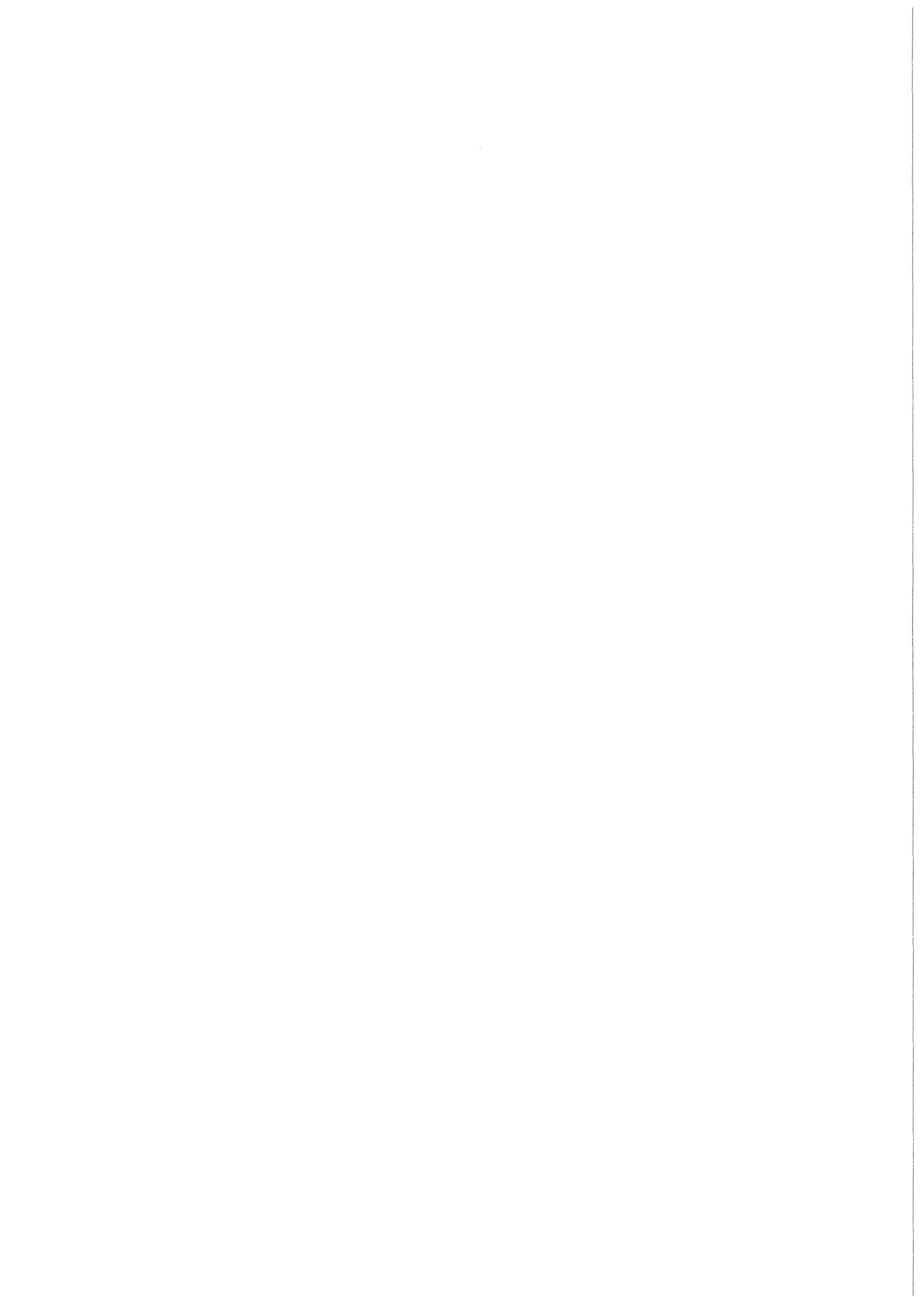


KfK 3531
April 1983

Die Bestimmung von Pu-241 durch Flüssigszintillations- spektrometrie in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
Hauptabteilung Sicherheit
KfK 3531

Die Bestimmung von Pu-241 durch Flüssigszintillationsspektrometrie
in der Umgebung 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 α -Spektrometer benützt.

Die Messung von Pu-238, Pu-239+240 und Pu-241 erfolgte in Boden- und Pflanzenproben und in Tiefenprofilen im Boden in der 2. Hauptwindrichtung von der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe aus. Die Verdünnung der Plutoniumisotope im Altrhein wurde bis 13,5 km unterhalb der Einleitung der Abwässer des Kernforschungszentrums Karlsruhe gemessen.

Die Pu-241-Konzentrationen im Boden lagen zwischen <80 und 35 000 fCi/g trocken. In Pflanzen wurden Werte bis zu 8 100 fCi/g trocken gemessen. Im Altrhein lagen die Pu-241-Konzentrationen zwischen <110 und 16 200 fCi/l. Das Aktivitätsverhältnis Pu-241/Pu-239+240 lag in Bodenproben nahe der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe im Bereich von ca. 12 und in größerem Abstand von der WAK bei 61. Während der erste Wert gut mit dem Verhältnis im Kernwaffenfallout übereinstimmt, weist der höhere Wert auf zusätzliche Kontamination durch kerntechnische Anlagen hin. Der Mittelwert in Pflanzen liegt bei 33 und im Altrhein bei 56. Die gemessenen Aktivitätsverhältnisse streuen über einen weiten Bereich.

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

THE DETERMINATION OF Pu-241 BY LIQUID SCINTILLATION COUNTING
IN THE ENVIRONMENT 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 too, 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 and the resolution in the α -spectrometer was used.

The determination of Pu-238, Pu-239+240 and Pu-241 was performed in soil and plant samples and in depth profiles in soil in the second main-wind direction as measured near the Karlsruhe Nuclear Reprocessing Plant. The dilution of plutonium isotopes in the River Old Rhine was measured until 13.5 km downstreams from the release of liquid effluents of the Karlsruhe Nuclear Research Center.

The Pu-241 concentrations in soil ranged from <80 until 35000 fCi/g dry. In plant values up till 8100 fCi/g dry were measured. In the River Old Rhine the Pu-241 concentrations were between <110 and 162 000 fCi/l. The activity ratios Pu-241/Pu-239+240 in soil samples were about 12 near the Karlsruhe Reprocessing Plant and about 61 in larger distances. The first value agrees very well with the ration expected in plutonium from nuclear weapon fallout. The higher value represents an additional contamination by nuclear installations. The mean value in plants was 33 and in the River Old Rhine 56. The standard deviations of the measured activity ratios are very large.

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

Inhaltsverzeichnis

	<u>Seite</u>
1. Einleitung	1
2. Die Messung von Pu-241	2
3. Experimenteller Teil	4
3.1 Geräte und Chemikalien	4
3.2 Probenahme und Probenvorbereitung	5
3.3 Die Analysenmethode für Plutonium	6
3.4 Die Flüssigszintillationsspektrometrie von Pu-241	6
3.5 Die Korrektur der Selbstabsorption	7
3.6 Eine alternative Präparation durch Mitfällung von Plutonium	10
3.7 Vergleich der Pu-241-Bestimmungsmethoden	13
4. Ergebnisse der Messung der Pu-241-Konzentrationen in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe	14
4.1 Pu-239+240 und Pu-241 in mit Fallout kontaminierten Bodenproben	14
4.2 Plutoniumkonzentrationen in Bodenproben aus der Umgebung des KfK	15
4.3 Plutoniumkonzentrationen in Proben aus Tiefen- profilen in Boden	29
4.4 Plutoniumkonzentrationen in Laub- und Pflanzen- proben	33
4.5 Plutoniumkonzentrationen im Altrheinwasser	36
5. Die Dosisexposition durch Pu-241	51
6. Literatur	52

1. Einleitung

Pu-241 ist ein β -Strahler, mit der maximalen β -Energie $E_{\max} = 20$ 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 β -Strahlung, der niedrigen E_{\max} und der relativ zu anderen Pu-Isotopen kurzen physikalischen Halbwertszeit von untergeordneter Bedeutung.

Pu-241 zerfällt in den α -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 7 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 β -Strahlung des Pu-241 und wegen des Fehlens von α - und γ -Strahlung ist die direkte Messung von Pu-241 schwierig. Die β -Aktivitätsmessungen mit Methan-durchflußzählrohren, 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 alphaspektrometriert wurde, kann nach einer geeigneten Wartezeit wieder gemessen werden, und der α -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 aus der Zeit vor 1964 [2, 3, 4, 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 α -Energien des Pu-238 und des Am-241 identisch sind, wird bei der Bestimmung des nachgebildeten Am-241 immer ein hoher Untergrundswert zu subtrahieren sein. Dies führt zu einer großen Standardabweichung des Ergebnisses, und 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 der Auswertung des α -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 α -Spektrometer vollgenützt werden kann. Da die Americium-Analytik relativ kompliziert ist, sind Kosten und ein nennenswerter Zeitaufwand zu akzeptieren [2,7,8,9].

Die dritte Methode besteht in der Messung der gereinigten Plutoniumfraktion im Flüssigszintillationsspektrometer. Dabei kann im niedrigen Energiebereich Pu-241 gemessen werden und die verschiedenen α -Energien der anderen Pu-Isotope treten als ein Peak im höheren Energiebereich auf [2,7,10,11,12]. Wegen des geringen Zeit- und Kostenaufwandes und der Einfachheit mit der aus bereits für die α -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

Membranfilter aus Cellulosenitrat der Firma Sartorius, 0,1 μm , SM 113.

Szintillator 2: Filter-Count, Firma Packard-Instruments

Szintillator 3: Instagel TM, Firma Packard-Instruments

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

Tabelle 1: Isotopenzusammensetzung der Plutonium-Standardlösung am 4.9.1980

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

3.2 Probenahme und Probenvorbereitung

Die Untersuchung der Plutoniumkonzentrationen in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe war in zwei Teile geteilt.

Einerseits wurde die Ablagerung von Plutonium aus der Abluftfahne der WAK in der zweiten Hauptwindrichtung auf Laub, Pflanzen und Boden untersucht. Die Probenahme erfolgte in Kreisringsektoren im Abstand von 0,1, 0,2, 0,5, 1, 2, 5 und 10 km vom Abluftkamin der WAK. Die Probenahme erfolgte an sieben Positionen in den einzelnen Kreisringen rechts und links von der zweiten Hauptwindrichtung jeweils auf Radien vom Abluftkamin der WAK aus, die mit der zweiten Hauptwindrichtung einen Winkel von 15, 30 und 45° einschlossen. An einzelnen Stellen in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe wurden Tiefenprofile entnommen.

Die zweite Untersuchung konzentrierte sich auf die Verdünnung der mit dem Abwasser emittierten Plutoniumisotope entlang dem Altrhein, dem Vorfluter des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Die Probenahmen erfolgten quasikontinuierlich 750 m und 250 m oberhalb der Einleitung der Abwässer und 20 m, 600 m, 2000 m, 3500 m, 5,5 km und 13,5 km unterhalb der Einleitung der Abwässer.

Die Bodenprobenahme erfolgte mit Stahlzylindern von 10 cm Durchmesser und erfolgte durch stechen von Erdzylindern bis zur gewünschten Tiefe. Im allgemeinen wurde bis 5 cm bzw. bis 20 cm Tiefe gestochen. Bei Tiefenprofilen wurden dünnere Erdschichten entnommen. Die Bodenproben wurden bei 110°C getrocknet, gemischt, gesiebt und bei 650°C verascht. Nach Anfeuchten mit HNO₃ wurde abermals bei 650°C verascht. Die so erhaltenen kohlenstofffreien Proben wurden gemahlen und je 100 g der Proben gelangten zur Analyse.

Die Pflanzenproben wurden auf Flächen von 50 x 50 cm² entnommen. Auch sie wurden bei 110°C getrocknet, verascht und homogenisiert. 20 g der Pflanzenasche gelangten zur Analyse.

Die Wasserprobenahme erfolgte durch die quasikontinuierlich arbeitenden Probenahmegeäte der Firma Colora. Kleine Wasservolumina werden in konstanten Zeitabständen durch das Gerät aufgesaugt und zu einer Wochenprobe von ca. 10 l vereinigt. Um die Schwebstoffe vom Wasser zu trennen, wurde die jeweilige Wasserfraktion über ein aschefreies Filter geleitet. Das Filtrat gelangte in einen Behälter, der soviel HNO_3 enthielt, daß in der voll aufgefüllten 10 l-Probe der pH1 eingestellt wurde. Die Wasserproben wurden eingedampft und verascht. Die Filter wurden getrocknet und ebenfalls verascht. Die so erhaltenen Rückstände gelangten zur Plutoniumanalyse.

3.3 Die Analysenmethode für Plutonium

Abluft-, Abwasser- und Umweltproben werden nach der in [17] publizierten Methode analysiert. Das Analysenverfahren besteht aus einer vollständigen Veraschung der Probe, einer Doppelauslaugung mit HF/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 LaF_3 und einem Anionenaustausch.

Aus der so erhaltenen massefreien 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 Flüssigszintillationsspektrometrie 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 α -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 β -Peaks des Pu-241 und der Summe der α -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 β -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 $2\text{-}\pi$ -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 geblamt waren, zeigten wesentlich höhere Wirkungsgrade.

Da auch bei geringsten Selbstabsorptionen der Präparate die Auflösung der α -Spektren verschlechtert wird, wurde mit einer Reihe von Standardpräparaten, die verschieden lang geblüht wurden, die Auflösung α -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 geblüht wurden, als auch bei den Proben, die nicht geblüht wurden, wurde ein linearer Zusammenhang zwischen

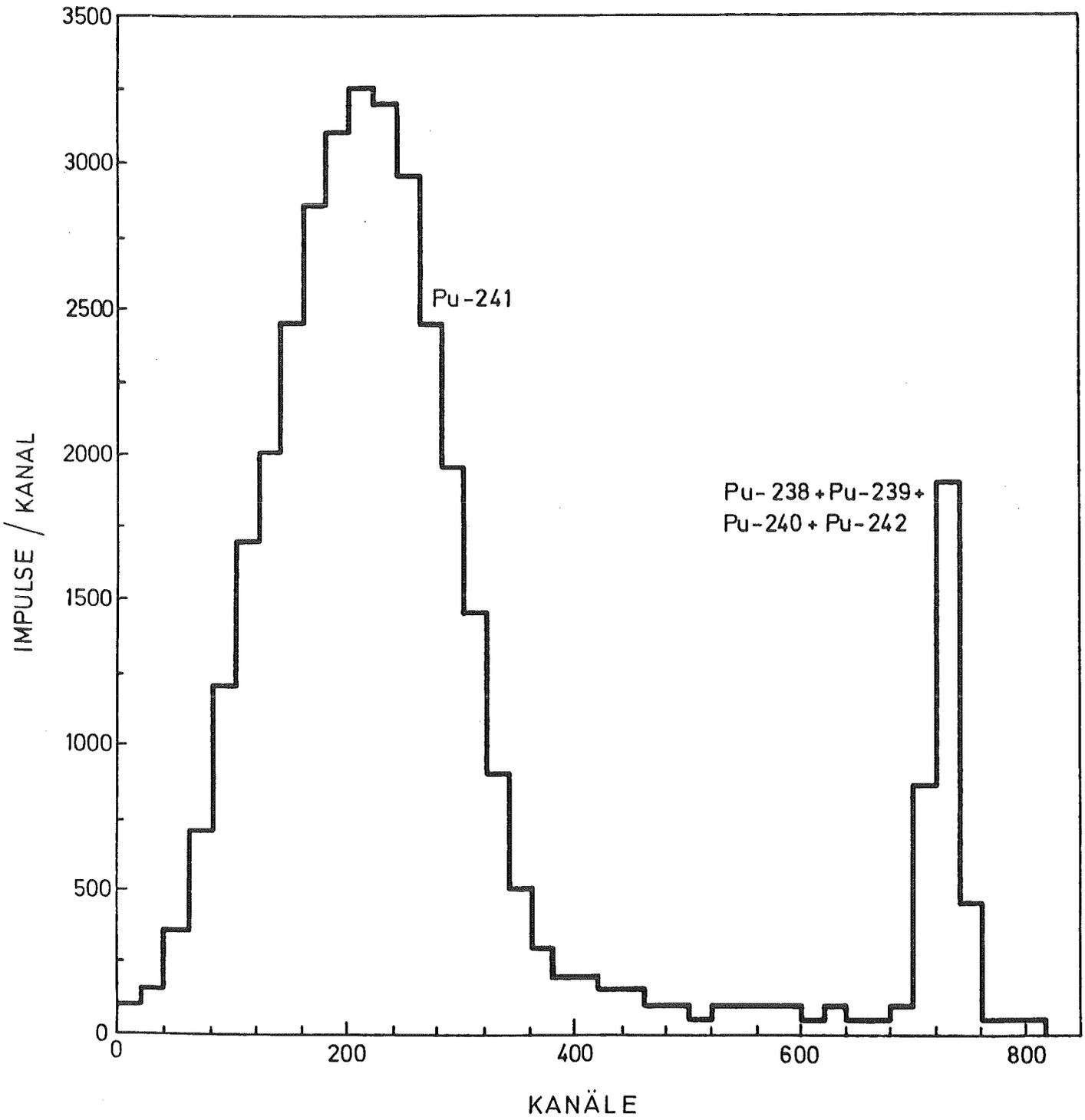


Abb. 1: β - und α -Spektrum eines Pu-Standardpräparates

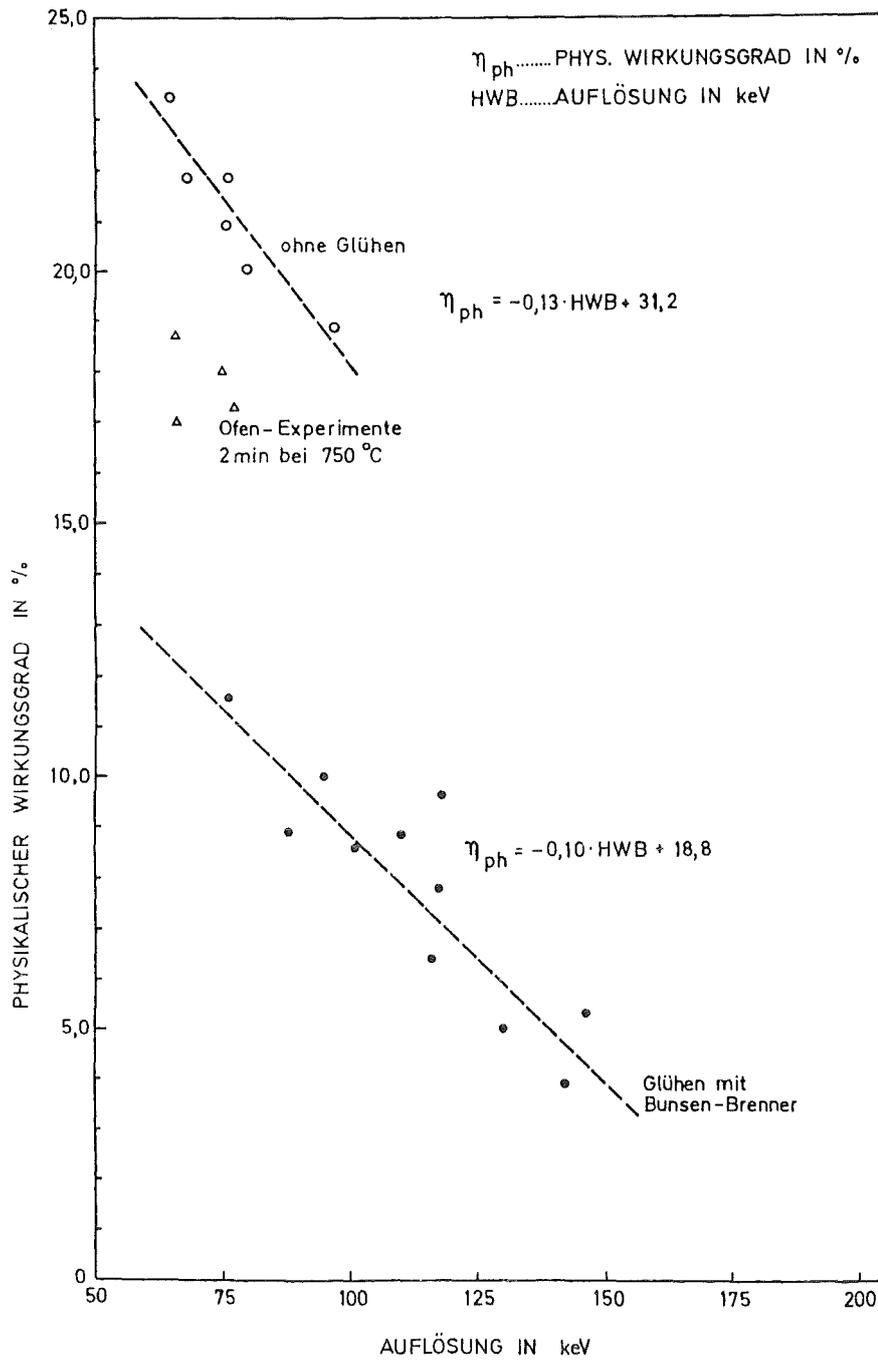


Abb. 2: Abhängigkeit des physikalischen Wirkungsgrades im Flüssigszintillationsspektrometer und der Auflösung im α -Spektrometer

dem Auflösungsvermögen und dem physikalischen Wirkungsgrad gefunden. Der Wirkungsgrad bei Proben, die nicht gegläht wurden, ist wesentlich höher, als der der mit den 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 α -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 einerseits die Umwandlung des Plutoniumhydroxids in das resistenterere 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 2 Minuten, führt zu einem mittleren physikalischen Wirkungsgrad von ca. 18%. Die Ergebnisse sind ausreichend reproduzierbar. Durch α -spektrometrische Messungen vor und nach der Messung im Flüssigszintillationspektrometer 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 LaF_3 wurde eine Alternative zur Herstellung von Plutoniumpräparaten durch Elektrodeposition geschaffen. Zur gereinigten Plutoniumfraktion wird 1 ml H_2SO_4 , 98%ig, 10 ml HNO_3 , 65%ig, und 3-4 Tropfen HF, 40%ig, zugegeben. Es wird eingedampft bis SO_3 -Nebel entstehen. Die Probe wird mit 5 ml H_2O aufgenommen. Die

Lösung wird in einen Polyäthylen-Zentrifugenbecher gebracht, und die Abdampfschale wird mit 5 ml H₂O gewaschen. Die Lösungen werden vereinigt. 2-3 Tropfen Methylrot-Indikator werden zugesetzt. Mit NH₃-Lösung, 25%ig, wird neutralisiert. Mit 0,2 ml HF, 40%ig, und 0,1 ml La³⁺-Lösung, 0,50 mg La³⁺/ml, wird die LaF₃-Fällung eingeleitet. Es wird 30 min unter gelegentlichem Rühren stehengelassen.

Ein nasses Membranfilter von 2,5 cm Durchmesser, Fa. Sartorius, mit SM 11, 3558 N, wird in das Filtrationsgerät der Fa. Sartorius, Typ SM 16306, eingelegt. 5 ml des gut durchgeschüttelten LaF₃-Substrates, bestehend aus 5 mg La(NO₃)₃ in 500 ml 1 M HCl versetzt mit 40 ml 40%iger 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 H₂O und zweimal mit 80%iger wässriger Äthanollösung gewaschen. 15 s nach der zweiten Äthanolwäsche wird das Filter auf ein 2,5 cm Ø 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 La³⁺-Lösung, 0,5 mg La³⁺/ml, das 80%ige 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 α-Spektrometrie verwendet (Abb. 3). Nach der α-Spektrometrie wird das Filter, nach wie vor montiert auf einem Edelstahlplättchen, mit 10 ml Filter-Count und 5 ml Instagel gelöst. Zusätzlich wird 10 mg Al³⁺, 0,1 ml von 0,695 g Al₂(SO₄)₃/ml Lösung zugesetzt, um das kolloidale LaF₃ zu lösen und eine homogene Lösung zu bekommen. Als physikalischen Wirkungsgrad für die Zählung der Pu-241-β-Teilchen erhält man mit dieser Präparationsmethode ca. 28%.

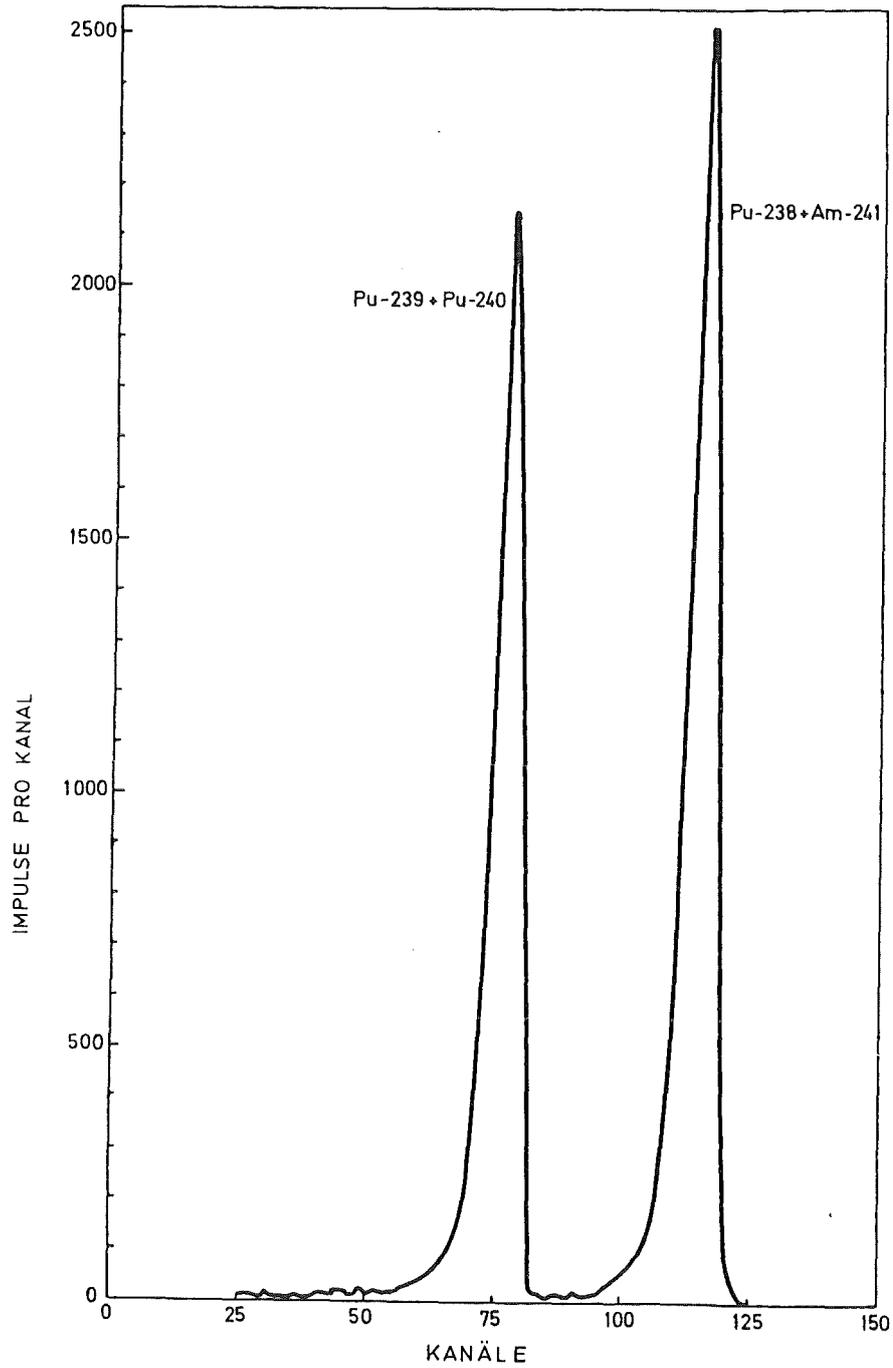


Abb. 3: α -Spektrum eines Plutoniumpräparates, hergestellt durch Mitfällung mit Mikromengen von LaF_3

3.7 Vergleich der Pu-241-Bestimmungsmethoden

Drei Proben aus der Abluft der FERAB vom Februar 1980, Mai 1980 und Juni 1980 wurden zum Vergleich nach der hier beschriebenen Methode, nach der Abtrennungsmethode des nachgebildeten Am-241 und durch Doppelmessung mit mehrjähriger Aufbauzeit untersucht. Die Ergebnisse liegen in Tabelle 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.

Tabelle 2: Ergebnisse des Vergleiches der Flüssigszintillationsspektrometrie, der Am-241-Abtrennung und der doppelten α -Spektrometrie zur Bestimmung von Pu-241.
Probematerial: Abluftfilter, bestaubt in der FERAB

Probenahme 1980	Pu-241-Konzentration in pCi/Probe		
	Flüssigszintillationsspektrometrie	Am-241-Abtrennung	Doppelte α -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. Ergebnisse der Messung der Pu-241-Konzentrationen in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe

4.1 Pu-239+240 und Pu-241 in mit Fallout kontaminierten Bodenproben

Die Plutoniumemissionen des Kernforschungszentrums Karlsruhe und der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe sind außergewöhnlich niedrig. Daher ist der größte Teil des in der Umgebung des Kernforschungszentrums vorhandenen Plutoniums auf den Fallout der Kernwaffenexperimente zurückzuführen. Es war daher von Interesse die Pu-241-Kontaminationen und das Verhältnis Pu-241/Pu-239+240 im Kernwaffenfallout kennenzulernen. Zwei Bodenproben aus Großschloppen, Bayern, wurden zu diesem Zweck auf Plutonium untersucht. Die Bodenproben wurden an einer Stelle genommen, an der eine Beeinflussung durch kerntechnische Anlagen vollständig ausgeschlossen ist. Die Ergebnisse der Analysen sind in Tabelle 3 wiedergegeben. Die Pu-241-Konzentrationen in der obersten Schicht des Bodens liegen zwischen 20 und 50 fCi/g Trockensubstanz und sind damit um den Faktor 10 höher als die Pu-239+240-Konzentrationen. Der Faktor 10 stimmt vorzüglich überein mit den Ergebnissen in [2,3].

Tabelle 3: Pu-239+240- und Pu-241-Konzentrationen in ausschließlich durch Fallout kontaminierten Bodenproben aus Großschloppen, Bayern. 1982

Probe Nr.	Plutoniumkonzentration in fCi/g trocken		Pu-241/Pu-239+240 Aktivitätsverhältnis
	Pu-239+240	Pu-241	
1	4,6 ± 0,5	47 ± 10	10 ± 3
2	4,4 ± 0,6	26 ± 8	6 ± 2

4.2 Plutoniumkonzentrationen in Bodenproben aus der Umgebung des KfK

Die Plutoniumkontamination von Bodenproben wurde primär untersucht, um die Langzeitdepositions geschwindigkeit des Kernwaffenfallout einerseits und die Ablagerungsgeschwindigkeit der aus der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe emittierten plutoniumhaltigen Aerosole zu studieren. Dieser Bericht dient ausschließlich der Dokumentation der Meßergebnisse und bei der Dokumentation wird neben den Pu-238 und den Pu-239+240-Daten besonderes Gewicht auf die Ergebnisse für Pu-241 gelegt. Eine Auswertung der hier dokumentierten Konzentrationsergebnisse wird in einem späteren Bericht erfolgen.

Die Pu-238-Konzentrationen, die in der 2. Hauptwindrichtung gemessen wurden, liegen zwischen 0,14 und 7,6 fCi/g Trockensubstanz. Die Pu-239+240-Konzentrationen liegen zwischen 0,6 und 34 fCi/g Trockensubstanz. Da bei der Messung mit dem Flüssigszintillationsspektrometer eine wesentlich schlechtere Nachweisgrenze als mit den α -Spektrometern erreicht werden kann, liegen die meisten Pu-241-Konzentrationen unter der 3σ -Nachweisgrenze von 80 - 200 fCi/g Trockensubstanz. Mit einer Ausnahme liegen die erhaltenen Meßwerte für Pu-241 zwischen 110 und 160 fCi/g Trockensubstanz. Die Ausnahme stellt eine Bodenprobe dar, welche 1000 m vom WAK-Kamin in der 0 - 5 cm-Schicht des Bodens genommen wurde. Mit 35 pCi Pu-241/g liegt der erhaltene Meßwert um zwei Größenordnungen über den anderen Meßwerten. Auch die Konzentrationen von Pu-239+240 und vor allem von Pu-238 sind erhöht. Eine Nachmessung der Probe bestätigte die gefundenen Daten. Rechnet man die Plutoniumaktivitäten in Massenanteile um, so liegt je nach dem Anteil des Pu-240 an der Summe von Pu-239+240 der Massenanteil des Pu-241 zwischen 45 und 75 % des Gesamtplutoniums. Da in unseren Laboratorien Plutonium dieser Zusammensetzung nie vorhanden war, muß eine Kontamination dieser Probe mit einem heißen Teilchen mit hohem Pu-241-Gehalt angenommen werden.

In den Bodenproben die auf Wiesen oder im Wald entnommen wurden, sind die Plutoniumkonzentrationen in der 0 - 5 cm-Schicht im allgemeinen wesentlich höher als die in der 5 - 20 cm-Schicht. Auf Äckern und neben Wegen entnommene Proben weisen häufig eine weitgehend homogene Verteilung der Pu-Isotope zwischen den beiden Probenarten auf (Tabelle 4 - Tabelle 10).

In den Tabellen 11 - 17 werden die Plutoniumaktivitätsverhältnisse in den gleichen Proben dargestellt. Die Pu-238/Pu-239+240-Verhältnisse liegen zwischen 0,040 und 0,54. Das gleiche Isotopenverhältnis beträgt in der Umwelt in Bodenproben der Nordhalbkugel ohne Beeinflussung durch kerntechnische Anlagen ca. 0,08. Die in diesem Wert eingehenden Plutoniumaktivitäten stammen vom Kernwaffen-Fallout und vom Verglühen einer Isotopenbatterie eines Satelliten im Jahre 1964 [16]. Die Aktivitätsverhältnisse Pu-238/Pu-239+240 entsprechen in den meisten Fällen diesem durch kerntechnische Anlagen nicht beeinflussten Konzentrationsverhältnis; einige wenige Proben müssen allerdings als durch Aktivitätsfreisetzungen durch das Kernforschungszentrum Karlsruhe kontaminiert angesehen werden.

Die Pu-241/Pu-239-240-Aktivitätsverhältnisse liegen um einen Mittelwert von 12, soweit sie nicht unter der Nachweisgrenze liegen bzw. überhaupt aus den Aktivitätskonzentrationen errechenbar waren. Das gleiche Verhältnis liegt in Proben ab 2 000 m bis 10 000 m im Mittel bei 61. Standardabweichungen der Plutoniumaktivitätsverhältnisse wurden nicht in allen Fällen errechnet. Beispiele für die Standardabweichungen der Pu-241/Pu-239+240-Aktivitätsverhältnisse werden in Tabelle 15 wiedergegeben. Die errechneten Standardabweichungen sind relativ groß. Sie reichen allerdings nicht aus um den wesentlichen Unterschied zwischen den Pu-241/Pu-239+240-Aktivitätsverhältnissen in Bodenproben aus der Nähe und in größerem Abstand vom WAK-Kamin zu erklären. Eine Emission des genannten Pu-241 aus dem WAK-Kamin ist sehr unwahrscheinlich, da das Maximum der Konzentration in bodennaher Luft zwischen 200 und 500 m vom Kamin auftreten sollte. Eine

Erklärung der beobachteten Aktivitätsverhältnisse kann zur Zeit nicht gegeben werden.

Tabelle 4: Plutoniumkonzentrationen in Bodenproben; 2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
Probenahme: 18.12.- 23.12.1979; 100 m vom WAK-Kamin

Probe Nr.	Bodenschicht in cm	Plutoniumkonzentration in fCi/g trocken		
		Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
1	0 - 5	$0,7 \pm 0,1$	$8,2 \pm 0,6$	110 ± 40
	5 - 20	$0,28 \pm 0,08$	$4,8 \pm 0,4$	≤ 140
2	0 - 5	$4,4 \pm 0,4$	32 ± 2	300 ± 60
	5 - 20	$0,8 \pm 0,4$	$7,8 \pm 0,6$	≤ 120
3	0 - 5	$3,9 \pm 0,4$	34 ± 2	240 ± 50
	5 - 20	$0,6 \pm 0,2$	$4,6 \pm 0,4$	≤ 150
4	0 - 5	$2,4 \pm 0,4$	23 ± 1	120 ± 30
	5 - 20	$0,6 \pm 0,1$	$2,4 \pm 0,2$	≤ 130
5	0 - 5	$1,5 \pm 0,6$	26 ± 1	340 ± 80
	5 - 20	$1,8 \pm 0,3$	27 ± 1	250 ± 60
6	0 - 5	$\leq 0,6$	$3,5 \pm 0,4$	≤ 120
	5 - 20	$\leq 0,5$	$5,3 \pm 0,9$	≤ 660
7	0 - 5	$2,3 \pm 0,5$	24 ± 1	320 ± 80
	5 - 20	$0,4 \pm 0,2$	$2,9 \pm 0,3$	≤ 140

Tabelle 5: Plutoniumkonzentrationen in Bodenproben; 2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
 Probenahme am 13.12.1979; 200 m vom WAK-Kamin

Probe Nr.	Bodenschicht in cm	Plutoniumkonzentration in fCi/g trocken		
		Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
1	0 - 5	$\leq 0,6$	$1,1 \pm 0,2$	≤ 110
	5 - 20	$0,4 \pm 0,2$	$4,8 \pm 0,3$	≤ 100
2	0 - 5	$2,4 \pm 0,3$	29 ± 1	190 ± 50
	5 - 20	$0,9 \pm 0,4$	$5,0 \pm 0,4$	≤ 120
3	0 - 5	$1,8 \pm 0,2$	19 ± 1	--
	5 - 20	$\leq 0,7$	$3,0 \pm 0,3$	≤ 120
4	0 - 5	$3,4 \pm 0,3$	17 ± 1	250 ± 60
	5 - 20	$\leq 0,5$	$2,0 \pm 0,2$	≤ 94
5	0 - 5	$2,6 \pm 0,4$	32 ± 3	370 ± 140
	5 - 20	$\leq 0,7$	$5,3 \pm 0,5$	≤ 140
6	0 - 5	$1,7 \pm 0,2$	$5,5 \pm 0,4$	110 ± 40
	5 - 20	$\leq 0,2$	$0,9 \pm 0,2$	≤ 140
7	0 - 5	$1,0 \pm 0,4$	12 ± 1	150 ± 60
	5 - 20	$0,6 \pm 0,1$	$1,7 \pm 0,2$	≤ 110

Tabelle 6: Plutoniumkonzentrationen in Bodenproben;
2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
Probenahme: 14.12.1979; 500 m vom WAK-Kamin

Probe Nr.	Bodenschicht in cm	Plutoniumkonzentration in fCi/g trocken		
		Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
1	0 - 5	$0,9 \pm 0,2$	11 ± 1	140 ± 50
	5 - 20	$0,6 \pm 0,1$	14 ± 1	≤ 110
2	0 - 5	$1,0 \pm 0,3$	22 ± 1	110 ± 30
	5 - 20	≤ 1	$3,1 \pm 0,3$	≤ 160
3	0 - 5	$\leq 0,6$	$4,6 \pm 0,4$	≤ 150
	5 - 20	$0,2 \pm 0,1$	$1,7 \pm 0,2$	≤ 160
4	0 - 5	≤ 1	$3,8 \pm 0,3$	≤ 120
	5 - 20	≤ 1	$1,4 \pm 0,2$	≤ 130
5	0 - 5	$0,9 \pm 0,2$	12 ± 1	150 ± 50
	5 - 20	$1,2 \pm 0,3$	$7,4 \pm 0,5$	220 ± 60
6	0 - 5	$1,3 \pm 0,2$	22 ± 1	170 ± 4
	5 - 20	$\leq 0,8$	$2,8 \pm 0,3$	≤ 160
7	0 - 5	$1,5 \pm 0,3$	$9,2 \pm 0,7$	≤ 320
	5 - 20	$\leq 0,9$	$1,4 \pm 0,2$	≤ 120

Tabelle 7: Plutoniumkonzentrationen in Bodenproben;
 2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
 Probenahme: 5.12. und 6.12.1979; 1000 m vom WAK-Kamin

Probe Nr.	Bodenschicht in cm	Plutoniumkonzentration in fCi/g trocken		
		Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
1	0 - 5	$0,4 \pm 0,1$	$9,3 \pm 0,8$	≤ 210
	5 - 20	$\leq 0,2$	$3,0 \pm 0,3$	≤ 240
2	0 - 5	$7,6 \pm 1,4$	25 ± 3	35000 ± 6500
	5 - 20	$\leq 1,1$	$48 \pm 0,4$	≤ 150
3	0 - 5	$2,0 \pm 0,7$	12 ± 1	≤ 150
	5 - 20	$1,0 \pm 0,3$	$9,2 \pm 0,6$	≤ 200
4	0 - 5	$1,7 \pm 0,3$	28 ± 1	240 ± 50
	5 - 20	$0,14 \pm 0,07$	$2,4 \pm 0,2$	≤ 120
5	0 - 5	$2,9 \pm 0,3$	26 ± 1	270 ± 50
	5 - 20	$1,6 \pm 0,2$	$4,7 \pm 0,4$	≤ 130
6	0 - 5	$2,5 \pm 0,4$	$6,8 \pm 0,4$	≤ 100
	5 - 20	≤ 1	$3,8 \pm 0,4$	≤ 170

Tabelle 8: Plutoniumkonzentrationen in Bodenproben;
2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
Probenahme: 22.11.1979; 2000 m vom WAK-Kamin

Probe Nr.	Bodenschicht in cm	Plutoniumkonzentration in fCi/g trocken		
		Pu-239	Pu-239+240	Pu-241
1	0 - 5	≤ 1	$4,2 \pm 0,5$	290 ± 90
	5 - 20	$0,5 \pm 0,1$	$5,1 \pm 0,5$	150 ± 60
2	0 - 5	$\leq 0,8$	$5,0 \pm 0,4$	250 ± 70
	5 - 20	$\leq 0,5$	$5,1 \pm 0,5$	≤ 130
3	0 - 5	$0,8 \pm 0,4$	$8,3 \pm 0,7$	≤ 160
	5 - 20	$0,3 \pm 0,1$	$6,1 \pm 0,4$	170 ± 60
4	0 - 5	≤ 1	$3,4 \pm 0,5$	≤ 220
	5 - 20	$\leq 0,6$	$4,3 \pm 0,3$	250 ± 70
5	0 - 5	$0,8 \pm 0,1$	$4,7 \pm 0,3$	≤ 80
	5 - 20	$0,6 \pm 0,1$	$3,5 \pm 0,3$	440 ± 70
6	0 - 5	$1,4 \pm 0,2$	14 ± 1	250 ± 70
	5 - 20	$\leq 0,6$	$2,2 \pm 0,2$	≤ 120

Tabelle 9: Plutoniumkonzentrationen in Bodenproben;
2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
Probenahme: 16.11.79; 5000 m vom WAK-Kamin

Probe-Nr.	Bodenschicht in cm	Plutoniumkonzentration in fCi/g trocken		
		Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
1	0 - 5	$\leq 0,7$	$1,6 \pm 0,2$	200 ± 50
	5 - 20	$\leq 0,1$	$0,6 \pm 0,1$	≤ 140
2	0 - 5	$0,4 \pm 0,1$	$5,8 \pm 0,5$	460 ± 70
	5 - 20	$\leq 0,6$	$6,9 \pm 0,4$	210 ± 70
3	0 - 5	≤ 1	$5,2 \pm 0,7$	≤ 230
	5 - 20	$\leq 0,7$	$5,3 \pm 0,4$	200 ± 70
4	0 - 5	$0,24 \pm 0,09$	$6,0 \pm 0,4$	≤ 120
	5 - 20	$\leq 0,5$	$4,6 \pm 0,4$	220 ± 60

Tabelle 10: Plutoniumkonzentrationen in Bodenproben;
2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
Probenahme: 15.11.1979; 10 000 m vom WAK-Kamin

Probe Nr.	Bodenschicht in cm	Plutoniumkonzentration in fCi/g trocken		
		Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
1	0 - 5	$0,18 \pm 0,08$	$4,4 \pm 0,4$	250 ± 60
	5 - 20	$\leq 0,4$	$4,2 \pm 0,3$	300 ± 80
2	0 - 5	$\leq 0,4$	$5,3 \pm 0,4$	150 ± 50
	5 - 20	$\leq 0,3$	$5,5 \pm 0,7$	710 ± 140
3	0 - 5	$\leq 0,3$	$5,0 \pm 0,4$	≤ 100
	5 - 20	$0,22 \pm 0,08$	$4,2 \pm 0,3$	≤ 120
4	0 - 5	$\leq 0,5$	$4,1 \pm 0,3$	≤ 110
	5 - 20	$0,8 \pm 0,1$	$4,1 \pm 0,3$	≤ 130

Tabelle 11: Plutoniumaktivitätsverhältnisse in Bodenproben;
 2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
 Probenahme: 18.12.- 23.12.1979; 100 m vom WAK-Kamin

Probe Nr.	Bodenschicht in cm	Plutoniumaktivitätsverhältnisse		
		Pu-238/Pu-239+240	Pu-241/Pu-239+240	Pu-241/Pu-238
1	0 - 5	0,085	13	160
	5 - 20	0,060	≤30	≤480
2	0 - 5	0,14	9,6	69
	5 - 20	0,10	≤20	≤150
3	0 - 5	0,11	7,0	62
	5 - 20	0,14	≤30	≤230
4	0 - 5	0,11	4,9	47
	5 - 20	0,25	≤50	≤210
5	0 - 5	0,058	13	230
	5 - 20	0,059	8,3	140
6	0 - 5	≤0,2	≤30	-
	5 - 20	≤0,1	≤170	-
7	0 - 5	0,077	14	180
	5 - 20	0,22	≤70	≤320

Tabelle 12: Plutoniumaktivitätsverhältnisse in Bodenproben;
2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
Probenahme: 13.12.1979; 200 m vom WAK-Kamin

Probe Nr.	Bodenschicht in cm	Plutoniumaktivitätsverhältnisse		
		Pu-238/Pu-239+240	Pu-241/Pu-239+240	Pu-241/Pu-238
1	0 - 5	0,54	≤90	-
	5 - 20	0,095	≤30	≤280
2	0 - 5	0,063	6,7	110
	5 - 20	0,22	≤30	≤140
3	0 - 5	0,1	-	-
	5 - 20	0,37	≤60	-
4	0 - 5	0,13	16	130
	5 - 20	≤0,3	≤50	-
5	0 - 5	0,056	12	210
	5 - 20	≤0,7	≤40	-
6	0 - 5	0,31	21	66
	5 - 20	≤0,2	≤160	-
7	0 - 5	0,083	13	150
	5 - 20	0,36	≤60	≤170

Tabelle 13: Plutoniumaktivitätsverhältnisse in Bodenproben;
 2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
 Probenahme: 14.12.1979; 500 m vom WAK-Kamin

Probe Nr.	Bodenschicht in cm	Plutoniumaktivitätsverhältnisse		
		Pu-238/Pu-239+240	Pu-241/Pu-239+240	Pu-241/Pu-238
1	0 - 5	0,081	14	170
	5 - 20	0,045	≤8	≤170
2	0 - 5	0,046	5,0	110
	5 - 20	≤0,4	≤50	-
3	0 - 5	≤0,1	≤30	-
	5 - 20	0,14	≤100	≤710
4	0 - 5	≤0,3	≤30	-
	5 - 20	≤0,8	≤90	-
5	0 - 5	0,077	13	160
	5 - 20	0,16	30	190
6	0 - 5	0,059	7,7	130
	5 - 20	≤0,3	60	-
7	0 - 5	0,091	≤40	≤410
	5 - 20	≤0,7	≤80	-

Tabelle 14: Plutoniumaktivitätsverhältnisse in Bodenproben;
 2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
 Probenahme: 5.12. und 6.12.1979; 1000 m vom WAK-Kamin

Probe Nr.	Bodenschicht in cm	Plutoniumaktivitätsverhältnisse		
		Pu-238/Pu-239+240	Pu-241/Pu-239+240	Pu-241/Pu-238
1	0 - 5	0,043	≤20	≤510
	5 - 20	≤0,05	≤80	-
2	0 - 5	0,31	1400	4700
	5 - 20	≤0,2	≤30	-
3	0 - 5	0,17	≤10	≤73
	5 - 20	0,11	≤20	≤200
4	0 - 5	0,060	8,4	140
	5 - 20	0,056	≤50	≤200
5	0 - 5	0,11	11	95
	5 - 20	0,33	≤30	≤81
6	0 - 5	0,36	≤20	≤41
	5 - 20	≤0,3	≤40	-

Tabelle 15: Plutoniumaktivitätsverhältnisse in Bodenproben;
 2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
 Probenahme: 22.11.1979; 2000 m vom WAK-Kamin

Probe Nr.	Bodenschicht in cm	Plutoniumaktivitätsverhältnisse		
		Pu-238/Pu-239+240	Pu-241/Pu-239+240	Pu-241/Pu-238
1	0 - 5	$\leq 0,2$	69 ± 23	≤ 290
	5 - 20	0,099	30 ± 12	310
2	0 - 5	$\leq 0,2$	50 ± 15	≤ 330
	5 - 20	$\leq 0,1$	≤ 30	-
3	0 - 5	0,10	≤ 20	≤ 190
	5 - 20	0,043	27 ± 10	640
4	0 - 5	$\leq 0,3$	≤ 70	-
	5 - 20	$\leq 0,1$	58 ± 17	≤ 400
5	0 - 5	0,17	≤ 20	≤ 110
	5 - 20	0,17	128 ± 23	760
6	0 - 5	0,11	18	170
	5 - 20	$\leq 0,3$	≤ 60	-

Tabelle 16: Plutoniumaktivitätsverhältnisse in Bodenproben;
2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
Probenahme: 16.11.1979; 5000 m vom WAK-Kamin

Probe Nr.	Bodenschicht in cm	Plutoniumaktivitätsverhältnisse		
		Pu-238/Pu-239+240	Pu-241/Pu-239+240	Pu-241/Pu-238
1	0 - 5	≤0,5	120	≤280
	5 - 20	≤0,1	≤240	-
2	0 - 5	0,069	80	1200
	5 - 20	≤0,08	30	≤350
3	0 - 5	≤0,2	≤40	-
	5 - 20	≤0,1	38	≤280
4	0 - 5	0,040	≤20	≤520
	5 - 20	≤0,1	48	≤420

Tabelle 17: Plutoniumaktivitätsverhältnisse in Bodenproben;
2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
Probenahme 15.11.1979; 10 000 m vom WAK-Kamin

Probe Nr.	Bodenschicht in cm	Plutoniumaktivitätsverhältnisse		
		Pu-238/Pu-239+240	Pu-241/Pu-239+240	Pu-241/Pu-238
1	0 - 5	0,040	57	1400
	5 - 20	≤0,09	70	≤750
2	0 - 5	≤0,07	29	≤400
	5 - 20	≤0,06	130	≤2200
3	0 - 5	≤0,06	≤20	-
	5 - 20	0,053	≤30	≤550
4	0 - 5	≤0,1	≤30	-
	5 - 20	0,19	≤30	≤160

4.3 Plutoniumkonzentrationen in Proben aus Tiefenprofilen in Boden

In Tabelle 18 wird ein weitgehend ungestörtes Tiefenprofil mit der typischen raschen Abnahme der Plutoniumkonzentration mit zunehmender Tiefe im Boden wiedergegeben. Es gleicht weitgehend dem Tiefenprofil in Tabelle 20. In beiden Fällen sind die höchsten Pu-241-Konzentrationen in der Laubschicht und in der der Laubschicht folgenden Erdschicht. Das in Tabelle 19 wiedergegebene Tiefenprofil ist wesentlich flacher; Pu-241 wurde in keiner Schicht über der Nachweisgrenze festgestellt.

In den Tabelle 21 - 23 werden die Plutoniumaktivitätsverhältnisse der Tiefenprofile im Boden wiedergegeben. Die Verhältnisse Pu-238/Pu-239+240 und Pu-241/Pu-239+240 der Laubschichten bestätigen eine Kontamination durch mit der Abluft der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe emittiertes Plutonium. In allen anderen Proben ist eine eindeutige Aussage nicht möglich.

Tabelle 18: Tiefenprofil des Plutoniums im Boden;
2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
Probenahme: 21.12.1979; 50 m vom WAK-Kamin

Tiefe in cm	Plutoniumkonzentration in fCi/g trocken		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
Laub	21 ± 2	29 ± 2	1200 ± 200
0 - 5	1,6 ± 0,2	16 ± 1	190 ± 40
5 - 10	0,6 ± 0,1	4,8 ± 0,4	≤120
10 - 15	≤0,1	2,2 ± 0,3	≤140
15 - 20	0,6 ± 0,2	1,5 ± 0,3	≤110
20 - 25	0,3 ± 0,2	2,4 ± 0,4	≤110
25 - 30	≤0,4	2,5 ± 0,3	≤160

Tabelle 19: Tiefenprofil des Plutoniums im Boden;
2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
Probenahme: 9.4.1980, 10 000 m vom WAK-Kamin

Tiefe in cm	Plutoniumkonzentration in fCi/g trocken		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
0 - 5	0,7 ± 0,1	14 ± 1	≤100
5 - 10	≤0,5	11 ± 1	≤130
10 - 15	0,4 ± 0,1	8,5 ± 0,6	≤150
15 - 20	0,24 ± 0,08	8,3 ± 0,5	≤80
20 - 25	≤0,4	5,0 ± 0,4	≤110
25 - 30	≤0,4	3,3 ± 0,3	≤140

Tabelle 20: Tiefenprofil des Plutoniums im Boden;
2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
Probenahme: 2.4.1981; 100 m vom WAK-Kamin

Tiefe in cm	Plutoniumkonzentration in fCi/g trocken		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
Laub	57 ± 6	80 ± 9	2600 ± 500
0 - 3	25 ± 2	190 ± 8	240 ± 40
3 - 6	0,7 ± 0,3	12 ± 1	≤110
6 - 9	≤0,8	3,4 ± 0,3	≤190
9 - 12	≤0,7	1,3 ± 0,2	≤100
12 - 15	≤0,5	1,9 ± 0,2	≤90
15 - 18	≤0,5	1,9 ± 0,2	≤150
18 - 21	≤0,7	1,6 ± 0,2	≤140
21 - 24	≤0,5	2,4 ± 0,2	≤110
24 - 27	≤0,4	1,0 ± 0,2	≤120
27 - 30	0,9 ± 0,4	2,6 ± 0,2	≤130

Tabelle 21: Plutoniumaktivitätsverhältnisse eines Tiefenprofils im Boden;
2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
Probenahme 21.12.1979; 50 m vom WAK-Kamin

Tiefe in cm	Plutoniumaktivitätsverhältnisse		
	Pu-238/Pu-239+240	Pu-241/Pu-239+240	Pu-241/Pu-238
Laub	0,72	41	55
0 - 5	0,10	12	120
5 - 10	0,13	≤30	≤190
10 - 15	≤0,05	≤60	-
15 - 20	0,39	≤70	≤190
20 - 25	0,14	≤40	≤320
25 - 30	≤0,2	≤60	-

Tabelle 22: Plutoniumaktivitätsverhältnisse eines Tiefenprofils im Boden;
2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
Probenahme: 9.4.1980; 10 000 m vom WAK-Kamin

Tiefe in cm	Plutoniumaktivitätsverhältnisse		
	Pu-238/Pu-239+240	Pu-241/Pu-239+240	Pu-241/Pu-238
0 - 5	0,050	≤7	≤140
5 - 10	≤0,04	≤10	-
10 - 15	0,050	≤20	≤350
15 - 20	0,029	≤9	≤330
20 - 25	≤0,07	≤20	-
25 - 30	≤0,1	≤40	-

Tabelle 23: Plutoniumaktivitätsverhältnisse eines Tiefenprofils im Boden;
 2. Hauptwindrichtung von der WAK aus gesehen.
 Probenahme: 2.4.1981; 100 m vom WAK-Kamin

Tiefe in cm	Plutoniumaktivitätsverhältnisse		
	Pu-238/Pu-239+240	Pu-241/Pu-239+240	Pu-241/Pu-238
Laub	0,71	33	47
0 - 3	0,13	1,3	9,8
3 - 6	0,060	≤9	≤140
6 - 9	≤0,2	≤60	-
9 - 12	≤0,5	≤80	-
12 - 15	≤0,2	≤50	-
15 - 18	≤0,3	≤80	-
18 - 21	≤0,5	≤90	-
21 - 24	≤0,2	≤50	-
24 - 27	≤0,4	≤110	-
27 - 30	0,36	≤50	≤140

4.4 Plutoniumkonzentrationen in Laub- und Pflanzenproben

Abgefallenes Laub und Boden aus der Pflanzendecke des Bodens wurden an vielen Positionen gesammelt, an denen Bodenproben genommen wurden. Der Plutoniumgehalt dieser Laub- und Pflanzenproben wird in Tabelle 24 wiedergegeben. In Tabelle 25 sind die Plutoniumaktivitätsverhältnisse der gleichen Proben angegeben. Die höchsten Plutoniumkonzentrationen wurden in 100 und 200 m Entfernung gemessen. Direkt in der zweiten Hauptwindrichtung in 200 m Entfernung wurden die größten Pu-238-, Pu-239+240- und Pu-241-Konzentrationen festgestellt. Die entsprechend der Langzeitausbreitung der Aerosole erwartete Gasverteilung in den Plutoniumanlagerungen auf Laub- und Pflanzenproben in den einzelnen beprobten Kreisringsektoren sind nicht besonders ausgeprägt. Besser erkennbar sind die erwarteten Profile unter Benutzung der Aktivitätsverhältnisse Pu-238/Pu-239+240 und Pu-241/Pu-239+240. Es darf dabei von der Tatsache ausgegangen werden, daß der Pu-238- und der Pu-241-Gehalt in den Aerosolemissionen der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe relativ zu Pu-239+240-Gehalt wesentlich höher ist, als in entsprechenden Falloutproben. Alle Pu-241/Pu-239+240-Aktivitätsverhältnisse sind höher als die in Falloutproben erwarteten.

Tabelle 24: Plutoniumgehalt von Laub- und Pflanzenproben von der Bodenoberfläche.
Probenahme vom 5.12. bis 23.12.1979

Probenahme		Plutoniumkonzentration in fCi/g trocken		
Probe Nr.	Abstand von WAK in m	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
1	100	46 ± 3	140 ± 10	4200 ± 700
2	"	32 ± 2	50 ± 3	1300 ± 200
3	"	26 ± 2	29 ± 2	1100 ± 200
4	"	21 ± 1	30 ± 2	900 ± 160
5	"	22 ± 1	34 ± 2	1300 ± 300
6	"	28 ± 1	41 ± 2	1400 ± 200
7	"	22 ± 2	39 ± 2	1100 ± 200
1	200	17 ± 1	37 ± 2	1500 ± 300
2	"	14 ± 1	26 ± 2	1200 ± 300
3	"	21 ± 2	31 ± 2	1600 ± 300
4	"	140 ± 9	150 ± 10	8100 ± 1500
5	"	33 ± 2	41 ± 3	2500 ± 600
6	"	2,2 ± 0,3	7,7 ± 0,6	≤140
7	"	45 ± 3	63 ± 4	1600 ± 200
2	500	6,5 ± 0,7	20 ± 2	400 ± 120
3	"	≤2,4	5,7 ± 0,9	≤240
4	"	6,7 ± 0,6	13 ± 1	370 ± 80
5	"	10 ± 1	24 ± 2	690 ± 130
6	"	22 ± 2	35 ± 2	350 ± 80
7	"	34 ± 2	33 ± 2	970 ± 210
2	1000	58 ± 3	69 ± 3	1600 ± 300
3	"	49 ± 3	61 ± 4	1600 ± 300
4	"	7,3 ± 0,5	14 ± 1	280 ± 50
5	"	9,7 ± 1,0	25 ± 2	≤370

Tabelle 25: Plutoniumaktivitätsverhältnisse von Laub- und Pflanzenproben von der Bodenoberfläche.
Probenahme vom 5.12. bis 23.12.1979

Probenahme Probe Nr.	Abstand von WAK in m	Plutoniumaktivitätsverhältnisse		
		Pu-238/Pu-239+240	Pu-241/Pu-239+240	Pu-241/Pu-238
1	100	0,34	31	90
2	"	0,64	26	40
3	"	0,92	40	43
4	"	0,70	30	43
5	"	0,66	37	56
6	"	0,70	36	51
7	"	0,57	28	49
1	200	0,47	41	87
2	"	0,55	47	85
3	"	0,70	53	76
4	"	0,93	53	57
5	"	0,81	60	75
6	"	0,27	≤20	≤70
7	"	0,72	25	35
2	500	0,31	20	65
3	"	≤0,4	≤40	-
4	"	0,52	30	56
5	"	0,43	29	69
6	"	0,63	10	16
7	"	1,0	30	29
2	1000	0,84	24	28
3	"	0,80	26	33
4	"	0,54	20	38
5	"	0,39	≤20	≤40

4.5 Plutoniumkonzentrationen im Altrheinwasser

Ziel der Messung der Plutoniumkonzentrationen im Altrheinwasser oberhalb und unterhalb der Einleitung der Abwässer des Kernforschungszentrums Karlsruhe war die Untersuchung der Verdünnungs- und Sedimentationsmechanismen im Altrhein [19 -21]. In diesem Bericht erfolgt ausschließlich die Dokumentation der gemessenen Pu-238-, Pu-239+240- und Pu-241-Konzentrationen. Die radioökologische Auswertung des Datenmaterials erfolgt in einem getrennten Bericht.

In den Tabellen 26 - 33 sind die Plutoniumkonzentrationen getrennt nach gelöstem Plutonium, an Schwebstoffen gebundenem Plutonium und nach Gesamtplutonium aufgelistet. In Tabelle 26, 750 m oberhalb der Einleitung werden typische Falloutkonzentrationen dargestellt. Bereits in Tabelle 27, 250 m oberhalb der Einleitung ist ein Einfluß des Plutoniums aus dem Abwasser erkennbar. In den Tabellen 28 - 33 sind die Konzentrationswerte unterhalb der Abwassereinleitung des KfK wiedergegeben. Für Pu-238 wurden Konzentrationen zwischen 0,6 und 2000 fCi/l gemessen, für Pu-239+240 Werte zwischen 1,4 und 2300 fCi/l und Pu-241 Werte zwischen <100 und 162000 fCi/l. Die angegebenen Höchstwerte stammen aus einer Probe; es wird angenommen, daß in der Probe, die zwischen dem 31.12.1979 und 7.1.1980 3500 m unterhalb der Einleitung genommen wurde ein versehentliches Ansaugen von aufgewirbelten Sedimenten zur massiven Kontamination der Schwebstoff-Fraktion geführt hat.

Die hohen Schwankungen der gemessenen Konzentrationswerte resultieren teilweise aus den sehr unterschiedlichen Konzentrationen im abgegebenen Abwasser, aus der nichtkontinuierlichen Abgabe der Endbecken, aus der sehr unterschiedlichen Wasserführung im Altrhein und auf starke Unterschiede im Bewuchs während des Jahresverlaufs.

In Tabelle 34 wurden die Aktivitätsverhältnisse der Plutoniumiso-

tope dargestellt. Aktivitätsverhältnisse wurden nur wiedergegeben, wenn die Meßwerte für Pu-238, Pu-239+240 und für Pu-241 über der Nachweisgrenze lagen. Es überrascht daher nicht, daß das Pu-238/Pu-239+240-Verhältnis zwischen 0,43 und 1,6 liegt und damit eine eindeutige Herkunft der angegebenen Proben aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe dokumentiert. Das Pu-241/Pu-239+240 Verhältnis liegt zwischen 9,2 und 360 mit einem Mittelwert von 56. Auch hier also gegenüber den Fallout-Daten nennenswert erhöhte Verhältnisse. Der Mittelwert des genannten Aktivitätsverhältnisses entspricht weitgehend dem Mittelwert der beimontatlichen Abwassermessungen gefunden wurde [22,23].

Tabelle 26: Plutoniumkonzentrationen im Altrhein;
750 m oberhalb der Abwassereinleitung des KfK

Probenahme von bis	Aktivitätskonzentration in fCi/l		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
31.3.- 5.5.80			
gelöst	3,1 ± 0,4	3,8 ± 0,4	≤120
adsorbiert	5,3 ± 0,4	11 ± 0,4	650 ± 120
gesamt	8,4 ± 0,8	15 ± 1	650 ± 120
5.5.- 2.6.80			
gelöst	7,2 ± 0,6	9,0 ± 0,6	290 ± 70
adsorbiert	1,1 ± 0,2	1,9 ± 0,3	≤130
gesamt	8,3 ± 0,8	11 ± 1	290 ± 70
2.6.-16.6.80			
gelöst	1,6 ± 0,3	1,0 ± 0,3	-
adsorbiert	1,1 ± 0,4	1,4 ± 0,4	-
gesamt	2,7 ± 0,7	2,4 ± 0,7	-

Tabelle 27: Plutoniumkonzentrationen im Altrhein;
250 m oberhalb der Abwassereinleitung des KfK

Probenahme von bis	Aktivitätskonzentration in fCi/l		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
3. 9.- 1.10.79 gelöst	≤ 3	$1,1 \pm 0,4$	-
1.10.- 5.11.79 gelöst	≤ 1	$0,7 \pm 0,3$	-
5.11.- 3.12.79 gelöst adsorbiert gesamt	≤ 1 6 ± 2 6 ± 2	$1,4 \pm 0,3$ 13 ± 2 14 ± 2	- - -
3.12.-31.12.79 gelöst adsorbiert gesamt	$0,6 \pm 0,3$ 29 ± 4 30 ± 4	$0,8 \pm 0,3$ 39 ± 4 40 ± 4	- ≤ 1300 -
31.12.79-7.1.80 gelöst adsorbiert gesamt	12 ± 5 ≤ 2 12 ± 5	14 ± 3 10 ± 2 24 ± 5	- - -
4. 2.- 3. 3.80 gelöst adsorbiert gesamt	≤ 2 ≤ 1 -	$2,0 \pm 0,4$ $6,0 \pm 0,7$ 8 ± 1	- ≤ 200 -
3. 3.-31. 3.80 gelöst adsorbiert gesamt	8 ± 1 $1,8 \pm 0,7$ 10 ± 2	10 ± 1 9 ± 1 19 ± 2	≤ 1200 ≤ 410 -
31. 3.- 5. 5.80 gelöst adsorbiert gesamt	$5,9 \pm 0,7$ $0,8 \pm 0,3$ 7 ± 1	$8,4 \pm 0,8$ $3,7 \pm 0,7$ 12 ± 1	- ≤ 490 -
5. 5.- 2. 6.80 gelöst adsorbiert gesamt	22 ± 2 $0,9 \pm 0,3$ 23 ± 2	23 ± 2 $1,7 \pm 0,3$ 25 ± 2	480 ± 130 - -
2. 6.-30.6.80 gelöst adsorbiert gesamt	$2,0 \pm 0,9$ $0,5 \pm 0,2$ 3 ± 1	$2,9 \pm 0,5$ $0,8 \pm 0,2$ $3,7 \pm 0,7$	- - -

Tabelle 28: Plutoniumkonzentrationen im Altrhein;
20 m nach der Abwassereinleitung des KfK

Probenahme von bis	Aktivitätskonzentration in fCi/l		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
1. 6.-30. 6.79			
gelöst	5,9 ± 0,8	9 ± 1	≤410
adsorbiert	5 ± 2	12 ± 2	850 ± 220
gesamt	11 ± 3	21 ± 3	850 ± 220
2. 7.-30. 7.79			
gelöst	1,5 ± 0,5	1,1 ± 0,3	-
adsorbiert	0,7 ± 0,3	0,9 ± 0,3	-
gesamt	2,2 ± 0,8	2,0 ± 0,6	-
30. 7.- 3. 9.79			
gelöst	1,5 ± 0,4	≤2	-
adsorbiert	1,7 ± 0,7	1,4 ± 0,5	-
gesamt	3 ± 1	1,4 ± 0,5	-
3. 9.- 1.10.79			
gelöst	≤0,4	5,7 ± 0,8	-
adsorbiert	34 ± 3	21 ± 3	470 ± 130
gesamt	34 ± 3	27 ± 4	-
1.10.- 5.11.79			
gelöst	≤3	4 ± 1	-
adsorbiert	440 ± 30	440 ± 30	26000 ± 7000
gesamt	440 ± 30	440 ± 30	-
5.11.- 3.12.79			
gelöst	1,0 ± 0,3	1,4 ± 0,3	-
adsorbiert	22 ± 3	28 ± 3	≤510
gesamt	23 ± 3	29 ± 3	-
3.12.- 31.12.79			
gelöst	1,5 ± 0,4	2,4 ± 0,4	-
adsorbiert	8 ± 1	11 ± 2	≤240
gesamt	10 ± 1	13 ± 2	-

Fortsetzung Tabelle 28:

Plutoniumkonzentrationen im Altrhein;
20 m nach der Abwassereinleitung des KfK

Probenahme von bis	Aktivitätskonzentration in fCi/l		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
31.12.79-7.1.80			
gelöst	11 ± 3	12 ± 5	-
adsorbiert	8 ± 2	12 ± 2	-
gesamt	19 ± 5	24 ± 7	-
4. 2.- 3. 3.80			
gelöst	1,5 ± 0,5	1,5 ± 0,3	-
adsorbiert	3,1 ± 0,8	5,9 ± 0,7	-
gesamt	5 ± 1	7 ± 1	-
3. 3.-31. 3.80			
gelöst	4,1 ± 0,7	6,1 ± 0,9	-
adsorbiert	34 ± 2	40 ± 2	3900 ± 1900
gesamt	38 ± 3	46 ± 3	-
31. 3.- 5. 5.80			
gelöst	18 ± 1	31 ± 2	-
adsorbiert	170	190	20000 ± 10000
gesamt	190	220	-
5. 5.- 2. 6.80			
gelöst	5,9 ± 0,8	9 ± 1	≤410
adsorbiert	150 ± 10	170 ± 10	11000 ± 4000
gesamt	160 ± 10	180 ± 10	11000 ± 4000
2. 6.-30. 6.80			
gelöst	7 ± 1	8 ± 1	≤300
adsorbiert	100 ± 10	190 ± 10	9200 ± 3900
gesamt	110 ± 10	200 ± 10	9200 ± 3900

Tabelle 29: Plutoniumkonzentrationen im Altrhein;
600 m nach der Abwassereinleitung des KfK

Probenahme von bis	Aktivitätskonzentration in fCi/l		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
1. 6.-30.6.79			
gelöst	$\leq 0,9$	$0,8 \pm 0,2$	-
adsorbiert	≤ 4	$2,6 \pm 0,8$	-
gesamt	-	3 ± 1	-
2.7.-30.7.79			
gelöst	≤ 2	$0,9 \pm 0,3$	-
adsorbiert	$1,8 \pm 0,4$	$1,0 \pm 0,3$	-
gesamt	$1,8 \pm 0,4$	$1,9 \pm 0,6$	-
30. 7.- 3. 9.79			
gelöst	≤ 2	$1,8 \pm 0,6$	-
adsorbiert	7 ± 1	$8,7 \pm 0,9$	≤ 540
gesamt	7 ± 1	11 ± 2	-
3. 9.- 1.10.79			
gelöst	4 ± 1	$1,2 \pm 0,5$	-
adsorbiert	27 ± 2	27 ± 2	≤ 460
gesamt	31 ± 3	28 ± 3	-
1.10.- 5.11.79			
gelöst	≤ 1	$1,0 \pm 0,2$	-
adsorbiert	130 ± 10	130 ± 10	6200 ± 1200
gesamt	130 ± 10	130 ± 10	-
5.11.- 3.12.79			
gelöst	$2,1 \pm 0,5$	$2,1 \pm 0,4$	-
adsorbiert	560 ± 50	550 ± 40	6100 ± 1100
gesamt	560 ± 50	550 ± 40	-
3.12.-31.12.79			
gelöst	≤ 2	$2,0 \pm 0,6$	-
adsorbiert	85 ± 8	88 ± 8	3100 ± 600
gesamt	85 ± 8	90 ± 9	-

Fortsetzung Tabelle 29:

Plutoniumkonzentrationen im Altrhein;
600 m nach Abwassereinleitung des KfK

Probenahme von bis	Aktivitätskonzentration in fCi/l		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
31.12.79-7.1.80			
gelöst	7 ± 3	4 ± 2	-
adsorbiert	≤ 50	200 ± 20	≤ 3100
gesamt	7 ± 3	200 ± 20	-
4. 2.- 3. 3.80			
gelöst	$1,4 \pm 0,3$	$1,3 \pm 0,2$	-
adsorbiert	100 ± 10	140 ± 10	5900 ± 2900
gesamt	100 ± 10	140 ± 10	-
3. 3.-31. 3.80			
gelöst	$5,9 \pm 0,7$	$7,2 \pm 0,7$	≤ 370
adsorbiert	150 ± 20	210 ± 10	1900 ± 400
gesamt	160 ± 20	220 ± 10	1900 ± 400
31. 3.- 5. 5.80			
gelöst	13 ± 1	18 ± 1	1600 ± 800
adsorbiert	570 ± 30	730 ± 40	7300 ± 1100
gesamt	580 ± 30	750 ± 40	8900 ± 1900
5. 5.- 2. 6.80			
gelöst	7 ± 1	$7,8 \pm 0,9$	≤ 370
adsorbiert	250 ± 20	330 ± 20	18000 ± 8000
gesamt	260 ± 20	340 ± 20	18000 ± 8000
2. 6.-30. 6.80			
gelöst	14 ± 1	19 ± 2	≤ 120
adsorbiert	390 ± 20	450 ± 20	6100 ± 900
gesamt	400 ± 20	470 ± 20	6100 ± 900

Tabelle 30: Plutoniumkonzentrationen im Altrhein;
2000 m nach der Abwassereinleitung des KfK

Probenahme von bis	Aktivitätskonzentration in fCi/l		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
1. 6.-30. 6.79			
gelöst	1,2 ± 0,3	0,8 ± 0,2	-
adsorbiert	5,7 ± 0,7	12 ± 1	≤270
gesamt	7 ± 1	13 ± 1	-
2.7.-30. 7.79			
gelöst	≤3	0,6 ± 0,2	-
adsorbiert	≤1	1,7 ± 0,4	-
gesamt	-	2,3 ± 0,6	-
30.7.- 3. 9.79			
gelöst	≤2	2,3 ± 0,6	-
adsorbiert	0,6 ± 0,2	0,4 ± 0,2	-
gesamt	0,6 ± 0,2	2,7 ± 0,8	-
3. 9.- 1.10.79			
gelöst	0,6 ± 0,3	1,4 ± 0,4	-
adsorbiert	1,2 ± 0,3	1,3 ± 0,3	-
gesamt	1,8 ± 0,6	2,7 ± 0,7	-
1.10.- 5.11.79			
gelöst	3,7 ± 0,9	6,9 ± 0,8	≤240
adsorbiert	0,4 ± 0,2	0,5 ± 0,2	-
gesamt	4 ± 1	7 ± 1	-
5.11.- 3.12.79			
gelöst	≤2	2,0 ± 0,4	-
adsorbiert	3,4 ± 0,5	3,7 ± 0,5	≤270
gesamt	3,4 ± 0,5	5,7 ± 0,9	-
3.12.- 31.12.79			
gelöst	1,4 ± 0,5	1,9 ± 0,4	-
adsorbiert	30 ± 2	46 ± 3	800 ± 180
gesamt	31 ± 3	48 ± 3	-

Fortsetzung Tabelle 30:

Plutoniumkonzentrationen im Altrhein;
2000 m nach der Abwassereinleitung des KfK

Probenahme von bis	Aktivitätskonzentration in fCi/l		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
31.12.79-7.1.80			
gelöst	≤ 7	5 ± 2	-
adsorbiert	16 ± 3	38 ± 5	≤ 1700
gesamt	16 ± 3	43 ± 7	-
4. 2.- 3. 3.80			
gelöst	≤ 2	$3,5 \pm 0,6$	-
adsorbiert	18 ± 1	26 ± 2	≤ 270
gesamt	18 ± 1	30 ± 3	-
3. 3.-31. 3.80			
gelöst	$4,6 \pm 0,7$	$7,7 \pm 0,9$	2700 ± 1100
adsorbiert	40 ± 3	73 ± 5	2100 ± 500
gesamt	45 ± 4	81 ± 6	4800 ± 1600
31. 3.- 5. 5.89			
gelöst	10 ± 1	13 ± 1	1600 ± 600
adsorbiert	34 ± 3	47 ± 4	1900 ± 400
gesamt	44 ± 4	60 ± 5	3500 ± 1000
5. 5.- 2. 6.80			
gelöst	2 ± 1	$4,0 \pm 0,6$	≤ 200
adsorbiert	47 ± 3	72 ± 5	1300 ± 200
gesamt	49 ± 4	76 ± 6	1300 ± 200
2. 6.-30. 6.80			
gelöst	$4,7 \pm 0,7$	$7,1 \pm 0,9$	500 ± 150
adsorbiert	95 ± 5	160 ± 10	2900 ± 400
gesamt	100 ± 10	170 ± 10	3400 ± 600

Tabelle 31: Plutoniumkonzentrationen im Altrhein,
3500 m nach der Abwassereinleitung des KfK

Probenahme von bis	Aktivitätskonzentration in fCi/l		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
1. 6.-30. 6.79			
gelöst	$\leq 0,7$	$0,9 \pm 0,2$	-
adsorbiert	$3,5 \pm 0,6$	$7,8 \pm 0,9$	360 ± 110
gesamt	$3,5 \pm 0,6$	9 ± 1	-
2. 7.-30. 7.79			
gelöst	$1,7 \pm 0,5$	$1,2 \pm 0,4$	-
adsorbiert	$\leq 0,4$	$0,4 \pm 0,1$	-
gesamt	$1,7 \pm 0,5$	$1,6 \pm 0,5$	-
30. 7.- 3. 9.79			
gelöst	$0,7 \pm 0,3$	$1,6 \pm 0,5$	-
adsorbiert	$0,5 \pm 0,2$	$0,9 \pm 0,3$	-
gesamt	$1,2 \pm 0,6$	$2,5 \pm 0,8$	-
3. 9.- 1.10.79			
gelöst	$1,2 \pm 0,4$	$0,6 \pm 0,3$	-
adsorbiert	18 ± 2	26 ± 2	≤ 490
gesamt	19 ± 2	27 ± 2	-
1.10.- 5.11.79			
gelöst	$\leq 0,8$	$0,6 \pm 0,2$	-
adsorbiert	$4,3 \pm 0,9$	$6,5 \pm 0,8$	≤ 140
gesamt	$4,3 \pm 0,9$	7 ± 1	-
5.11.- 3.12.79			
gelöst	≤ 1	$1,5 \pm 0,3$	-
adsorbiert	$6,6 \pm 0,8$	12 ± 2	≤ 790
gesamt	$6,6 \pm 0,8$	14 ± 2	-
3.12.-31.12.79			
gelöst	8 ± 1	10 ± 1	≤ 480
adsorbiert	14 ± 2	23 ± 2	≤ 100
gesamt	22 ± 3	33 ± 3	-

Fortsetzung Tabelle 31:

Plutoniumkonzentrationen im Altrhein;
3500 m nach der Abwassereinleitung des KfK

Probenahme von bis	Aktivitätskonzentration in fCi/l		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
31.12.79-7.1.80			
gelöst	4 ± 2	4 ± 2	-
adsorbiert	2000 ± 200	2300 ± 300	162000 ± 38000
gesamt	2000 ± 200	2300 ± 300	-
4. 2.- 3.3.80			
gelöst	≤0,6	1,4 ± 0,3	-
adsorbiert	32 ± 3	46 ± 3	≤340
gesamt	32 ± 3	47 ± 3	-
3. 3.-31. 3.80			
gelöst	2,4 ± 0,4	4,2 ± 0,5	≤320
adsorbiert	76 ± 7	120 ± 10	1200 ± 300
gesamt	78 ± 7	120 ± 10	1200 ± 300
31.3.- 5. 5.80			
gelöst	2,7 ± 0,4	3,1 ± 0,5	≤430
adsorbiert	69 ± 6	110 ± 10	2000 ± 400
gesamt	71 ± 7	110 ± 10	2000 ± 400
5. 5.- 2. 6.80			
gelöst	1,0 ± 0,3	2,4 ± 0,4	-
adsorbiert	66 ± 5	110 ± 10	1500 ± 300
gesamt	67 ± 5	110 ± 10	-
2. 6.-30. 6.80			
gelöst	3,3 ± 0,5	5,1 ± 0,6	≤260
adsorbiert	38 ± 4	60 ± 4	630 ± 140
gesamt	41 ± 5	65 ± 5	630 ± 140

Tabelle 32: Plutoniumkonzentrationen im Altrhein;
5500 m nach der Abwassereinleitung des KfK

Probenahme von bis	Aktivitätskonzentration in fCi/l		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
1. 6.-30. 6.79			
gelöst	≤ 1	$\leq 0,3$	-
adsorbiert	$2,3 \pm 0,4$	$1,4 \pm 0,3$	-
gesamt	$2,3 \pm 0,4$	$1,4 \pm 0,3$	-
2. 7.-30. 7.79			
gelöst	≤ 3	$1,6 \pm 0,5$	-
adsorbiert	$2,2 \pm 0,6$	$2,7 \pm 0,6$	-
gesamt	$2,2 \pm 0,6$	4 ± 1	-
30. 7.- 3. 9.79			
gelöst	≤ 2	$1,2 \pm 0,4$	-
adsorbiert	$0,8 \pm 0,3$	$0,3 \pm 0,1$	-
gesamt	$0,8 \pm 0,3$	$1,5 \pm 0,5$	-
3. 9.- 1.10.79			
gelöst	$\leq 0,5$	$0,6 \pm 0,2$	-
adsorbiert	16 ± 2	13 ± 2	2600 ± 500
gesamt	16 ± 2	14 ± 2	-
1.10.- 5.11.79			
gelöst	≤ 1	$0,9 \pm 0,3$	-
adsorbiert	≤ 2	$2,3 \pm 0,6$	-
gesamt	-	$3,2 \pm 0,9$	-
5.11.- 3.12.79			
gelöst	≤ 5	$1,4 \pm 0,4$	-
adsorbiert	67 ± 6	75 ± 7	6600 ± 2400
gesamt	67 ± 6	76 ± 7	-
3.12.-31.12.79			
gelöst	≤ 5	$1,6 \pm 0,7$	-
adsorbiert	14 ± 1	25 ± 2	1700 ± 300
gesamt	14 ± 1	27 ± 3	-

Fortsetzung Tabelle 32:

Plutoniumkonzentrationen im Altrhein;
5500 nach Abwassereinleitung des KfK

Probenahme von bis	Aktivitätskonzentration in fCi/l		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
31.12.79-7.1.80			
gelöst	≤ 7	≤ 1	-
adsorbiert	250 ± 20	310 ± 30	13000 ± 2000
gesamt	250 ± 20	310 ± 30	-
4. 2.- 3. 3.80			
gelöst	$0,5 \pm 0,2$	$1,0 \pm 0,2$	-
adsorbiert	$2,7 \pm 0,4$	$4,9 \pm 0,5$	280 ± 80
gesamt	$3,2 \pm 0,6$	$5,9 \pm 0,7$	-
3. 3.-31. 3.80			
gelöst	≤ 2	3 ± 1	-
adsorbiert	$2,0 \pm 0,5$	$4,7 \pm 0,6$	≤ 390
gesamt	$2,0 \pm 0,5$	8 ± 2	-
31. 3.- 5. 5.80			
gelöst	$5,2 \pm 0,7$	$6,0 \pm 0,7$	-
adsorbiert	$4,1 \pm 0,5$	$6,5 \pm 0,7$	480 ± 190
gesamt	9 ± 1	13 ± 1	-
5. 5.- 2. 6.80			
gelöst	≤ 1	$1,3 \pm 0,3$	-
adsorbiert	10 ± 1	12 ± 1	330 ± 100
gesamt	10 ± 1	13 ± 1	-
2. 6.-23. 6.80			
gelöst	$2,8 \pm 0,9$	$2,8 \pm 0,5$	-
adsorbiert	$6,0 \pm 0,7$	$9,8 \pm 0,9$	≤ 370
gesamt	9 ± 2	13 ± 2	-

Tabelle 33: Plutoniumkonzentrationen im Altrhein;
13 500 m nach der Abwassereinleitung des KfK

Probenahme von bis	Aktivitätskonzentration in fCi/l		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
3. 9.- 1.10.79 adsorbiert	$\leq 0,5$	$1,3 \pm 0,4$	-
1.10.- 5.11.79 adsorbiert	≤ 4	$3,6 \pm 0,7$	-
4. 2.- 3. 3.80 gelöst	≤ 1	$0,9 \pm 0,2$	-
adsorbiert	$3,6 \pm 0,6$	$4,7 \pm 0,6$	≤ 170
gesamt	$3,6 \pm 0,6$	$5,6 \pm 0,8$	-
3. 3.-31. 3.80 gelöst	2 ± 1	$3,2 \pm 0,6$	-
adsorbiert	$0,8 \pm 0,4$	$2,9 \pm 0,4$	≤ 330
gesamt	3 ± 1	$6,1 \pm 1,0$	-
31. 3.- 5. 5.80 gelöst	$3,7 \pm 0,6$	$6,8 \pm 0,6$	≤ 250
adsorbiert	≤ 1	$2,8 \pm 0,4$	≤ 230
gesamt	$3,7 \pm 0,6$	10 ± 1	-
5. 5.- 2. 6.80 gelöst	$\leq 0,6$	$0,8 \pm 0,3$	-
adsorbiert	$2,2 \pm 0,7$	$3,0 \pm 0,4$	-
gesamt	$2,2 \pm 0,7$	$3,8 \pm 0,7$	-
2. 6.-16. 6.80 gelöst	$2,3 \pm 0,8$	$3,0 \pm 0,9$	-
adsorbiert	$1,8 \pm 0,5$	$1,4 \pm 0,4$	-
gesamt	4 ± 1	4 ± 1	-

Tabelle 34: Plutoniumaktivitätsverhältnisse im Altrhein

Probenahme Ort / Datum / Art	Aktivitätsverhältnisse		
	Pu-238/Pu-239+240	Pu-241/Pu-238	Pu-241/Pu-239+240
750 m oberhalb:			
31. 3.- 5. 5.80 adsorbiert	0,47	120	57
5. 5.- 2. 6.80 gelöst	0,80	40	32
250 m oberhalb:			
5. 5.- 2. 6.80 gelöst	0,96	22	21
20 m nach Einlauf:			
1. 6.-30. 6.79 gelöst	0,83	55	45
1. 6.-30. 6.79 adsorbiert	0,43	160	70
3. 9.- 1.10.79 adsorbiert	1,6	14	22
1.10.- 5.11.79 adsorbiert	1,0	60	60
3. 3.-31. 3.80 adsorbiert	0,86	110	98
31. 3.- 5. 5.80 adsorbiert	0,88	120	100
5. 5.- 2. 6.80 adsorbiert	0,86	74	63
2. 6.-30. 6.80 adsorbiert	0,53	91	48
600 m nach Einlauf:			
31. 3.- 5. 5.80 gelöst	0,75	120	90
31. 3.- 5. 5.80 adsorbiert	0,78	13	10
1.10.- 5.11.79 adsorbiert	0,97	50	48
5.11.- 3.12.79 adsorbiert	1,0	11	11
3.12.-31.12.79 adsorbiert	0,97	36	35
4. 2.- 3. 3.80 adsorbiert	0,72	58	42
3. 3.-31. 3.80 adsorbiert	0,72	13	9,2
5. 5.- 2. 6.80 adsorbiert	0,76	70	54
2. 6.-30. 6.80 adsorbiert	0,86	16	14
2000 m nach Einlauf:			
3.12.-31.12.79 adsorbiert	0,65	27	17
3. 3.-31. 3.80 gelöst	0,60	590	360
3. 3.-31. 3.80 adsorbiert	0,55	51	28
31. 3.- 5. 5.80 gelöst	0,78	150	120
31. 3.- 5. 5.80 adsorbiert	0,73	55	40
5. 5.-2. 6.80 adsorbiert	0,65	29	19
2. 6.-30. 6.80 gelöst	0,66	110	71
2. 6.-30. 6.80 adsorbiert	0,59	30	18
3500 m nach Einlauf:			
1. 6.-30. 6.79 adsorbiert	0,44	100	47
31.12.79-7.1.80 adsorbiert	0,87	80	70
3. 3.-31. 3.80 adsorbiert	0,66	16	10
31. 3.- 5. 5.80 adsorbiert	0,62	28	18
5. 5.- 2. 6.80 adsorbiert	0,62	23	15
2. 6.-30. 6.80 adsorbiert	0,64	16	10
5500 m nach Einlauf:			
3. 9.- 1.10.79 adsorbiert	1,2	160	200
5.11.- 3.12.79 adsorbiert	0,89	99	88
3.12.-31.12.79 adsorbiert	0,56	120	65
31.12.79-7.1.80 adsorbiert	0,82	51	41
4. 2.- 3. 3.80 adsorbiert	0,55	100	57
31. 3.- 5. 5.80 gelöst	0,86	140	120
31. 3.- 5. 5.80 adsorbiert	0,62	120	74
5. 5.- 2. 6.80 adsorbiert	0,84	32	27

5. Die Dosisexposition durch Pu-241

Die Dosisexposition der Umgebungsbevölkerung durch Pu-241 kann erfolgen durch die Aufnahme von Pu-241 aus dem Boden in pflanzliche Nahrungsmittel oder durch Verwendung des Altrheinwassers als Trinkwasser.

Der Transferfaktor Boden/Pflanze für Plutonium liegt im Bereich 10^{-4} . Mit den Pu-241-Konzentrationen in der oberen Bodenschicht - 110 bis 460 pCi/kg trockenen Boden - erhält man eine Kontamination der pflanzlichen Nahrungsmittel von 11 bis 46 fCi/kg.

Das Altrheinwasser kann aus Gründen der konventionellen Verschmutzung nicht als Trinkwasser benutzt werden. Nimmt man trotzdem an, daß unfiltriertes Wasser als Trinkwasser verwendet wird, würden die Pu-241-Konzentrationen zwischen <100 und 162.000 fCi/l Wasser liegen. Daraus ergibt sich, daß eventuelle Kontaminationen von Pflanzen ohne Bedeutung sind neben der Kontamination des "Trinkwassers".

Die nach der Strahlenschutzverordnung [24] maximal zulässige Jahresaufnahme durch Trinkwasser und Nahrungsmittel beträgt $1,1 \cdot 10^{-5}$ Ci. Mit der größten je gemessenen Pu-241-Konzentration im Altrhein und mit einem Jahresverbrauch von ca. 1000 l Wasser, würden ca. 1,5% der zulässigen Jahresingestion aufgenommen werden.

Die zur Zeit in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe gemessenen Pu-241-Konzentrationen sind daher für die Dosisexposition der Umgebungsbevölkerung auch mit extrem unwahrscheinlichen, ungünstigen Ausnahmen bedeutungslos.

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, 154-159
- [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.95
- [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 α -Spectrometry without Electrodeposition", Anal. Chem. 53, 412-415, 1981
- [19] Pimpl, M., Schüttelkopf, H., Afsar, M.-"Die Plutoniumkontamination des Altrheins: Die Kontamination der Sedimente", KfK 2892, Dezember 1979
- [20] Pimpl, M., Schüttelkopf, H., "Die Messung der Abwasserverdünnung im Altrhein mit der Tritiumemission des Kernforschungszentrums Karlsruhe, KfK 3073, November 1980
- [21] Pimpl, M., Schüttelkopf, H., "Die Plutoniumkontamination des Altrheins. Die Plutoniumkontamination als Funktion des Teilchendurchmessers der Sedimente", KfK 3074, Mai 1982
- [22] Godoy, J.M, Schüttelkopf, H., -"Die Bestimmung von Pu-241 durch Flüssigszintillationsspektrometrie in der Abluft der Verbrennungsanlage FERAB und der Wiederaufarbeitungsanlage WAK", KfK 3510, März 1983
- [23] Godoy, J.M., Schüttelkopf, H., Pimpl, M., -"Die Bestimmung von Pu-241 durch Flüssigkeitszintillationsspektrometrie im Abwasser des Kernforschungszentrums Karlsruhe", KfK 3530, April 1983
- [24] Fischerhof, H.- "Atomgesetz mit Verordnungen", Nomos Verlagsgesellschaft, Baden-Baden, 1978