfolgte mit Hilfe eines Hellmann-Sammlers von 16,0 cm Durchmesser.

Um die Verfälschung der Tritiummessung durch andere Radionuklide zu vermeiden, und um für eine möglichst einheitliche Probenqualität zu sorgen, wurden alle Regenwasserproben destilliert. Dadurch wurden die Schwankungen des Quenches so gering gehalten, daß die Quenchkorrekturkurve in diesem Bereich durch eine Gerade angenähert werden konnte. Um Memoryeffekte in der Destillationsanlage zu vermeiden, wurde dieses System vor jeder neuen Füllung vakuumgetrocknet.

Zur Probenvorbereitung wurden 10 ml Meßgut mit 12 ml Szintillatorcocktail in einem Polyäthylensfläschchen vermischt. Um unerwünschte Lumineszenzerscheinungen (z. B. Chemolumineszenz oder Photolumineszenz) zu vermeiden, wurden die Proben unter Grünlicht in einer Dunkelkammer vorbereitet und dann bei 70 °C zwei Stunden getempert. Um Thermolumineszenzeffekte zu vermeiden, und die Temperatur von 10 °C im Flüssigszintillationsspektrometer nicht zu stören, wurden die Proben in einem Kühlschrank vorgekühlt, bevor sie in das Spektrometer eingesetzt wurden [14].

Für die Messung wurde der kommerzielle Dreikomponentenszintillatorcocktail "Insta-Gel" benutzt. Alle Proben wurden 100 min gemessen.

Die Resultate der Regenwassersammlung an den Sammelstellen 1 bis 12 in der Zeit vom 16. Juni 1981 bis 6. Juli 1981 sind in Tab. 5/3 zusammengestellt. An der Probenahmestelle A wurde das Regenwasser nach jedem Regen arbeitstäglich durch das ganze Jahr 1981 hindurch genommen und auf Tritium ausgemessen. Die hierbei gefundenen Meßwerte sind in Tab. 5/4 zusammengefaßt.

Sammelperiode			16.06. - 22.06.1981			22.06. - 01.07.1981			01.07. - 06.07.1981		
Sammelstelle			V ml	C <sub>w</sub> mBq/ml	B <sub>F</sub> <sup>M</sup> Bq/m <sup>2</sup>	V ml	C <sub>w</sub> mBq/ml	B <sub>F</sub> <sup>M</sup> Bq/m <sup>2</sup>	V ml	C <sub>w</sub> mBq/ml	B <sub>F</sub> <sup>M</sup> Bq/m <sup>2</sup>
Nr.	R m	φ Grad									
1	515	30	-	-	-	256	21±7	280±90	265	23±7	310±90
2	500	60	77	19±6	75±25	255	24±7	310±100	266	42±7	580±100
3	500	90	82	23±7	97±28	250	14±7	180±90	244	21±7	260±80
4	505	120	64	21±7	70±22	240	13±6	170±80	241	13±7	170±80
5	480	150	65	40±7	133±24	251	13±6	170±80	242	22±7	270±80
6	560	180	-	20±6	-	249	13±6	170±80	256	8±6	110±90
7	500	210	65	24±7	81±22	254	13±6	180±80	221	10±6	120±70
8	495	240	59	10±6	30±18	252	13±6	160±80	226	9±6	100±70
9	485	270	-	-	-	266	12±6	170±90	263	7±6	90±90
10	500	300	-	-	-	266	12±6	170±80	261	8±6	100±90
11	450	330	-	-	-	257	9±6	120±80	253	6±6	80±80
12	540	360	77	6±6	22±22	257	10±6	130±80	-	8±6	-

Tab. 5/3: Tritiumkonzentration im Regenwasser an den Meßstellen 1 bis 12  
 (R, φ) - Polarkoordinaten der Meßstellen (Koordinaten-Ursprung MZFR-Kamin)  
 V - Volumen des gesammelten Regenwassers  
 C<sub>w</sub> - gemessene Tritiumkonzentration im Regenwasser  
 B<sub>F</sub><sup>M</sup> - Tritiumbelastung des Bodens durch Regenwasser

Probenahmedatum	Tritiumaktivitätskonzentration in Bq/l an der Sammelstelle A		Niederschlagsmenge in mm	
	Meßwert	Rechenwert	an der Sammel- stelle	an der meteorolo- gischen Wiese
05.01.1981	13,0	8,1	19,00	22,34
13.01.1981	22,2	19,6	2,20	2,96
15.01.1981	28,5	13,3	10,00	12,14
04.02.1981	23,7	11,1	20,90	24,39
23.02.1981	21,1	0,7	1,00	1,17
13.03.1981	61,8	103,2	9,40	12,00
16.03.1981	18,5	24,4	4,60	4,89
17.03.1981	107,3	98,1	2,30	2,58
23.03.1981	31,5	48,8	5,70	5,20
24.03.1981	10,4	29,6	4,20	4,40
25.03.1981	32,9	122,8	2,30	2,87
26.03.1981	24,1	25,2	3,60	4,12
27.03.1981	31,8	20,4	0,70	0,74
13.04.1981	14,1	1,9	0,70	0,74
28.04.1981	237,9	253,5	21,80	20,51
29.04.1981	76,6	51,8	3,00	3,39
04.05.1981	158,7	280,1	13,00	14,35
13.05.1981	26,3	207,2	1,30	1,46
14.05.1981	14,8	86,6	8,40	7,58
26.05.1981	44,4	89,2	8,20	8,87
27.05.1981	115,8	229,4	12,30	13,21
03.06.1981	25,2	5,6	2,30	2,63
04.06.1981	8,9	0,4	29,50	33,37
05.06.1981	70,3	65,1	6,00	5,68
09.06.1981	38,1	29,2	6,10	7,42
10.06.1981	22,9	45,9	2,20	2,03
16.06.1981	10,7	8,5	7,80	6,90
19.06.1981	39,6	121,7	1,70	2,02
23.06.1981	12,2	0,0	4,90	4,58
03.07.1981	15,9	22,9	3,40	4,36
06.07.1981	84,7	126,5	8,50	8,94
13.07.1981	21,5	787,7	0,90	1,01
14.07.1981	23,3	22,6	1,50	1,47
21.07.1981	11,1	8,1	2,50	2,77
23.07.1981	22,9	77,7	16,00	14,98
27.07.1981	13,7	43,7	5,40	5,90
03.08.1981	17,0	59,6	2,10	2,23
11.08.1981	21,8	74,0	5,60	5,76
12.08.1981	25,2	68,5	0,60	0,55
21.08.1981	115,1	153,2	2,40	2,88
24.08.1981	43,3	58,8	11,00	9,45
01.09.1981	8,9	0,0	6,40	7,83
14.09.1981	18,5	4,1	0,50	0,42
29.09.1981	6,3	29,6	9,70	8,43
06.10.1981	15,2	13,0	5,40	4,95
07.10.1981	13,0	63,6	2,80	2,50
16.10.1981	85,1	140,2	45,00	49,31
19.10.1981	108,0	243,1	9,10	8,61
22.10.1981	161,0	478,8	2,00	1,84
26.10.1981	21,1	24,8	4,00	4,95
28.10.1981	67,3	31,1	1,30	1,54
29.10.1981	286,8	450,3	1,50	1,29
30.10.1981	293,4	509,9	4,80	5,72
30.11.1981	112,5	128,0	13,40	13,17

Tab. 5/4: Gemessene und berechnete Tritiumaktivitätskonzentration im Regenwasser an der Sammelstelle A und Niederschlagsmenge an der Sammelstelle A und an der meteorologischen Wiese, (Rechnung mit  $s = 3 \cdot 10^{-9}$  a/(mm·s))

Auswertung der Regenwassermengen von den Sammelstellen 1 bis 12

Die Tritiumflächenbelastung, die aus der gemessenen Tritiumkonzentration und der Niederschlagsmenge berechnet werden kann, ist ebenfalls in Tab. 5/3 angegeben. Für die Referenzstelle Turmberg/Augustenberg (etwa 10 km südöstlich des MZFR) wurden folgende Tritiumkonzentrationen im Niederschlag bestimmt.

Zwischen dem 15.06.1981 und 30.07.1981  $9 \pm 6$  Bq/l  
Zwischen dem 30.06.1981 und 15.07.1981  $\leq 6,3$  Bq/l (Nachweisgrenze)

Diese Tritiumkonzentration ist nicht beeinflusst durch Tritiumemissionen aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe, sondern ist vielmehr durch den Kernwaffentestfallout verursacht, und muß aus diesem Grund von den im Kernforschungszentrum gefundenen Werten abgezogen werden. Dementsprechend wurden folgende Untergrundpegel abgezogen:

33,3 Bq/m<sup>2</sup> für die Sammelperiode vom 16.06.1981 bis 22.06.1981  
121,4 Bq/m<sup>2</sup> für die Sammelperiode vom 22.06.1981 bis 01.07.1981 und  
81,0 Bq/m<sup>2</sup> für die Sammelperiode vom 01.07.1981 bis 06.07.1981

Die so erhaltenen Werte sind in Tab. 5/5 zusammengestellt und mit den Werten verglichen, die sich nach der Richtlinie "Allgemeine Berechnungsgrundlage für die Strahlenexposition bei radioaktiven Ableitungen mit der Abluft oder in Oberflächengewässer" [15] ergeben. Diese Berechnung wurde gemäß der Gleichung (1)

$$B_{F,i}^{th} = A \frac{N}{2\pi x} \sum_{jmt} q_{ijmt} \frac{\Lambda_t}{u_{jm}} \quad (1)$$

durchgeführt (s. Gl. (4.12) der Berechnungsgrundlage [10]). In Gl. (1) haben die benutzten Symbole folgende Bedeutung:

$B_{F,i}^{th}$  = Flächenbelastung in Bq/m<sup>2</sup> (i: Windrichtungssektor)  
A = Emittierte Aktivität in Bq  
N = Nummer der Windrichtungssektoren  
x = Abstand vom Emittenten in m  
 $q_{ijmt}$  = Häufigkeit der Niederschläge (i: Windrichtungssektor, j = Diffusionskategorie, m: Windgeschwindigkeitsstufe, t: Niederschlagsintensitätsbereich)  
 $u_{jm}$  = Mittlere Windgeschwindigkeit in m/s  
 $\Lambda_t$  = Washoutkonstante in 1/s (t: Niederschlagsintensitätsbereich)

Im folgenden wird die Zeitabhängigkeit der Niederschlagsintensität vernachlässigt, d. h. es wird nur die in einer bestimmten Zeit angefallene Niederschlagsmenge berücksichtigt. Unter

der Annahme, daß die Washoutkonstante  $\Lambda$  direkt proportional der Niederschlagsmenge  $\Theta$  ist, gilt die Beziehung

$$\Lambda = S \cdot \Theta \quad (2)$$

mit

$s$  = Proportionalitätskonstante (a/(mm·s))

$\Theta$  = Niederschlagsmenge (mm/a)

Mit Ausnahme von  $s$  sind alle Größen, die zur Berechnung von  $B_{F,i}^{th}$  benötigt werden, durch Messungen bekannt. Um die Bodenkontamination infolge von Washout mit dem ISOLA-III-Programm zu berechnen, wurde versuchsweise  $s = 3 \cdot 10^{-9}$  a/(mm·s) eingesetzt. Dieser Wert ist in den Berechnungsgrundlagen [15] für Aerosole empfohlen. In [16] wurde  $s = 3,4 \cdot 10^{-8}$  a/(mm·s) für HTO angegeben. Der Vergleich von Meß- und Rechenergebnissen für die Sammelstellen 1 bis 4 sowie 11 und 12 nahe den Hauptausbreitungsrichtungen zeigt, daß die Rechenergebnisse meistens höher sind als die Meßergebnisse. Durch eine Ausgleichsrechnung mit Hilfe der Methode der kleinsten Quadrate kann ein korrigierter Wert  $s$  bestimmt werden, um eine bessere Übereinstimmung der gemessenen mit den berechneten Werten zu erreichen. Die nicht zu dieser Auswertung herangezogenen Ergebnisse aus den übrigen Sektoren (Meßstellen 5 bis 10) sind entweder durch Ableitungen aus der Verbrennungsanlage der HDB stärker beeinflusst (Meßstellen 5 bis 7) oder aber die gemessenen und die berechneten Werte sind dem Betrage nach klein, so daß die Meßwerte wegen des damit verbundenen großen Meßfehlers nur geringe Aussagekraft besitzen. Die Korrekturrechnung zeigt, daß der Wert von  $s = 1 \cdot 10^{-9}$  a/(mm·s) zur Beschreibung besser geeignet ist als der ursprünglich in der Rechnung eingesetzte Wert von  $s = 3 \cdot 10^{-9}$  a/(mm·s).

Sammel- periode	16.06.1981-22.06.1981			22.06.1981-01.07.1981			01.07.1981-06.07.1981		
	$B_F^M$	$B_F^{th}$		$B_F^M$	$B_F^{th}$		$B_F^M$	$B_F^{th}$	
Sammel- stelle		(1)	(2)		(1)	(2)		(1)	(2)
1	-	85,5	28,9	157,6	1472,6	491,0	233,1	815,1	271,6
2	41,8	134,7	44,8	186,1	435,1	144,7	494,0	1318,3	439,6
3	64,0	276,4	92,1	55,5	620,5	207,2	180,2	130,6	43,7
4	36,6	120,3	40,0	44,0	48,1	15,9	85,1	2,2	0,4
5	99,9	273,1	91,0	51,4	44,4	14,8	187,6	7,8	2,6
6	-	41,4	13,7	50,0	361,9	121,0	26,6	100,3	33,7
7	47,4	3,0	1,1	53,7	469,5	156,5	37,4	7,8	2,6
8	0	0	0	35,2	42,6	14,4	22,6	0	0
9	--	0	0	46,6	67,0	22,2	9,6	4,1	1,5
10	-	0	0	46,6	8,9	3,3	23,7	48,1	15,9
11	-	0	0	1,5	35,9	11,8	0	5,2	1,5
12	0	6,3	2,2	10,0	333,7	111,4	-	75,9	25,2

"-": keine Probenahme

Tab. 5/5: Vergleich der Meßwerte ( $B_F^M$ ) mit den Rechenwerten ( $B_F^{th}$ ) der Bodenbelastung in Bq/m<sup>2</sup>  
 (1) gerechnet mit  $s = 3 \cdot 10^{-9}$  a/(mm·s), (2) gerechnet mit  $s = 1 \cdot 10^{-9}$  a/(mm·s)

### Auswertung der Proben von Sammelstelle A

Arbeitstaglich gegen 10.00 Uhr wurden nach Regenfall die Niederschlagsproben eingeholt und die Tritiumkonzentration, wie oben beschrieben, bestimmt. Fur den Vergleich zwischen den Mewerten und den berechneten Werten sind folgende Daten verfugbar:

- die tagliche Tritiumemission des MZFR
- die tagliche meteorologische Statistik aus den Messungen am 200 m hohen meteorologischen Mast mit den Niederschlagsintensitaten, die an der meteorologischen Wiese gemessen wurden.

1981 wurden fur 105 Regenperioden Proben genommen. Den gemessenen Werten fur die Flachenbelastung wurden die mit dem ISOLA-III-Programm mit  $s = 3 \cdot 10^{-9}$  a/(mm·s) berechneten Werte gegenubergestellt. Von den 105 auf diese Weise erhaltenen Wertepaaren muten einige verworfen werden:

- 6 Wertepaare wegen Computerausfall an der meteorologischen Station
- 8 Wertepaare, da die Werte nur knapp uber der Nachweisgrenze lagen
- 21 Wertepaare wegen erheblicher Unterschiede in der Niederschlagsmenge zwischen der meteorologischen Niederschlagsmessung auf der meteorologischen Wiese und der Sammelstelle A
- 16 Wertepaare wegen rascher anderungen der Tritiumemission des MZFR

Nach dieser Auswahl verblieben 54 Wertepaare, die in Tab. 5/4 eingetragen sind. Auch hier sind die meisten Rechenwerte hoher als die Mewerte. Eine Korrekturrechnung, wie oben beschrieben, ergab einen Wert von  $s \sim 2 \cdot 10^{-9}$  a/(mm·s). Dieser Wert beschreibt die Bodenkontamination durch HTO besser als der ursprunglich in der Rechnung eingesetzte Wert.

### 6. Schlufolgerungen und Schlubemerkungen

Aus den vorliegenden Meergebnissen lassen sich folgende Schlufolgerungen ableiten:

- Die im Bereich des Kernforschungszentrums Karlsruhe nachgewiesenen Kontaminationen von Boden und Bewuchs sind in erster Linie auf den Kernwaffenfallout zuruckzufuhren. Eine Mitverursachung der Kontaminationen durch Emittenten des Kernforschungszentrums Karlsruhe zeigte sich im Bereich der Hauptabteilung Dekontaminationsbetriebe (HDB), insbesondere in unmittelbarer Nahe der Verbrennungsanlage der HDB.
- Die Tritiumkontamination des Bodens als Folge des Tritiumgehalts der Niederschlage ist bis in das Grundwasser hinein nachweisbar. Insofern mussen bei der Planung von Tritiumableitungen in Form von HTO uber den Luftpfad mogliche Auswirkungen auf das Grundwasser berucksichtigt werden.
- Nach den vorliegenden Meergebnissen fur die Tiefenverteilung der Tritiumkonzentration der Bodenfeuchte erhalt man durch Extrapolation Schatzwerte fur die vertikale Migrationsgeschwindigkeit tritiierten Wassers im Boden zwischen 2 m/a und 4 m/a. Die vertikale Migrationsgeschwindigkeit von  $^{137}\text{Cs}$  liegt zwischen 0,4 cm/a und 1,6 cm/a.
- Die im Hirschkanal gefundene Radioaktivitat lat sich nicht ausschlielich als Folge des Fallout aus den Kernwaffenversuchen und aus den Ableitungen des Kernforschungszentrums Karlsruhe in die Atmosphare erklaren. Sie durfte zum groeren Teil auf Auswirkungen mehrerer Jahre zuruckliegender Zwischenfalle, bei denen kontaminiertes Wasser in die Regenwasserkanalisation gelangt war, zuruckzufuhren sein. Durch Wiederholung der Messungen mu nachgepruft werden, inwieweit die im Hirschkanal nachweisbare Aktivitat weiter abnimmt.

- Aus den Tritiummessungen des Niederschlagwassers folgt für die Proportionalitätskonstante  $s = \Lambda/\theta$  ein Wert zwischen  $1 \cdot 10^{-9}$  a/(mm·s) und  $2 \cdot 10^{-9}$  a/(mm·s).

Die Autoren danken allen, die bei der Durchführung des Meßprogramms mitgearbeitet haben, insbesondere Frau F. Milbich-Münzer.

7. Literatur

- [1] A. Radziwill,  
Beitrag zu HS-Jahresbericht 1981, S. 175 [11]
- [2] H. Schüttelkopf,  
Environmental Surveillance for Plutonium at the Karlsruhe Nuclear Research Centre from 1969 until 1973, Int. Symp. on Environmental Surveillance around Nuclear Installations, Warsaw, Nov. 5-9, 1973, IAEA-SM-180/31
- [3] H. Schüttelkopf,  
Beiträge zum HS-Jahresbericht 1977, S. 152 und 156, [11]
- [4] H. Schüttelkopf, M. Pimpl,  
Radioecological studies on plutonium and iodine-129 in the surroundings of the Karlsruhe reprocessing plant, Intern. Symp. on Migration in the Terrestrial Environment of Long-lived Radionuclides from the Nuclear Fuel Cycle, Knoxville, Tenn., July 27-31, 1981, IAEA-SM-257/100
- [5] H. Schüttelkopf,  
Das Verhalten von Plutonium in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe, KfK 3034 (August 1981)
- [6] U. Zimmermann,  
Umschau in Wissenschaft und Technik, 75 (1975), S. 249
- [7] E.P. Hardy,  
Health and Safety Laboratory, Fallout Program, Quaterly Summary Report, 1. Oktober 1974, United States Atomic Energie Commission, New York, N. Y. 10014, HASL-286
- [8] M.J. Frissel, A.T. Jakubick,  
Transport and Accumulation of Radionuclides in Soil, Beitrag zu "Radioökologie", Berichtsband der Fachtagung des Deutschen Atomforums e. V. vom 2.-3. Oktober 1979 im Wissenschaftszentrum Bonn, S. 131
- [9] E.P. Hardy,  
Health and Safety Laboratory, Fallout Program, Quaterly Summary Report, 1. Oktober 1977, United States Atomic Energie Commission, New York, N. Y. 10014, HASL-328
- [10] Der Bundesminister des Innern,  
Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung, Jahresberichte 1970 bis 1979
- [11] Jahresberichte der Hauptabteilung Sicherheit des Kernforschungszentrums Karlsruhe (Hrsg. H. Kiefer, W. Koelzer, L.A. König),  
1971: KfK-1565 (1972)                      1977: KfK-2620 (1978)  
1972: KfK-1818 (1973)                      1978: KfK-2775 (1979)  
1973: KfK-1973 (1974)                      1979: KfK-2939 (1980)  
1974: KfK-2155 (1975)                      1980: KfK-3113 (1981)  
1975: KfK-2266 (1976)                      1981: KfK-3272 (1982)  
1976: KfK-2433 (1977)
- [12] W. Hübschmann, D. Nagel,  
ISOLA-III - Ein FORTRAN-IV-Programm zur Berechnung der langfristigen Dosisverteilung in der Umgebung kerntechnischer Anlagen", KfK-2698 (1978)
- [13] S. Vogt,  
Vierparametrische Ausbreitungsstatistik als Berechnungsgrundlage der langzeitigen Schadstoffbelastung in der Umgebung eines Emittenten, KfK-2990 (1980)
- [14] L.A. König, M. Winter, H. Schüler,  
Tritium in Niederschlägen, Oberflächen-, Grund- und Trinkwasser - Ergebnisse eines Meßprogramms mit Schwerpunkt im Raum Nordbaden in den Jahren 1971 bis 1974, KfK-2386 (1976)
- [15] Der Bundesminister des Innern,  
Allgemeine Berechnungsgrundlage für die Strahlenexposition bei radioaktiven Ableitungen mit der Abluft oder in Oberflächengewässer, BMBI. Nr. 21 (1979), S. 369-436
- [16] H.D. Brenk, K.J. Vogt,  
Konzeption für eine praxisnahe Berechnung der Ablagerung radioaktiver Stoffe aus der Abluft kerntechnischer Anlagen durch Niederschlag, Jül-1328 (1976)