

KfK 3530  
April 1983

# **Die Bestimmung von Pu-241 durch Flüssigszintillations- spektrometrie im Abwasser des Kernforschungszentrums Karlsruhe**

J. M. Godoy, H. Schüttelkopf, M. Pimpl  
Hauptabteilung Sicherheit

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE  
Hauptabteilung Sicherheit

KfK 3530

Die Bestimmung von Pu-241 durch Flüssigszintillationsspektrometrie  
im Abwasser des Kernforschungszentrums Karlsruhe

J.M. Godoy, H. Schüttelkopf, M. Pimpl

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003

## Zusammenfassung

Trotz der hohen spezifischen Aktivität von Pu-241 im Kernbrennstoff sind nur wenige Publikationen über die Emission von Pu-241 mit Abluft und Abwasser erfolgt. Ebenso gibt es praktisch keine Angaben über die Pu-241-Kontamination der Umgebung kerntechnischer Anlagen.

Es wurde daher eine Methode entwickelt, die die Messung von Pu-241 in einem Flüssigszintillationsspektrometer ermöglicht. Dabei werden Plutoniumpräparate, die durch Elektrodeposition auf Edelstahl hergestellt wurden, verwendet. Zur Korrektur der Selbstabsorption wird eine lineare Beziehung zwischen physikalischem Wirkungsgrad im Flüssigszintillationsspektrometer und der Auflösung im Alpha-Spektrometer benutzt.

Pu-238, Pu-239+240 und Pu-241 wurden im Abwasser des Kernforschungszentrums Karlsruhe (KfK) gemessen. Die Konzentrationen in monatlichen Mischproben liegen zwischen 0,07 - 46 nCi Pu-238/m<sup>3</sup>, 0,13 - 2,1 nCi Pu-239+240/m<sup>3</sup> und 25 - 190 nCi - Pu-241/m<sup>3</sup>. Zwischen 5,4 % und 41 % des Plutoniums, das im Abwasser des KfK gemessen wurde, wird in den Altrhein abgegeben.

Das Aktivitätsverhältnis Pu-238 / Pu-239+240 liegt zwischen 0,39 und 1,1 und das von Pu-241 / Pu-239+240 zwischen 11 und 300. Der Mittelwert von Pu-241 / Pu-239+240 beträgt 61.

Die Dosisexposition der Umgebungsbevölkerung des Kernforschungszentrums Karlsruhe durch emittiertes Pu-241 ist vernachlässigbar klein.

THE DETERMINATION OF Pu-241 BY LIQUID SCINTILLATION COUNTING  
IN LIQUID EFFLUENTS OF THE KARLSRUHE NUCLEAR RESEARCH CENTER

Abstract

Although the concentration of Pu-241 in nuclear fuel to be reprocessed is high, there are only few results published about the emission of Pu-241 with gaseous and liquid effluents. Nearly no information is available, about the environmental contamination of nuclear installations by Pu-241.

Therefore a procedure was developed to measure Pu-241 by liquid scintillation counting. Sample preparation was performed by electroplating of plutonium on stainless steel planchets. To correct the selfabsorption, the linear dependence of counting efficiency in the liquid scintillation counter from the resolution in the alpha spectrometer was used.

Pu-238, Pu-239+240 and Pu-241 were measured in the liquid effluents of the Karlsruhe Nuclear Research Center (KfK). The concentrations in monthly mixed samples ranged from 0.07 until 46 nCi Pu-238/m<sup>3</sup>, from 0.13 until 2.1 nCi Pu-239+240/m<sup>3</sup> and from 25 until 190 nCi Pu-241/m<sup>3</sup>. Between 5.4 % and 41 % of the plutonium content of the KfK waste water are released to the River Old Rhine. The values for the activity ratio Pu-238 / Pu-239+240 are between 0.39 and 1.1 and for Pu-241 / Pu-239+240 are between 11 and 300. The mean value for Pu-241 / Pu-239+240 is 61.

The dose exposure of the environmental population of the Karlsruhe Nuclear Research Center caused by released Pu-241 is negligible low.

Inhaltsverzeichnis

	<u>Seite</u>
1 Einleitung	1
2 Die Messung von Pu-241	1
3 Experimenteller Teil	3
3.1 Geräte und Chemikalien	3
3.2 Die Probenahme und die Probenvorbereitung	4
3.3 Die Analysenmethode für Plutonium	5
3.4 Die Flüssigszintillationsspektrometrie von Pu-241	5
3.5 Die Korrektur der Selbstabsorption	6
3.6 Eine alternative Präparation durch Mitfällung von Plutonium	10
3.7 Vergleich der Pu-241-Bestimmungsmethoden	11
4 Die Ergebnisse der Messung der Pu-241-Emissionen mit dem Abwasser des KfK	13
4.1 Die Pu-241-Konzentrationen im Endbecken und am Ausfluß in den Altrhein	14
4.2 Die Pu-241-Konzentrationen und Pu-241- Emissionen mit dem Abwasser des KfK	18
4.3 Die Aktivitätsverhältnisse der Plutonium- isotope im Abwasser des KfK	20
5 Die Dosisexposition durch Pu-241	30
6 Literatur	30

## 1 Einleitung

Pu-241 ist ein Beta-Strahler, mit der maximalen Beta-Energie  $E_{\max} = 20 \text{ keV}$  und einer Halbwertszeit von 14,7 a. Nach /1/ enthält abgebrannter Brennstoff, mit einem Abbrand von 34 000 MWd/t Schwermetall, nach einem Jahr Kühlzeit 3 070 Ci Pu-238, 323 Ci Pu-239, 485 Ci Pu-240 und 103 000 Ci Pu-241. Die Strahlenbelastung durch Pu-241 selbst ist trotz der langen biologischen Halbwertszeit der Pu-Isotope, wegen der Beta-Strahlung, der niedrigen  $E_{\max}$  und der relativ zu anderen Pu-Isotopen kurzen physikalischen Halbwertszeit von untergeordneter Bedeutung.

Pu-241 zerfällt in den Alpha-Strahler Am-241, welcher eine Halbwertszeit von 433 a hat. Die Aktivität von Am-241 erreicht im Plutonium des Brennstoffes oder im freigesetzten Plutonium nach sieben Jahrzehnten einen Maximalwert. In einer Tonne des abgebrannten Brennstoffes würden nach dieser Aufbauphase ca. 3 300 Ci Am-241 vorliegen. Da die Radiotoxizität von Am-241 wesentlich höher ist als die von Pu-241 und Americium in der Umwelt mobiler ist als Plutonium, ist die Erfassung des mit Abluft und Abwasser freigesetzten Pu-241 und die Messung der akkumulierten Konzentrationen in der Umwelt notwendig.

## 2 Die Messung von Pu-241

Wegen der geringen Reichweite der Beta-Strahlung des Pu-241 und wegen des Fehlens von Alpha- und Gamma-Strahlung ist die direkte Messung von Pu-241 schwierig. Die Beta-Aktivitätsmessungen mit Methandurchflußzählrohren, die üblicherweise für die Messung von Abluft-, Abwasser- und Umgebungsproben

benützt werden, erfassen die Pu-241-Aktivität der Proben nicht. Alle Möglichkeiten der Messungen von Pu-241 setzen eine sorgfältige Abtrennung der Plutoniumfraktion voraus. Dann können drei Methoden der Messung von Pu-241 angewandt werden.

Ein Plutoniumpräparat, das alpha-spektrometriert wurde, kann nach einer geeigneten Wartezeit wieder gemessen werden, und der Alpha-Peak des aufgebauten Am-241 kann zur Berechnung des Pu-241-Gehaltes des Präparates herangezogen werden. Der Arbeitsaufwand für diese Methode ist gering; sie ist durchaus anwendbar, wenn die Pu-238-Gehalte der untersuchten Proben niedrig sind. Dies ist der Fall in den meisten Proben des Kernwaffen-Fallouts, besonders wenn sie aus der Zeit vor 1964 stammen /2, 3, 4 und 5/.

Stammt das zu untersuchende Plutonium aus Kernbrennstoffen mit hohem Abbrand, dann wird dieses Plutonium neben dem interessierenden Pu-241 auch hohe spezifische Aktivitäten an Pu-238 enthalten. Da die Alpha-Energien des Pu-238 und des Am-241 identisch sind, wird bei der Bestimmung des nachgebildeten Am-241 immer ein hoher Untergrundwert zu subtrahieren sein. Dies führt zu einer großen Standardabweichung des Ergebnisses. Sinnvolle Ergebnisse können nur bei sehr langen Wartezeiten erhalten werden /6/.

Die zweite Methode der indirekten Bestimmung von Pu-241 beruht auf der Abtrennung des nachgebildeten Am-241 nach einer geeigneten Wartezeit und die Auswertung des Alpha-Spektrums des erhaltenen Americium-Präparates. Aus dem Am-241-Gehalt wird das Pu-241 berechnet. Zur Ausbeutenbestimmung wird Am-243 zugesetzt.

Mit dieser Methode sind bereits relativ kurze Wartezeiten ausreichend, da die hohe Empfindlichkeit der Alpha-Spektro-

meter voll genutzt werden kann. Da die Americium-Analytik relativ kompliziert ist, sind Kosten und ein nennenswerter Zeitaufwand zu akzeptieren /2, 7, 8 und 9/.

Die dritte Methode besteht in der Messung der gereinigten Plutoniumfraktion im Flüssigszintillationsspektrometer. Dabei kann im niedrigen Energiebereich Pu-241 gemessen werden. Die verschiedenen Alpha-Energien der anderen Pu-Isotope treten als ein Peak im höheren Energiebereich auf /2, 7, 10, 11 und 12/. Wegen des geringen Zeit- und Kostenaufwandes und der Einfachheit mit der aus bereits für die Alpha-Spektrometrie hergestellten Plutonium-Präparaten die Pu-241-Aktivitäten bestimmt werden können, haben wir uns zur Untersuchung dieser Methodik und deren Anwendung auf Abwasser-, Abluft- und Umweltproben entschlossen.

Der Vollständigkeit halber soll erwähnt werden, daß bei ausreichend hohen Plutoniumkonzentrationen in Probenmaterialien die Massenspektrometrie angewandt werden kann /13 - 16/.

### 3 Experimenteller Teil

#### 3.1 Geräte und Chemikalien

Flüssigszintillationsspektrometer, LS 7800, der Firma Beckmann mit Spektrumanalysenprogramm

20-ml-Probenfläschchen aus Polyäthylen

Szintillator 1: 4 g PPO (2,5-Diphenyloxazol)/1 Xylol

Szintillator 2: Filter-Count TM der Firma Packard-Instruments

Szintillator 3: Instagel TM der Firma Packard-Instruments

Membranfilter aus Cellulosenitrat der Firma Sartorius,  
0,1  $\mu\text{m}$ , SM 113

Kalibrierlösung: Plutoniumstandard dessen Zusammensetzung durch Massenspektrometrie bestimmt wurde (Tab. 1).

Tab. 1: Isotopenzusammensetzung der Plutonium-Standardlösung am 04.09.1980

Nuklid	Masseanteil in %
Pu-238	0,46
Pu-239	78,15
Pu-240	15,86
Pu-241	4,44
Pu-242	1,09

### 3.2 Die Probenahme und die Probenvorbereitung

Wasserproben wurden entweder als Stichproben durch Schöpfen oder quasikontinuierlich genommen. Quasikontinuierliche Probenahme erfolgt entweder durch Einsatz eines Automaten, der in regelmäßigen abständen genau festgelegte Volumina zu einer Mischprobe vereinigt, oder durch Entnahme aliquoter Anteile aus verschiedenen Abwasserproben zur Erstellung einer z. B. Monatsmischprobe.

Während der Probenahme erfolgte eine Trennung der Schwebstoffe durch Filtrieren. Das Filtrat bzw. die Gesamtprobe für die wenigen Fälle, in denen auf das Filtrieren verzichtet wurde, wurden in  $\text{HNO}_3$  eingeleitet. Die Menge der vorgelegten  $\text{HNO}_3$  wird so gewählt, daß bei Erreichen des endgültigen Probenvolumens ein pH 1 eingestellt wird. Die Probenvolumina lagen zwischen 10 l und 50 l. Die Proben werden unter  $\text{HNO}_3$ -Zusatz vollständig eingedampft. Zum Eindampfen wird ein Umlaufverdampfer mit einer Quarzkerze benutzt. Die so erhaltenen Proben gelangen zur Plutoniumanalytik.

### 3.3 Die Analysenmethode für Plutonium

Abluft-, Abwasser- und Umweltproben werden nach der in /17/ publizierte Methode analysiert. Das Analysenverfahren besteht aus einer vollständigen Veraschung der Probe, einer Doppelauslaugung mit  $\text{HF}/\text{HNO}_3$ - und  $\text{HNO}_3/\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ -Lösungen, aus einer Extraktion mit Trioctylphosphinoxid/Cyclohexan, einer Rückextraktion mit Ascorbinsäure/HCl, der Mitfällung des Plutoniums mit  $\text{LaF}_3$  und einem Anionenaustausch.

Aus der so erhaltenen massereinen Probe wird durch eine Elektroplattierung aus Oxalat/HCl-Medium das Plutonium auf einem polierten Edelstahlplättchen abgeschieden. Diese Edelstahlplättchen werden kurz auf Rotglut erhitzt, um die Plutoniumschicht chemisch und mechanisch zu fixieren. Dieses Präparat wird alpha-spektrometriert.

### 3.4 Die Flüssigszintillationsspektrometrie von Pu-241

Eine große Zahl von Edelstahlplättchen, wie sie bei der Plutoniumanalytik von Abluft-, Abwasser- und Umweltproben hergestellt wurden, lagen uns vor. Sie wurden für die Flüssigs-

zintillationsspektrometrie verwendet. Die Edelstahlplättchen wurden mit der Plutoniumseite nach oben in Polyäthylenfläschchen gelegt und mit dem PPO/Xylol-Szintillator bedeckt.

Durch Elektroplattierung wurden Pu-241-haltige Standards hergestellt. Durch Alpha-Spektrometrie und die in Tab. 1 angegebenen Massenverhältnisse konnten die auf diesen Präparaten vorhandenen Pu-241-Aktivitäten berechnet werden. Mit diesen Aktivitäten folgte die Kalibrierung der Methode. In Abb. 1 wird ein Spektrum dargestellt, das mit dem Flüssigszintillationsspektrometer erhalten wurde. Die deutliche Trennung des niederenergetischen Beta-Peaks des Pu-241 und der Summe der Alpha-Peaks der anderen Plutonium-Isotope wird deutlich dargestellt.

### 3.5 Die Korrektur der Selbstabsorption

Von der Firma Beckmann wird als physikalischer Wirkungsgrad für Tritium 64 % angegeben. Da die Beta-Maximalenergie für Pu-241 der des Tritiums entspricht, wurde bei homogen verteiltem Pu-241 ein vergleichbarer Wirkungsgrad erwartet. Da das Pu-241 auf Edelstahlplättchen abgeschieden wurde, war nur eine 2- -Geometrie gegeben. Daher wurde ein Wirkungsgrad von 32 % erwartet. Der gefundene Wirkungsgrad lag aber wesentlich unter den erwarteten 32 %.

Als Ursache wurde eine nicht zu vernachlässigende Selbstabsorption in der durch das Flammen der Präparate gebildeten Oxidschicht erkannt. Gleichzeitig wurde festgestellt, daß bei verschiedenen Präparaten, verschiedene Wirkungsgrade erreicht wurden. Messungen, die mit Standardpräparaten durchgeführt wurden, die nicht geflammt waren, zeigten wesentlich höhere Wirkungsgrade.

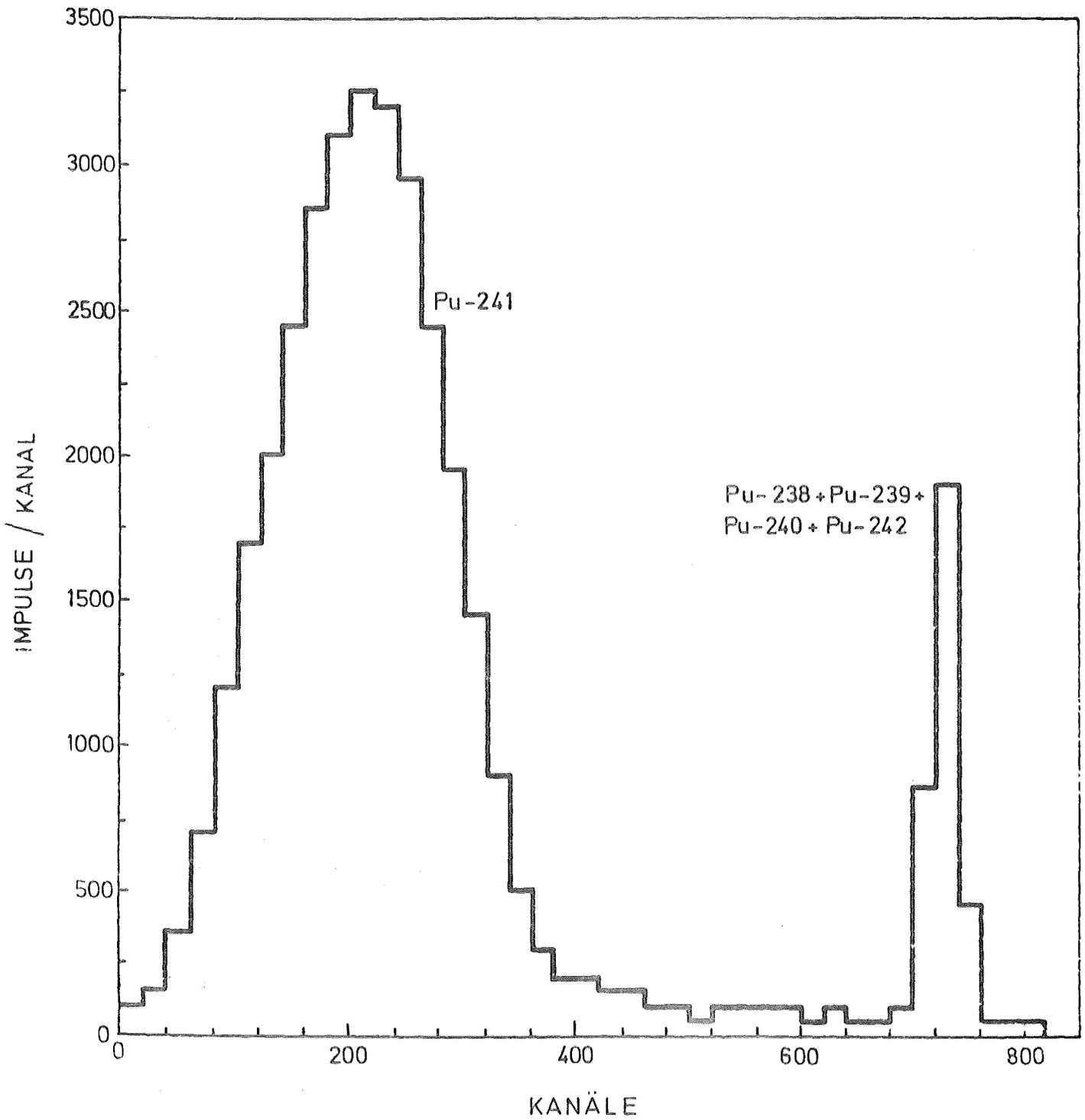


Abb. 1:  $\beta$ - und  $\alpha$ -Spektrum eines Pu-Standardpräparates

Da auch bei geringsten Selbstabsorptionen der Präparate die Auflösung der Alpha-Spektren verschlechtert wird, wurde mit einer Reihe von Standardpräparaten, die verschieden lang geglüht wurden, die Auflösung alpha-spektrometrisch und der physikalische Wirkungsgrad für das Pu-241 bestimmt. Als Auflösung wurde dabei die in halber Höhe des Peak gemessene Peakbreite in keV definiert. Die Ergebnisse sind in Abb. 2 wiedergegeben. Sowohl bei den Proben, die mit einem Bunsenbrenner geglüht wurden, als auch bei den Proben, die nicht geglüht wurden, wurde ein linearer Zusammenhang zwischen dem Auflösungsvermögen und dem physikalischen Wirkungsgrad gefunden. Der Wirkungsgrad bei Proben, die nicht geglüht wurden, ist wesentlich höher als der, welcher mit geflammten Proben gefunden wurde.

Der gemessene lineare Zusammenhang erlaubt die Bestimmung des physikalischen Wirkungsgrades, der mit der individuellen Probe erreicht werden kann, über die Bestimmung der Auflösung im Alpha-Spektrum der gleichen Probe. Da sich der erreichbare physikalische Wirkungsgrad bei Proben, die geflammt wurden und solchen, die nicht geflammt wurden, nennenswert unterscheidet, lag es nahe, auf das Flammen grundsätzlich zu verzichten. Extrapoliert man die mit solchen Proben erhaltene lineare Beziehung in den Bereich der theoretisch möglichen Auflösung von ca. 18 keV, die mit einer gewichtslosen Probe erreicht werden kann, liegt der maximal mögliche physikalische Wirkungsgrad auch im Bereich der erwarteten 30 %.

Das so abgeschiedene Plutonium ist sowohl chemisch als auch mechanisch angreifbar. Es wurde daher nach einer Methode gesucht, die die Umwandlung des Plutoniumhydroxids in das

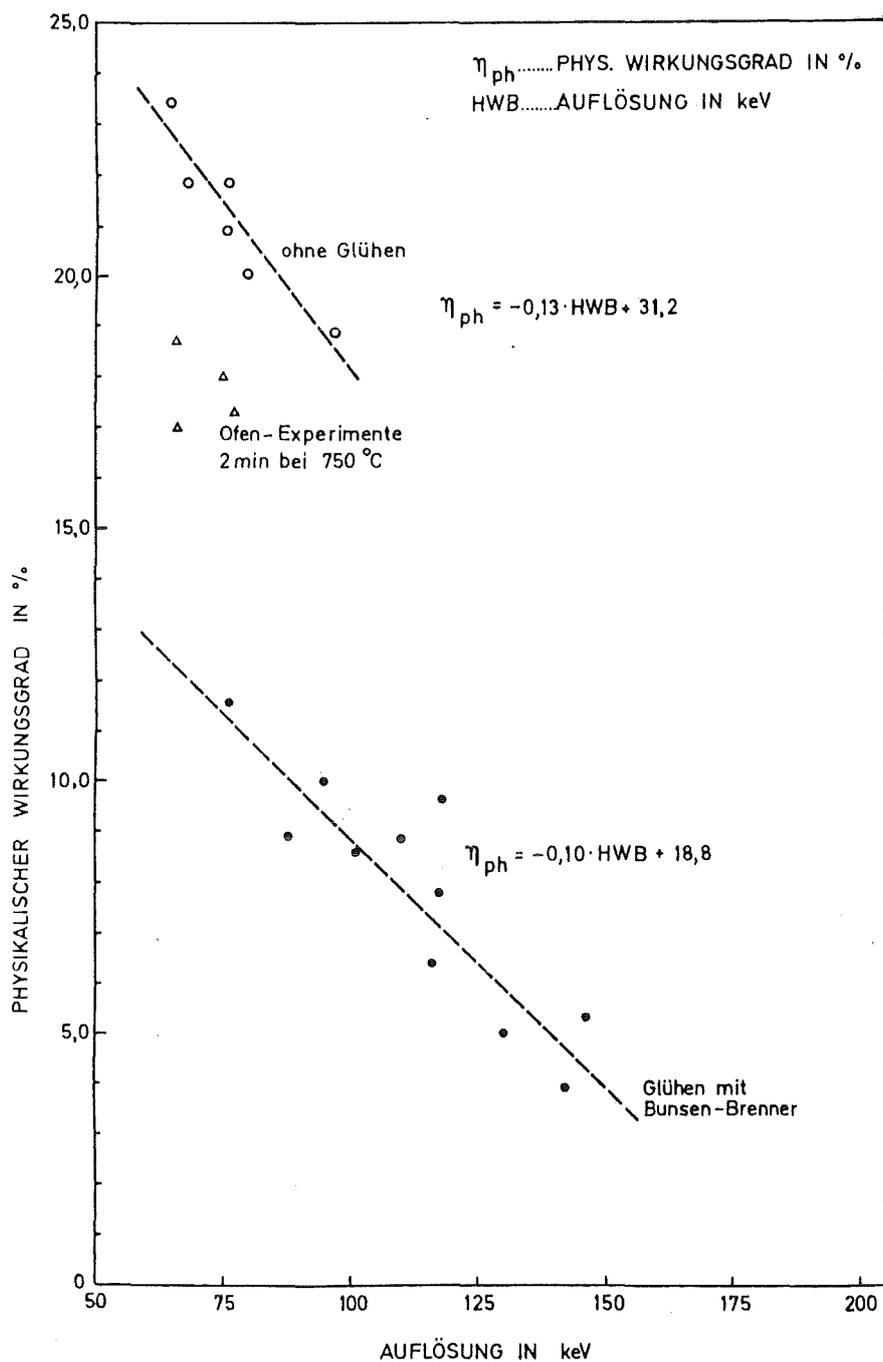


Abb. 2: Abhängigkeit des physikalischen Wirkungsgrades im Flüssigszintillationsspektrometer von der Auflösung im  $\alpha$ -Spektrometer

resistentere Plutoniumoxid sicherstellt und mit der ein hoher physikalischer Wirkungsgrad erreicht wird. Das Glühen der Präparate in einem auf 750 °C erhitzten Muffelofen während einer genau einzuhaltenden Zeit von zwei Minuten führt zu einem mittleren physikalischen Wirkungsgrad von ca. 18 %. Die Ergebnisse sind ausreichend reproduzierbar. Durch alpha-spektrometrische Messungen vor und nach der Messung im Flüssigszintillationsspektrometer wurde sichergestellt, daß eine Auflösung des Plutoniums in der Szintillatorlösung nicht erfolgt.

### 3.6 Eine alternative Präparation durch Mitfällung von Plutonium

Durch die Anwendung der Mikrofällungsmethode von C. Sill /18/ mit  $\text{LaF}_3$  wurde eine Alternative zur Herstellung von Plutoniumpräparaten durch Elektrodeposition geschaffen. Zur gereinigten Plutoniumfraktion wird 1 ml  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , 98prozentig, 10 ml  $\text{HNO}_3$ , 65prozentig, und 3 - 4 Tropfen HF, 40prozentig, zuzugeben. Es wird eingedampft bis  $\text{SO}_3$ -Nebel entstehen. Die Probe wird mit 5 ml  $\text{H}_2\text{O}$  aufgenommen. Die Lösung wird in einen Polyäthylen-Zentrifugenbecher gebracht. Die Abdampfschale wird mit 5 ml  $\text{H}_2\text{O}$  gewaschen. Die Lösungen werden vereinigt. 2 - 3 Tropfen Methylrot-Indikator werden zugesetzt. Mit  $\text{NH}_3$ -Lösung, 25prozentig, wird neutralisiert. Mit 0,2 ml HF, 40prozentig, und 0,1 ml  $\text{La}^{3+}$ -Lösung, 0,50 mg  $\text{La}^{3+}$  ml, wird die  $\text{LaF}_3$ -Fällung eingeleitet. Es wird 30 min unter gelegentlichem Rühren stehengelassen.

Ein nasses Membranfilter von 2,5 cm Durchmesser, Fa. Sartorius, mit SM 113, 3558 N, wird in das Filtrationsgerät der Fa. Sartorius, Typ SM 16306, eingelegt. 5 ml des gut durchgeschüttelten  $\text{LaF}_3$ -Substrates, bestehend aus 5 mg  $\text{La}(\text{NO}_3)_3$  in

500 ml 1 M HCl versetzt mit 40 ml 40prozentiger HF, werden filtriert. 15 s nach dieser Filtration wird der Vorgang wiederholt. Nach dieser Vorbereitung wird die Probe abfiltriert. Die Filtrationsgeschwindigkeit darf nicht größer als 1 Tropfen/s sein. Der Zentrifugenbecher und das Filter werden einmal mit 5 ml H<sub>2</sub>O und zweimal mit 80prozentiger wäßriger Äthanollösung gewaschen. 15 s nach der zweiten Äthanolwäsche wird das Filter auf ein 25 mm Durchmesser Edelstahlplättchen geklebt. Bis zu diesem Zeitpunkt darf die Vakuumpumpe, die für die Filtration eingesetzt wird, nicht ausgeschaltet werden.

Der Vollständigkeit halber ist noch zu bemerken, daß die La<sup>3+</sup>-Lösung, 0,5 mg La<sup>3+</sup>/ml, das 80prozentige Äthanol und das destillierte Wasser, vor Gebrauch durch ein 0,1 µ-Membranfilter filtriert und in Polypropylenflaschen aufbewahrt werden müssen.

Das so erhaltene Präparat wird zur Alpha-Spektrometrie verwendet (Abb. 3). Nach der Alpha-Spektrometrie wird das Filter auf einem Edelstahlplättchen montiert, mit 10 ml Filter-Count und 5 ml Instagel gelöst. Zusätzlich wird 10 mg Al<sup>3+</sup>, 0,1 ml von 0,695 g Al<sub>2</sub>(SO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>/ml-Lösung zugesetzt, um das kolloidale LaF<sub>3</sub> zu lösen und eine homogene Lösung zu bekommen. Als physikalischen Wirkungsgrad für die Zählung der Pu-241-Beta-Teilchen erhält man mit dieser Präparationsmethode ca. 28 %.

### 3.7 Vergleich der Pu-241-Bestimmungsmethoden

Drei Proben aus der Abluft der Verbrennungsanlage der HDB vom Februar 1980, Mai 1980 und Juni 1980 wurden zum Vergleich nach der hier beschriebenen Methode, nach der Abtren-

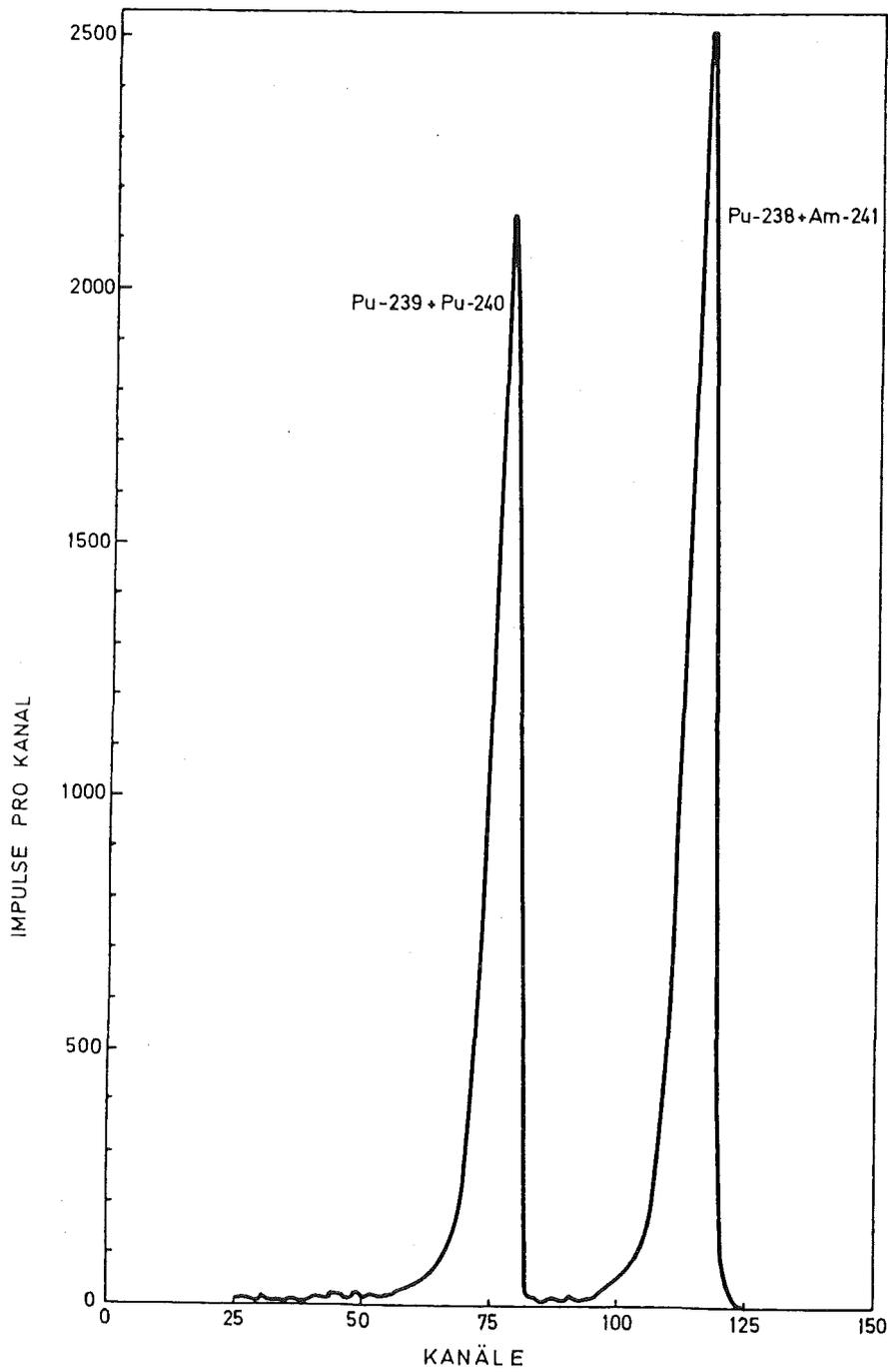


Abb. 3:  $\alpha$ -Spektrum eines Plutoniumpräparates, hergestellt durch Mitfällung mit Mikromengen von  $\text{LaF}_3$

nungsmethode des nachgebildeten Am-241 und durch Doppelmessung mit mehrjähriger Aufbauzeit untersucht. Die Ergebnisse liegen in Tab. 2 vor. Die Flüssigszintillationsspektrometrie und die Abtrennung des Am-241 führen zu sehr gut vergleichbaren Ergebnissen. Die Ergebnisse der Doppelmessung weichen bis zum Faktor 2 von denen der anderen beiden Methoden ab.

Tab. 2: Ergebnisse des Vergleiches der Flüssigszintillationsspektrometrie, der Am-241-Abtrennung und der doppelten Alpha-Spektrometrie zur Bestimmung von Pu-241. Probenmaterial: Abluftfilter, bestaubt in der Verbrennungsanlage der HDB

Probenahme 1980	Pu-241-Konzentration in pCi/Probe		
	Flüssigszintillationsspektrometrie	Am-241-Abtrennung	Doppelte $\alpha$ -Spektrometrie
Februar	199 $\pm$ 30	188 $\pm$ 24	281 $\pm$ 48
Mai	83 $\pm$ 12	94 $\pm$ 12	58 $\pm$ 8
Juni	70 $\pm$ 13	82 $\pm$ 11	41 $\pm$ 7

#### 4 Die Ergebnisse der Messung der Pu-241-Emissionen mit dem Abwasser des KfK

In /19/ wurden die Pu-238-, Pu-239+240- und Pu-241-Emissionen mit der Abluft der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe und der Verbrennungsanlage der HDB untersucht. In /20/ wur-

den wichtige Umweltmaterialien auf die gleichen Isotope ausgemessen. In diesem Bericht werden Pu-238-, Pu-239+240- und Pu-241-Meßergebnisse für die Emissionen mit dem Abwasser des Kernforschungszentrums Karlsruhe angegeben. Konzentrations- und Aktivitätsverhältniswerte werden angegeben für Endbecken- und Auslaufproben. Außerdem wurden die gleichen Werte in den Monatsmischproben der Abwasseremission 1980, 1981 und 1982 bestimmt.

#### 4.1 Die Pu-241-Konzentrationen im Endbecken und am Ausfluß in den Altrhein

In Tab. 3 werden die Plutoniumkonzentrationen aufgeteilt nach löslichem und an Schwebstoffen gebundenem Plutonium in einem Endbecken in Abhängigkeit von der Tiefe der Probenahme wiedergegeben. Eine Mischprobe, die vor dem Umrühren genommen wurde, enthält nur einen kleinen Bruchteil der mittleren Plutoniumkonzentration, die in den Proben verschiedener Wasserschichten gefunden wurde. Der Hauptteil der Aktivität ist an die Schwebstoffe gebunden. Die Plutoniumkonzentration nach dem Umrühren des Endbeckens ist über die Tiefe des Endbeckens weitgehend konstant.

In Tab. 4 wird ein ähnliches Experiment vom 23.11.1979 wiedergegeben. Hier ist die Plutoniumkonzentration in einer Probe, die aus dem Endbecken vor dem Umrühren entnommen wurde, wesentlich höher als die nach der Homogenisierung des Endbeckens durch Umrühren gefundene.

In Tab. 5 sind die Plutoniumkonzentrationen dargestellt, die am Auslauf gemessen wurden, als das Endbecken, dessen Konzentrationen in Tab. 3 wiedergegeben wurden, abgepumpt wurde. Die Konzentration des Plutoniums ist während der Abgabe

Tab. 3: Die Plutoniumkonzentrationen im Wasser eines Endbeckens  
 - getrennt nach gelöstem und an Schwebstoffen adsorbier-  
 tem Plutonium - in verschiedenen Tiefen des Endbeckens.  
 Probenahme: 17.12.1980

Tiefe der Probe- nahme in m	Chemische Form des Plutoniums	Plutoniumkonzentration in pCi/l		
		Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
Ober- fläche	gelöst	0,024±0,002	0,044±0,004	< 1,1
	adsorbiert	0,42 ±0,02	0,62 ±0,02	27±6
	gesamt	0,44 ±0,02	0,66 ±0,02	27±6
1	gelöst	0,092±0,006	0,18 ±0,01	7,5±2
	adsorbiert	0,28 ±0,01	0,40 ±0,02	14 ±2
	gesamt	0,37 ±0,02	0,58 ±0,03	26 ±4
2	gelöst	0,17 ±0,02	0,30 ±0,02	9,9±2,2
	adsorbiert	0,27 ±0,01	0,39 ±0,02	17 ±4
	gesamt	0,44 ±0,03	0,69 ±0,04	27 ±6
3	gelöst	0,094±0,008	0,17 ±0,01	7,1±1,2
	adsorbiert	0,27 ±0,01	0,44 ±0,02	12 ±2
	gesamt	0,36 ±0,02	0,61 ±0,03	19 ±3
Misch- probe	gesamt	0,096±0,007	0,16 ±0,01	4,8±0,9

Tab. 4: Plutoniumkonzentrationen im Endbecken vor und nach dem Umrühren und im Altrheinwasser 250 m unterhalb des Auslaufes während der Einleitung des angegebenen Endbeckens. Probenahme: 23.11.1979

Probenahme	Chemische Form des Pu	Plutoniumkonzentration in pCi/l		
		Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
Vor dem Rühren	gelöst	0,16 ±0,01	0,19 ±0,01	2,0 ± 0,4
	adsorbiert	0,25 ±0,01	0,30 ±0,02	50 ±10
	gesamt	0,41 ±0,02	0,49 ±0,03	52 ±10
Nach dem Rühren	gelöst	0,06 ±0,01	0,08 ±0,01	12 ±3
	adsorbiert	0,027 ±0,002	0,034 ±0,002	4,5 ±0,8
	gesamt	0,09 ±0,01	0,11 ±0,02	17 ±4
Im Altrhein	gelöst	0,026 ±0,002	0,034 ±0,002	1,2 ±0,2
	adsorbiert	0,0030 ±0,0007	0,0059 ±0,0007	< 0,4
	gesamt	0,029 ±0,003	0,040 ±0,003	1,2 ±0,2

Tab. 5: Die Plutoniumkonzentration im Wasser am Auslauf (s. Tab. 3) während des Abpumpens des Endbeckens in den Altrhein.  
Probenahme: 17.12.1980

Probenahmezeitraum	Chemische Form des Plutoniums	Plutoniumkonzentration in pCi/l		
		Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
16.30 Uhr bis 17.00 Uhr	gelöst	0,068±0,005	0,12 ±0,01	3,5±0,9
	adsorbiert	0,15 ±0,01	0,22 ±0,01	7 ±1
	gesamt	0,22 ±0,02	0,34 ±0,02	11 ±2
17.00 Uhr bis 17.30 Uhr	gelöst	0,062±0,006	0,088±0,007	< 2
	adsorbiert	0,042±0,004	0,070±0,004	1,8±0,4
	gesamt	0,10 ±0,01	0,16 ±0,01	1,8±0,4
17.30 Uhr bis 18.00 Uhr	gelöst	0,026±0,003	0,060±0,005	1,8±0,6
	adsorbiert	0,042±0,003	0,068±0,003	2,2±0,5
	gesamt	0,068±0,006	0,13 ±0,01	4 ±1
18.00 Uhr bis 18.30 Uhr	gelöst	0,034±0,003	0,074±0,005	2,5±0,6
	adsorbiert	0,036±0,003	0,062±0,004	2,2±0,5
	gesamt	0,070±0,006	0,14 ±0,01	5 ±1
18.30 Uhr bis 19.00 Uhr	gelöst	0,018±0,003	0,046±0,004	< 2
	adsorbiert	0,020±0,002	0,034±0,002	1,7±0,3
	gesamt	0,038±0,005	0,080±0,006	1,7±0,3
Mischprobe 30	gesamt	0,016±0,003	0,038±0,003	< 1
Mischprobe 3	gelöst	0,030±0,001	0,062±0,005	19 ±3
	adsorbiert	0,11 ±0,01	0,16 ±0,01	-
	gesamt	0,14 ±0,01	0,22 ±0,02	-

nicht konstant. Die Schwebstoffe werden während des Ausstoßes abgereichert. Es wurden außerdem zwei Mischproben genommen. Im ersten Fall wurde alle 30 Minuten ein größeres Volumen geschöpft und im zweiten Fall alle drei Minuten (Mischprobe 30 und 3). Während die Mischprobe 3 weitgehend mit dem mittleren Wert, den man aus dem Gesamtausstoß errechnen kann, übereinstimmt, ist der Meßwert der Mischprobe 30 viel zu klein. Außerdem gilt, daß die mittlere Konzentration am Auslauf wesentlich kleiner ist als die mittlere Konzentration, die im Endbecken gemessen wurde.

Um diesen letzten Punkt zu überprüfen, wurden eine Reihe von Experimenten zwischen dem 30.01.1980 und dem 09.07.1980 durchgeführt. Gemessen wurden jeweils die Plutoniumkonzentrationen im Endbecken und im Auslauf. Die Proben wurden aufgetrennt durch Filtrieren in den gelösten und den adsorbierten Plutoniumanteil. Die Ergebnisse sind in Tab. 6 wiedergegeben. Alle Experimente bestätigen eine Abreicherung der Plutoniumkonzentration während des Transportes in den Altrhein. Die am Auslauf gemessenen Konzentrationen betragen 5,4 % - 41 % der in den Endbecken gemessenen Werte. Der gelöste und adsorbierte Plutoniumanteil wird im allgemeinen gleichartig reduziert. In einzelnen Fällen wird der adsorbierte Plutoniumanteil am Auslauf verglichen mit dem Endbecken stärker reduziert als der gelöste. In einem Fall hat sich die adsorbierte Plutoniumkonzentration am Auslauf gegenüber dem Endbecken erhöht.

#### 4.2 Die Pu-241-Konzentrationen und Pu-241-Emissionen mit dem Abwasser des KfK

Zwischen 1980 und 1982 wurden monatliche Mischproben zur Bestimmung der Aktivitätsemissionen des Kernforschungszentrums Karlsruhe mit dem Abwasser hergestellt. Diese Mischproben werden aus aliquoten Anteilen der einzelnen zur Abga-

Tab. 6: Plutoniumkonzentrationen im Endbecken und am Auslauf in den Altrhein bei der Ableitung des gleichen Endbeckens

Probenahme- datum/-ort	Chemische Form des Plutoniums	Plutoniumkonzentration in pCi/l		
		Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
30.01.1980 Endbecken  Auslauf	gelöst	0,42 ± 0,03	0,49 ± 0,04	19 ± 3
	adsorbiert	-	-	-
	gesamt	-	-	-
	gelöst	0,051 ± 0,004	0,052 ± 0,004	1,9 ± 0,4
	adsorbiert	0,11 ± 0,01	0,11 ± 0,01	7 ± 2
	gesamt	0,16 ± 0,01	0,17 ± 0,01	9 ± 2
27.03.1980 Endbecken  Auslauf	gelöst	0,60 ± 0,03	0,77 ± 0,04	42 ± 6
	adsorbiert	3,1 ± 0,2	3,7 ± 0,2	-
	gesamt	3,7 ± 0,2	4,5 ± 0,2	-
	gelöst	0,015 ± 0,001	0,020 ± 0,001	1,0 ± 0,2
	adsorbiert	0,18 ± 0,01	0,22 ± 0,01	10 ± 2
	gesamt	0,20 ± 0,01	0,24 ± 0,01	11 ± 2
11.04.1980 Endbecken  Auslauf	gelöst	0,39 ± 0,02	0,36 ± 0,02	33 ± 6
	adsorbiert	0,35 ± 0,01	0,41 ± 0,02	20 ± 3
	gesamt	0,74 ± 0,03	0,77 ± 0,04	53 ± 9
	gelöst	0,022 ± 0,002	0,028 ± 0,002	0,9 ± 0,2
	adsorbiert	0,49 ± 0,02	0,58 ± 0,02	33 ± 6
	gesamt	0,51 ± 0,02	0,61 ± 0,02	34 ± 6
29.05.1980 Endbecken  Auslauf	gelöst	0,66 ± 0,04	0,78 ± 0,05	50 ± 20
	adsorbiert	1,8 ± 0,1	2,2 ± 0,1	-
	gesamt	2,5 ± 0,1	3,0 ± 0,2	-
	gelöst	0,087 ± 0,007	0,11 ± 0,01	6 ± 2
	adsorbiert	0,13 ± 0,01	0,16 ± 0,01	9 ± 2
	gesamt	0,22 ± 0,02	0,27 ± 0,02	15 ± 4
10.06.1980 Endbecken  Auslauf	gelöst	0,37 ± 0,03	0,43 ± 0,04	12 ± 2
	adsorbiert	0,87 ± 0,06	0,99 ± 0,07	-
	gesamt	1,2 ± 0,1	1,4 ± 0,1	-
	gelöst	0,11 ± 0,01	0,13 ± 0,01	4,1 ± 0,7
	adsorbiert	0,38 ± 0,03	0,45 ± 0,03	19 ± 3
	gesamt	0,49 ± 0,04	0,58 ± 0,04	23 ± 4
09.07.1980 Endbecken  Auslauf	gelöst	0,37 ± 0,02	0,42 ± 0,03	19 ± 3
	adsorbiert	1,2 ± 0,1	1,4 ± 0,1	62 ± 10
	gesamt	1,6 ± 0,1	1,8 ± 0,1	80 ± 10
	gelöst	0,11 ± 0,01	0,12 ± 0,01	2,3 ± 0,4
	adsorbiert	0,042 ± 0,003	0,052 ± 0,004	10 ± 2
	gesamt	0,15 ± 0,01	0,17 ± 0,01	12 ± 2

be vorgesehenen Endbecken erstellt. Im genannten Zeitraum wurden Pu-238-Konzentrationen von 0,07 - 4,6 nCi/m<sup>3</sup>, Pu-239+240-Konzentrationen von 0,13 - 2,1 nCi/m<sup>3</sup> und Pu-241-Konzentrationen von 25 - 190 nCi/m<sup>3</sup> gemessen. Der größte Teil der Pu-241-Konzentrationen lag unter der Nachweisgrenze unserer Meßmethodik. Aus den gemessenen Konzentrationen der Plutoniumisotope und den monatlichen Abwasserabgaben können die jeweiligen Emissionsraten errechnet werden. Im genannten Zeitraum lagen die Pu-238-Emissionen zwischen 2,5 und 150 µCi/Monat, die Pu-239+240-Emissionsraten zwischen 4,7 und 99 µCi/Monat und die Pu-241-Emissionsraten zwischen 820 und 6 600 µCi/Monat (Tab. 7 - 10).

#### 4.3 Die Aktivitätsverhältnisse der Plutoniumisotope im Abwasser des KfK

Im allgemeinen stimmen die Aktivitätsverhältnisse der einzelnen Plutoniumisotope im gelösten und im adsorbierten Plutoniumanteil im Endbecken und am Auslauf weitgehend überein. Die Aktivitätsverhältnisse Pu-238 / Pu-239+240 liegen zwischen 0,39 und 1,1, die Verhältnisse Pu-241 / Pu-239+240 zwischen 11 und 300. Für das Aktivitätsverhältnis von Pu-241 / Pu-239+240 im Endbecken und am Auslauf wurde ein Mittelwert von 61 errechnet. Dieser Mittelwert wurde auch im Altrhein /20/ weitgehend bestätigt.

In den monatlichen Mischproben der Endbecken wurden Aktivitätsverhältnisse für Pu-238 / Pu-239+240 von 0,38 - 2,0 und Pu-241 / Pu-239+240 von < 20 bis 380 gemessen (Tab. 11 - 15).

Tab. 7: Plutoniumkonzentrationen in Abwassermischproben des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Probenahme: 1980

Probenahmezeitraum	Plutoniumkonzentrationen in nCi/m <sup>3</sup>		
	Pu-238	Pu-239-240	Pu-241
31.12.1979 - 03.02.1980	0,18	0,21	<90
04.02.1980 - 02.03.1980	0,18	0,16	<60
03.03.1980 - 30.03.1980	0,26	0,47	<210
31.03.1980 - 27.04.1980	0,97	1,2	-
28.04.1980 - 01.06.1980	0,22	0,30	-
02.06.1980 - 29.06.1980	0,36	0,45	<30
30.06.1980 - 03.08.1980	0,19	0,13	<40
04.08.1980 - 31.08.1980	1,6	2,1	<100
01.09.1980 - 28.09.1980	0,62	0,74	<30
29.09.1980 - 02.11.1980	0,20	0,24	51±19
03.11.1980 - 30.11.1980	0,23	0,31	<70
01.12.1980 - 28.12.1980	<0,3	0,49	190±60

Tab. 8: Plutoniumkonzentrationen in Abwassermischproben des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Probenahme: 1981

Probenahmezeitraum	Plutoniumkonzentrationen in nCi/m <sup>3</sup>		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
29.12.1980 - 01.02.1981	< 1	1,4	<210
02.02.1981 - 01.03.1981	0,70	1,6	< 70
02.03.1981 - 29.03.1981	0,12	0,32	< 60
30.03.1981 - 03.05.1981	< 0,2	0,32	< 50
04.05.1981 - 31.05.1981	0,070	0,16	< 50
01.06.1981 - 07.07.1981	0,24	0,34	< 30
08.07.1981 - 31.07.1981	0,98	1,8	< 40
03.08.1981 - 30.08.1981	0,50	0,90	51±18
31.08.1981 - 27.09.1981	0,82	1,3	42±15
28.09.1981 - 01.11.1981	0,60	0,30	< 60
02.11.1981 - 29.11.1981	< 0,5	< 0,3	<130
30.11.1981 - 03.01.1982	< 0,8	< 0,3	<150

Tab. 9: Plutoniumkonzentrationen in Abwassermischproben des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Probenahme: 1982

Probenahmezeitraum	Plutoniumkonzentrationen in nCi/m <sup>3</sup>		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
04.01.1982 - 31.01.1982	<0,2	0,36	<20
01.02.1982 - 28.02.1982	0,15	0,34	<40
01.03.1982 - 28.03.1982	<0,3	0,35	<90
29.03.1982 - 02.05.1982	<0,4	<0,5	<70
03.05.1982 - 30.05.1982	4,6	<1,6	<260
31.05.1982 - 27.06.1982	0,20	0,40	28±15
28.06.1982 - 01.08.1982	0,50	0,50	<20
01.08.1982 - 31.08.1982	0,14	0,17	<10
30.08.1982 - 03.10.1982	0,090	0,14	<10
04.10.1982 - 31.10.1982	<0,3	0,44	34±11
01.11.1982 - 28.11.1982	<0,5	0,40	<20
29.11.1982 - 02.01.1983	0,50	0,60	25±7

Tab. 10: Plutoniumemissionen in Abwassermischproben des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Probenahme: 1980 bis 1982

Probenahmezeitraum	Plutoniumemissionen in $\mu\text{Ci}$		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
31.12.1979 - 03.02.1980	8,0	9,4	<4000
04.02.1980 - 02.03.1980	6,5	5,8	< 216
03.03.1980 - 30.03.1980	10	18	<8100
31.03.1980 - 27.04.1980	37	46	-
28.04.1980 - 01.06.1980	11	15	-
02.06.1980 - 29.06.1980	14	18	<1200
30.06.1980 - 03.08.1980	10	7,0	<2200
04.08.1980 - 31.08.1980	53	70	<3300
01.09.1980 - 28.09.1980	20	24	< 980
29.09.1980 - 02.11.1980	8,3	10	2100 $\pm$ 800
03.11.1980 - 30.11.1980	6,7	9,1	<2000
01.12.1980 - 28.12.1980	<10	17	6600 $\pm$ 2100
29.12.1980 - 01.02.1981	<41	58	<8600
02.02.1981 - 01.03.1981	29	66	<2900
02.03.1981 - 29.03.1981	4,0	11	<2000
30.03.1981 - 03.05.1981	< 8	13	<2100
04.05.1981 - 31.05.1981	2,5	5,8	<1800
01.06.1981 - 07.07.1981	8,9	13	<1100
08.07.1981 - 31.07.1981	54	99	<2200
03.08.1981 - 30.08.1981	16	28	1600 $\pm$ 600
31.08.1981 - 27.09.1981	26	41	1300 $\pm$ 500
28.09.1981 - 01.11.1981	22	11	<2200
02.11.1981 - 29.11.1981	<20	< 9	<3800
30.11.1981 - 03.01.1982	<30	<10	<5700
04.01.1982 - 31.01.1982	< 7	13	< 700
01.02.1982 - 28.02.1982	5,2	12	<1400
01.03.1982 - 28.03.1982	<10	11	<3000
29.03.1982 - 02.05.1982	<20	<20	<2800
03.05.1982 - 30.05.1982	150	<50	<8500
31.05.1982 - 27.06.1982	6,8	14	960 $\pm$ 510
28.06.1982 - 01.08.1982	23	23	< 920
01.08.1982 - 31.08.1982	4,8	5,8	< 340
30.08.1982 - 03.10.1982	3,0	4,7	< 330
04.10.1982 - 31.10.1982	< 7	11	820 $\pm$ 260
01.11.1982 - 28.11.1982	<10	11	< 530
29.11.1982 - 02.01.1983	17	21	830 $\pm$ 240

Tab. 11: Die Aktivitätsverhältnisse in Wasser eines Endbeckens - getrennt nach gelöstem und an Schwebstoffen adsorbiertem Plutonium - in verschiedenen Tiefen des Endbeckens. Probenahme: 17.12.1980

Tiefe der Probenahme in m	Chemische Form des Plutoniums	Plutoniumaktivitätsverhältnisse		
		Pu-238 / Pu-239+240	Pu-241 / Pu-238	Pu-241 / Pu-239+240
Oberfläche	gelöst	0,55	<50	<30
	adsorbiert	0,69	63	43
	gesamt	0,67	61	41
1	gelöst	0,51	82	42
	adsorbiert	0,70	51	35
	gesamt	0,64	70	37
2	gelöst	0,59	57	33
	adsorbiert	0,70	64	45
	gesamt	0,64	61	39
3	gelöst	0,54	75	41
	adsorbiert	0,63	43	27
	gesamt	0,59	53	31
Mischprobe	gesamt	0,60	50	30

Tab. 12: Die Aktivitätsverhältnisse im Endbecken vor und nach dem Umrühren und im Altrheinwasser 250 m unterhalb des Auslaufes während der Einleitung des angegebenen Endbeckens. Probenahme: 23.11.1979

Probenahme	Chemische Form des Plutoniums	Plutoniumaktivitätsverhältnisse		
		Pu-238 / Pu-239+240	Pu-241 / Pu-238	Pu-241 / Pu-239+240
vor dem Rühren	gelöst	0,87	13	11
	adsorbiert	0,84	200	160
	gesamt	0,84	130	110
nach dem Rühren	gelöst	0,79	200	160
	adsorbiert	0,80	170	130
	gesamt	0,79	180	150
im Altrhein	gelöst	0,78	44	34
	adsorbiert	0,51	<120	<60
	gesamt	0,73	41	30

Tab. 13: Die Aktivitätsverhältnisse im Wasser des Endbeckens während des Abpumpens in den Altrhein am Auslauf.  
Probenahme: 17.12.1980

Probenahme- zeitraum	Chemische Form des Plutoniums	Plutoniumaktivitätsverhältnisse		
		Pu-238/ Pu-239+240	Pu-241/ Pu-238	Pu-241/ Pu-239+240
16.30 Uhr bis 17.00 Uhr	gelöst adsorbiert gesamt	0,59 0,68 0,65	52 49 50	31 33 32
17.00 Uhr bis 17.30 Uhr	gelöst adsorbiert gesamt	0,71 0,60 0,63	<30 43 18	<20 26 11
17.30 Uhr bis 18.00 Uhr	gelöst adsorbiert gesamt	0,43 0,62 0,52	67 51 59	29 32 31
18.00 Uhr bis 18.30 Uhr	gelöst adsorbiert gesamt	0,46 0,58 0,50	74 60 67	34 35 34
18.30 Uhr bis 19.00 Uhr	gelöst adsorbiert gesamt	0,39 0,59 0,48	<110 87 -	<40 51 -
Mischprobe 30	gesamt	0,42	<80	<30
Mischprobe 3	gelöst adsorbiert gesamt	0,48 0,69 0,64	630 - -	300 - -

Tab. 14: Aktivitätsverhältnisse im Endbecken und am Auslauf in den Altrhein bei der Ableitung des gleichen Endbeckens

Probenahme- datum/-ort	Chemische Form des Plutoniums	Aktivitätsverhältnisse		
		Pu-239 / Pu-239+240	Pu-241 / Pu-238	Pu-241 / Pu-239+240
30.01.1980 Endbecken Auslauf	gelöst	0,87	44	38
	gelöst	0,98	37	36
	adsorbiert	1,1	59	63
	gesamt	0,94	53	50
27.03.1980 Endbecken Auslauf	gelöst	0,78	71	55
	adsorbiert	0,83	-	-
	gesamt	0,82	-	-
	gelöst	0,76	66	50
	adsorbiert	0,84	55	46
	gesamt	0,83	55	46
11.04.1980 Endbecken Auslauf	gelöst	1,1	83	92
	adsorbiert	0,86	56	48
	gesamt	0,96	72	69
	gelöst	0,80	42	33
	adsorbiert	0,85	67	56
	gesamt	0,84	67	56
29.05.1980 Endbecken Auslauf	gelöst	0,84	81	69
	adsorbiert	0,84	-	-
	gesamt	0,83	-	-
	gelöst	0,78	70	55
	adsorbiert	0,81	68	55
	gesamt	0,81	68	55
10.06.1980 Endbecken Auslauf	gelöst	0,87	33	29
	adsorbiert	0,88	-	-
	gesamt	0,86	-	-
	gelöst	0,87	37	33
	adsorbiert	0,85	49	42
	gesamt	0,84	47	40
09.07.1980 Endbecken Auslauf	gelöst	0,89	50	44
	adsorbiert	0,82	53	44
	gesamt	0,89	51	45
	gelöst	0,89	214	194
	adsorbiert	0,82	230	190
	gesamt	0,88	80	71

Tab. 15: Aktivitätsverhältnisse in Abwassermischproben des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Probenahme: 1980 bis 1982

Probenahmezeitraum	Aktivitätsverhältnisse		
	Pu-238 / Pu-239+240	Pu-241 / Pu-238	Pu-241 / Pu-239+240
31.12.1979 - 03.02.1980	0,86	<430	<500
04.02.1980 - 02.03.1980	1,1	<330	<380
03.03.1980 - 30.03.1980	0,55	<820	<460
31.03.1980 - 27.04.1980	0,81	-	-
28.04.1980 - 01.06.1980	0,73	-	-
02.06.1980 - 29.06.1980	0,80	< 90	< 70
30.06.1980 - 03.08.1980	1,5	<220	<330
04.08.1980 - 31.08.1980	0,76	< 60	< 50
01.09.1980 - 28.09.1980	0,84	< 50	< 40
29.09.1980 - 02.11.1980	0,83	250	210
03.11.1980 - 30.11.1980	0,74	<310	<230
01.12.1980 - 28.12.1980	<0,5	<750	380
29.12.1980 - 01.02.1981	<1	-	<1500
02.02.1981 - 01.03.1981	0,44	<100	< 40
02.03.1981 - 29.03.1981	0,38	<540	<200
30.03.1981 - 03.05.1981	<0,6	-	<170
04.05.1981 - 31.05.1981	0,44	<680	<300
01.06.1981 - 07.07.1981	0,71	<100	< 70
08.07.1981 - 31.07.1981	0,56	< 40	< 20
03.08.1981 - 30.08.1981	0,56	100	57
31.08.1981 - 27.09.1981	0,63	51	32
28.09.1981 - 01.11.1981	2,0	< 90	<180
02.11.1981 - 29.11.1981	-	-	-
30.11.1981 - 03.01.1982	-	-	-
04.01.1982 - 31.01.1982	<0,6	-	< 60
01.02.1982 - 28.02.1982	0,44	<260	<120
01.03.1982 - 28.03.1982	<0,9	-	<260
29.03.1982 - 02.05.1982	-	-	-
03.05.1982 - 30.05.1982	<3	< 60	-
31.05.1982 - 27.06.1982	0,50	140	69
28.06.1982 - 01.08.1982	1,0	< 30	< 30
01.08.1982 - 31.08.1982	0,82	< 80	< 70
30.08.1982 - 03.10.1982	0,64	<140	< 90
04.10.1982 - 31.10.1982	<0,6	<120	77
01.11.1982 - 28.11.1982	<1	-	< 50
29.11.1982 - 02.01.1983	0,83	49	41

## 5 Die Dosisexposition durch Pu-241

Unter der Annahme, daß das Abwasser des KfK als Trinkwasser benützt würde, würde mit der größten bisher gemessenen Konzentration von 190 nCi Pu-241/m<sup>3</sup> und einem Jahresverbrauch von ca. 1 000 l eine Jahresaufnahme von  $1,9 \cdot 10^{-7}$  Ci Pu-241 erfolgen.

Nach der Strahlenschutzverordnung /21/ beträgt der Grenzwert der Jahresaktivitätszufuhr über Ingestion  $1,1 \cdot 10^{-5}$  Ci Pu-241. Eine dauernde Verwendung von Abwasser als Trinkwasser würde unter den oben angegebenen ungünstigen Bedingungen eine Aufnahme von 1,7 % des maximal zulässigen Pu-241-Aufnahme zur Folge haben. Die tatsächliche Dosisexposition der Umgebungsbevölkerung durch Pu-241 im Abwasser des KfK ist daher vernachlässigbar klein.

## 6 Literatur

- /1/ Haug, H.O. - "Calculation and Compilations of Composition, Radioactivity, Thermal Power, Gamma and Neutron Release Rates of Fission Products and Actinides of Spent Power Reactor Fuels and Their Reprocessing Wastes", KfK 1945, April 1974
- /2/ Koide, M. and Goldberg, E.D. - "Pu-241/Pu-239+240 ratios in polar glaciers", Earth and Planetary Science Letters 54, 1981, 239 - 247
- /3/ Matsunami, T. and Mamuro, T. - "Activity Ratios of Pu-241/Pu-239+240 and PU-238/Pu-239+240 in Fall-out Samples Collected in the Period of 1961-1968", Journal of Radiation Research 22, 1981, 151 - 159

- /4/ Day, J.P. and Cross, E. - "Am-241 from the decay of Pu-241 in the Irish Sea", Nature 292, July 1981, 43 - 45
- /5/ Thomas, C.W. - "The Concentrations of Pu-241 and Tc-99 in Surface Air at Richland, Washington", BNWL-2000 PT3, 1976, 20 - 23
- /6/ Rosner, G. - "Measurements of Actinide Nuclides in Water Samples from the Primary Circuit of a Nuclear Power Plant", Journal of Radioanal. Chemistry 64 (1-2), 55 - 64, 1981
- /7/ Koide, M., Goldberg, E.D. and Hodge, V.F. - "Pu-241 and Am-241 in Sediments from Coastal Basins of California and Mexico", Earth and Planetary Science Letters 48, 1980, 250 - 256
- /8/ Livingston, H.D., Mann, D.R. and Bowen, V.T. - "Analytical Procedures for Transuranic Elements in Seawater and Marine Sediments", COO-3563-27, September 1974
- /9/ Livingston, H.D., Schneider, D.L. and Bowen, V. - "Pu-241 in the Marine Environment by a Radiochemical Procedure", Earth Planet Sci. Lett. 25(3), 361 - 367, April 1975
- /10/ Horrocks, D.L. and Studier, M.H. - "Low-Level Plutonium-241 Analysis by Liquid Scintillation Techniques", Analytical Chemistry 30(11) 1747 - 1750, November 1958

- /11/ Darrall, K.G., Hammond, G.C.M. and Tyler, J.F.C. - "Determination of Pu-241 in Effluents", Analyst 98(1166) 358 - 263, May 1973
- /12/ Eakins, J.D. and Lally, A.E. - "The Simultaneous Determination of Plutonium-Alpha Activity and Plutonium-241 in Biological Materials by Gel-Scintillation Counting", AERE-R-664, December 1970
- /13/ Carter, J.A., Walker, R.L., Smith, D.H. and Christie, W.H., "Isotope Dilution Resin Bead Mass Spectrometry - An Ultra Trace Technique for Measuring Nuclides in Three-Mile Island Water", Intern. J. Environ. Anal. Chem. 8, 1980, 241 - 248
- /14/ Leifer, R. and Toonkel, L. - "Plutonium Isotopic Analysis of Stratospheric Samples from April 1977", EML-890, UC-11, May 1981, I. 407 - I. 430
- /15/ Krey, D.W. and Krajewski, B.T. - "Plutonium Isotopic Ratios at Rocky Flats", USAEC Report HASL-249, 1972, p. I - 67
- /16/ Hardy, E.P., Krey, P.W., Volchok, H.L. - "Plutonium Fallout in Utah", USAEC Report HASL-257, 1972, p. I. 495
- /17/ Schüttelkopf, H. - "Entwicklung einer Analysenmethode für Plutonium im Femtogramm/Gramm-Bereich und ihre Anwendung auf Umweltproben", KfK 3035, Sept. 1981

- /18/ Sill, C.W. - "Preparation of Actinides for Alpha-Spectrometry without Electrodeposition", Anal. Chem. 53, 412 - 415, 1981
- /19/ Godoy, J.M., Schüttelkopf, H. - "Die Bestimmung von Pu-241 durch Flüssigszintillationsspektrometrie in der Abluft der Verbrennungsanlage der HDB und der Wiederaufarbeitungsanlage WAK", KfK 3510, März 1983
- /20/ Godoy, J.M., Schüttelkopf, H., Pimpl, M. - "Die Bestimmung von Pu-241 durch Flüssigszintillationsspektrometrie in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe", KfK 3531, April 1983
- /21/ Fischerhof, H. - "Atomgesetz mit Verordnungen", Nomos Verlagsgesellschaft, Baden-Baden, 1978