

DAS VERHALTEN VON AKTINIDEN IN DER UMGEBUNG DES
KERNFORSCHUNGSZENTRUMS KARLSRUHE

M. Pimpl, H. Schüttelkopf
Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Hauptabteilung Sicherheit/Radioökologie

Zusammenfassung

Geringe Mengen Pu, Am und Cm werden aus der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) und dem Kernforschungszentrum Karlsruhe (KfK) mit der Abluft und dem Abwasser in die Umgebung emittiert. Aus den Emissionswerten und der gemessenen Verteilung in der Umwelt werden Rückschlüsse auf die Transportmechanismen gezogen, die zu der gefundenen Verteilung führten. Die Dosisexposition der Bevölkerung in der Umgebung des Kernforschungszentrums als Folge der geringen Aktinidenemissionen ist vernachlässigbar klein.

1. Aktinidenemissionen aus dem KfK mit Abluft und Abwasser

Die wichtigsten Aktinidenemittenten des KfK mit der Abluft sind die WAK und die zur Verbrennung brennbarer radioaktiver Abfälle betriebene Verbrennungsanlage. Die Emissionen von ^{239}Pu und $^{239+240}\text{Pu}$ mit der Abluft werden in der Verbrennungsanlage seit 1976, in der WAK seit 1977 überwacht. Seit 1980 wird zusätzlich ^{241}Pu gemessen, seit 1982 werden auch ^{241}Am , ^{242}Cm und ^{244}Cm erfaßt. In Tab. 1 sind die kleinsten und größten Emissionswerte pro Monat für die einzelnen Aktiniden aufgeführt sowohl für die gasförmigen Ableitungen als auch für die Emissionen mit den Abwässern des KfK, die zusammen mit dem Abwasser der WAK gereinigt und dann in den als Vorfluter dienenden Altrhein abgegeben werden. Seit Beginn der Plutoniumüberwachung wurden bis Ende 1982 insgesamt 85 MBq ^{239}Pu und 97 MBq $^{239+240}\text{Pu}$ mit dem Abwasser in die Umgebung des KfK emittiert. Die jährlichen Emissionsraten liegen zwischen 1,3 und 46 MBq für ^{239}Pu und $^{239+240}\text{Pu}$. Die Emissionen von ^{241}Am , ^{242}Cm und ^{244}Cm liegen wesentlich niedriger (^{241}Am : 4 MBq/a, ^{242}Cm : 0,2 MBq/a, ^{244}Cm : 0,9 MBq/a von Januar bis Dezember 1982).

Tab. 1: Aktinidenemissionen aus dem KfK von 1980 - 1982 in MBq/Monat

| Nuklid | Abluft | | Abwasser |
|-----------------------|-----------------|--------------------|--------------|
| | WAK | Verbrennungsanlage | |
| ^{239}Pu | 0,0004 - 5,26 | 0,0022 - 2,74 | 0,093 - 5,55 |
| $^{239+240}\text{Pu}$ | 0,0004 - 14,3 | 0,0015 - 5,20 | 0,17 - 3,66 |
| ^{241}Pu | <0,037 - 285 | 0,48 - 186 | 30 - 244 |
| ^{241}Am | 0,0016 - 1,85 | 0,0009 - 1,57 | - |
| ^{242}Cm | <0,0001 - 0,019 | <0,00002 - <0,0009 | - |
| ^{244}Cm | <0,0002 - 0,087 | <0,00004 - 0,01 | - |

2. Messung der Aktinidenkonzentrationen in Proben aus der terrestrischen und aquatischen Umgebung des KfK

2.1 Terrestrische Umgebung

Boden: Der Boden in der Umgebung des KfK ist im wesentlichen Sandboden. Die höchsten Pu-Konzentrationen findet man in der 0 - 5 cm Schicht im Bereich der 1. Hauptwindrichtung im Umkreis der WAK: 0,2 - 1,5 mBq ^{238}Pu /g Asche und 0,7 - 1,9 mBq $^{239+240}\text{Pu}$ /g Asche. Im Bereich der 2. Hauptwindrichtung liegen diese Pu-Konzentrationen bis zum Faktor 10 niedriger. Die ^{241}Pu -Konzentrationen in diesen Proben betrug 4 - 17 mBq/g Asche. Eine Unterscheidung zwischen dem in der gleichen Größenordnung liegenden Fallout-Plutonium und dem Plutonium aus der WAK ist über die Aktivitätsverhältnisse $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ und $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ möglich.

Luft: In der 1. Hauptwindrichtung von der WAK aus wird seit 1977 die Pu-Konzentration in der bodennahen Luft monatlich gemessen. Für ^{238}Pu wurde im Mittel $0,5 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ gemessen (Bereich: $0,1 - 12,5 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$), für $^{239+240}\text{Pu}$ wurden $0,9 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ nachgewiesen (Bereich: $0,1 - 14,8 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$). Die Luftkonzentrationen für ^{238}Pu liegen meßbar über den zu erwartenden Fallout-Werten von $0,02 - 0,09 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$, wohingegen die $^{239+240}\text{Pu}$ -Werte im Bereich des Fallouts von $0,2 - 1 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ liegen.

Pflanzen: In Grasproben wurden $0,04 - 0,2 \text{ mBq } ^{238}\text{Pu}/\text{g}$ trocken und $0,07 - 1,5 \text{ mBq } ^{239+240}\text{Pu}/\text{g}$ trocken gemessen. Die Pu-Konzentrationen in Kiefernadeln lagen im gleichen Bereich. Proben von 20 verschiedenen Nutzpflanzen wurden auf ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{242}Cm und ^{244}Cm untersucht. Die Aktinidenkonzentrationen lagen praktisch alle unter der erreichbaren Nachweisgrenze. In der 2. Hauptwindrichtung wurden in abgefallenem Laub und abgestorbenen Pflanzenproben von der Bodenoberfläche die höchsten Pu-Konzentrationen aller untersuchten Pflanzenproben gefunden: $5 \text{ mBq } ^{238}\text{Pu}/\text{g}$ trocken, $6 \text{ mBq } ^{239+240}\text{Pu}/\text{g}$ trocken und $300 \text{ mBq } ^{241}\text{Pu}/\text{g}$ trocken.

Tiere: Der Pu-Gehalt in verschiedenen Organen von Damwild und Kaninchen aus der Umgebung des KfK wurde gemessen. Während die ^{238}Pu -Konzentration durchweg unter der Nachweisgrenze lag, wurden für $^{239+240}\text{Pu}$ $0,006 - 0,6 \text{ mBq}/\text{g}$ frisch ermittelt, wobei Knochen, Leber und Nieren die höchsten Plutoniumkonzentrationen aufwiesen.

2.2 Aquatische Umgebung

Sedimente: Im 23 km langen Altrhein, der als Vorfluter für die geklärten Abwässer des KfK dient, ist eine Abweichung von der Fallout-Kontamination in den Sedimenten nur in den ersten 3,5 km nach der Einleitung meßbar. Die maximalen Konzentrationen betragen $6 \text{ mBq } ^{238}\text{Pu}/\text{g}$ trocken und $9 \text{ mBq } ^{239+240}\text{Pu}/\text{g}$ trocken.

Wasser: Im filtrierte Altrheinwasser wurden 20 m nach der Einleitungsstelle im Monatsmittel mit $0,7 \text{ Bq } ^{238}\text{Pu}/\text{m}^3$ und $1,1 \text{ Bq } ^{239+240}\text{Pu}/\text{m}^3$ die höchsten Werte gemessen. 3,5 km flußabwärts war bereits der Fallout-Bereich von $0,007 \text{ Bq } ^{238}\text{Pu}/\text{m}^3$ und $0,1 \text{ Bq } ^{239+240}\text{Pu}/\text{m}^3$ erreicht. Der Pu-Gehalt in den abfiltrierten Schwebstoffen lag bis zum Faktor 50 höher, abhängig von der Kontamination der Sedimente an der Probenahmestelle und der Fließgeschwindigkeit. In ausgewählten Proben wurde ^{241}Pu gemessen. Die ^{241}Pu -Konzentrationen liegen zwischen $4 \text{ Bq}/\text{m}^3$ und $6 \text{ kBq}/\text{m}^3$, wobei die Verteilung im Altrhein den anderen Pu-Isotopen entspricht.

Pflanzen: In Wasserpflanzen (Schilf, Schwertlilie, Wasserpest) wurde in den unter der Wasseroberfläche wachsenden Pflanzenteilen 4 - 200 mBq/kg frisch sowohl für ^{238}Pu als auch für $^{239+240}\text{Pu}$ gemessen. Die Wurzeln wiesen bis zum 20fachen höhere Konzentrationen auf, dagegen war in Pflanzenteile über der Wasseroberfläche der Pu-Gehalt um den Faktor 5 kleiner.

Tiere: In Fried- und Raubfischen wurden $^{239+240}\text{Pu}$ -Konzentrationen von 0,7 - 160 mBq/kg frisch gemessen, wobei die höchsten Werte in den Gräten und die niedrigsten im Fleisch gefunden wurden. In Bismarratten wurden um den Faktor 10 niedrigere Pu-Gehalte gemessen. In Muschelfleisch wurden 9 mBq $^{239+240}\text{Pu}$ /kg frisch gefunden, in den Muschelschalen ein 100fach höherer Wert.

3. Rückschlüsse auf Transportmechanismen, die zu der gefundenen Verteilung von Plutonium in der Umgebung des KfK führen

3.1 Terrestrische Umgebung

Ausbreitungsfaktor: Unter der Annahme, daß der ^{238}Pu -Untergrund durch Fall-out in der Umgebungsluft der WAK ebenso vernachlässigbar gering ist wie im Südschwarzwald, wurde mit den gemessenen Luftkonzentrationen und den Emissionsraten für ^{238}Pu der Langzeitausbreitungskoeffizient $\chi = 4,8 \cdot 10^{-6} \text{ s/m}^3$ berechnet.

Depositionsgeschwindigkeit: Aus den Luftkonzentrationen und den deponierten Pu-Aktivitäten wurden Depositionsgeschwindigkeiten berechnet. Für die Ablagerung mit dem Niederschlag wurde 0,1 - 4,2 cm/s berechnet, die trockene Ablagerung auf Gras ergab 0,4 - 5,0 cm/s und die Gesamtd deposition von Pu-Aerosolen auf den Boden 0,2 - 4,6 cm/s.

Migrationsverhalten: In der Umgebung des KfK nimmt die Pu-Konzentration im Boden wie erwartet mit der Tiefe ab, allerdings wurde in jedem Fall in den Schichten unter 20 cm Tiefe noch ein Teil des abgelagerten Plutoniums gefunden. Dies kann auf den leichten Sandboden zurückgeführt werden, der einen schnelleren Transport in die Tiefe ermöglicht.

Transfer Boden → Pflanze: Die Berechnung des Transferfaktors Boden → Pflanze aus den in Boden- und Pflanzenproben gemessenen Pu-Konzentrationen kann nicht vorgenommen werden, da der Anteil des Plutoniums, der durch Deposition von Pu-Aerosolen auf der Pflanzenoberfläche in die Pflanze gelangt, nicht abgeschätzt werden kann.

3.2 Aquatische Umgebung

Sedimentationsverhalten: Die in den Sedimenten des Altrheins gefundene Pu-Verteilung verläuft parallel zur korngößenabhängigen Sedimentation der Schwebstoffe. Deren Sedimentation wiederum ist abhängig von gewässerspezifischen Parametern, wie z. B. Abstand von der Einleitungsstelle, Breite, Fließgeschwindigkeit und Wasserdurchsatz.

Transfer Wasser → Lebewesen: Die in den Wasserpflanzen, Fischen, Muscheln und Bismarratten gemessenen Pu-Konzentrationen wurden ins Verhältnis gesetzt zu dem Plutoniumgehalt im Altrheinwasser und den nichtsedimentierten Schwebstoffen. Die erhaltenen Transferfaktoren sind in Tab. 2 zusammengestellt. Die im allgemeinen niedrigen Transferfaktoren zu tierischen Lebewesen werden auch im Altrhein bestätigt. Erhöhte Transferfaktoren bei Pflanzen sind auf abgelagerte Schwebstoffe zurückzuführen.

Tab. 2: Transferfaktoren Wasser → Lebewesen im Altrhein beim KfK

| Lebewesen | | Transferfaktor Bq/kg frisch : Bq/kg Wasser | | |
|-------------|--------------------------|---|-----|--------|
| Pflanze: | Schilf | 0,4 | - | 100 |
| | Schwertlilie, Wasserpest | 4 | - | 194 |
| Fisch: | Knochen | 0,6 | - | 60 |
| | Eingeweide | 0,6 | - | 5,2 |
| | Fleisch | 0,3 | - | 0,9 |
| Muscheln: | Schale | 14 000 | - | 26 000 |
| | Fleisch | | 260 | |
| Bisamratte: | Knochen | 0,3 | - | 2,2 |
| | Fleisch | 0,3 | - | 1,8 |
| | Leber | 0,2 | - | 1,5 |
| | Lunge | ≤ 0,1 | - | 2,6 |
| | Nieren | 2,7 | - | 7,0 |

4. Abschätzung der Dosisexposition

Die Dosisexposition der Umgebungsbevölkerung durch die emittierten Aktiniden kann durch Inhalation von aktivitätshaltigen Aerosolen und durch den Verzehr kontaminierter Lebensmittel erfolgen. In Tab. 3 ist die nach der Strahlenschutzverordnung pro Jahr zulässige Aufnahme der Pu-Isotope gegenübergestellt der maximal möglichen Aufnahme in der Umgebung des KfK. Für die Jahresaufnahme durch Trinkwasser und Nahrungsmittel wird dabei angenommen, daß das Altrheinwasser mit jeweils der höchsten gemessenen Konzentration unfiltriert als Trinkwasser benutzt wird und daß ca. 1 000 l/a konsumiert werden (^{238}Pu : 74 mBq/l, $^{239,240}\text{Pu}$: 85 mBq/l, ^{241}Pu : 6 Bq/l). Da in allen anderen Nahrungsmittel sehr viel niedrigere Pu-Konzentrationen als im Altrheinwasser gemessen wurden, ist deren Verzehr für die Pu-Ingestion bedeutungslos. Für die Pu-Aufnahme durch Inhalation wurde eine Atemrate von $2,32 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$ angesetzt und mit der höchsten in der Umgebungsluft gemessenen Pu-Konzentration die Jahresaufnahme abgeschätzt. Die Abschätzung macht deutlich, daß die zur Zeit in der Umgebung des KfK gemessenen Pu-Konzentrationen für die Dosisexposition der Umgebungsbevölkerung auch mit extrem unwahrscheinlichen Annahmen bedeutungslos ist. Dies gilt in noch höherem Maße für Am und Cm, deren Emissionsraten wesentlich unter denen von Pu liegen.

Tab. 3: Maximal mögliche Pu-Aufnahme durch Inhalation und Ingestion in der Umgebung des KfK im Vergleich mit der zulässigen Aufnahme in Bq/a

| Nuklid | Jahresaufnahme in Bq/a | | | |
|-----------------------|---|----------------|--|----------------|
| | zulässig nach Strahlenschutz- verordnung | | in der Umgebung des KfK maximal möglich | |
| | Inhalation | Ingestion | Inhalation | Ingestion |
| ^{238}Pu | 1,1 | 8 900 | 0,09 | 74 |
| $^{239,240}\text{Pu}$ | 0,95 | 8 000 | 0,11 | 85 |
| ^{241}Pu | 51 | $4 \cdot 10^5$ | - | $6 \cdot 10^3$ |