

J.C. Veselsky, Merten D., Metz H. u. F. Sauerzopf

Internationale Atomenergieorganisation, Labor Seibersdorf,  
A-2444 Seibersdorf

Biologische Station Illmitz  
A-7142 Illmitz, Burgenland, Österreich

## ZUM PLUTONIUMGEHALT DES NEUSIEDLER SEES UND DER LACKEN DES SEEWINKELS

### 1. Einleitung

Im Rahmen des globalen fall out gelangen verschiedene Plutoniumisotope wie  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  u.a. auch in die Hydrosphäre unseres Planeten. Die analytische Bestimmung dieses Elements in Wasser weist einige Probleme auf, welche im folgenden kurz skizziert werden sollen, wonach auf einige Resultate dieser Analysen eingegangen werden soll.

### 2. Probleme der Plutoniumbestimmung

Das Plutonium ist ein zur Aktiniden-gruppe des Periodensystems gehöriges radioaktives Element ( $Z = 94$ ). Seine hier in Frage kommenden Isotope weisen ganz verschiedene Halbwertszeiten auf, so z.B.  $^{238}\text{Pu}$  87 Jahre,  $^{239}\text{Pu}$  24.400 Jahre etc. Das Element kann chemisch in mehreren Wertigkeitsstufen auftreten (III, IV, V, VI), welche die Fähigkeit der Koexistenz aufweisen, was bei dem unterschiedlichen chemischen Charakter der betreffenden Ionen zu analytischen Schwierigkeiten führen kann, man muß daher stets dafür Sorge tragen, daß vor Beginn eines Abtrennungsvorgangs nur eine einzige, wohldefinierte Valenzstufe vorliegt ( oft ist

dies die Stufe IV). Ein weiteres Handicap ist die Neigung des Plutonium-Ions zu Disproportionierungsreaktionen in wässrigem Medium, wodurch Gemische aus verschiedenwertigen Ionen entstehen. Die analytisch häufig verwendete vierwertige Stufe tendiert auch (in schwach saurem Medium) zur Bildung langkettiger Isopolykörper, welche kolloidalen Charakter annehmen können.

Auf Einzelheiten der von uns entwickelten Methodik wird hier nur insoweit eingegangen, als sie sich von dem als Grundlage benutzten Verfahren zur Bestimmung von Plutonium in Urin unterscheiden. Für Details derselben muß auf die Originalpublikation verwiesen werden. (VESELSKY 1978).

Beim Vorliegen von Wasserproben werden diese mit Salpetersäure angesäuert, zur Trockenheit gedampft und der Rückstand mehrmals mit  $\text{HNO}_3$  abgeraucht, was zur Zerstörung organischer Stoffe, welche als Komplexbildner für das Plutonium fungieren können, sowie zur Unlöslichmachung eventuell vorhandener Kieselsäure führt. Nach dem Aufnehmen der Salze in 7,2 M  $\text{HNO}_3$  und Filtration durch Glasfaserfilter wird zwecks Stabilisierung des vierwertigen Plutoniums eine kleine Menge Natriumnitrit zugesetzt, überschüssige nitrose Gase werden durch Erwärmen ausgetrieben. Die salpetersäure Lösung wird durch eine Ionenaustauschersäule gesetzt, welche etwa 8 g des Anionenaustauschers DOWEX-1x8 in Nitratform enthält. Nach dem Waschen mit  $\text{HNO}_3$  und  $\text{HCl}$  kann eluiert werden.

Meßprobleme werden unten kurz gestreift. Die Trennung individueller Wertigkeitsstufen kann durch selektive Mitfällung erfolgen, so werden etwa Pu (III+IV) mit  $\text{La}^{+++}$  Ionen als Fluoride ausgefällt, während Pu (V+VI) unter diesen Bedingungen in Lösung bleibt.

Unter den oben genannten Versuchsbedingungen beträgt der Verteilungskoeffizient für Pu (IV) etwa 9000, für  $\text{UO}_2^{++}$  etwa 10 und für Pu (VI) ebenfalls nur in der Größenordnung 10 (Wichtigkeit der Stabilisierung des Pu (IV)!).

Ein anderes Problem ist die Messung des Elements. Sie kann, wenn die Substanz in Mikromengen vorliegt, nur über seine Alpha-Strahlung erfolgen. (Eventuell auch über eine fission-track Methode). Für Alpha-Messungen muß es praktisch trägerfrei isoliert werden, da ansonsten die

leicht absorbierbare Strahlung entweder ganz verschluckt oder in ihrer Energie reduziert wird, was zu für alpha-spektrometrische Messungen unangenehmen peak-Verbreiterungen führt. Da der Plutoniumgehalt der Wässer in der Größenordnung fCi/l liegt ( $1 \text{ fCi} = 10^{-15} \text{ Ci}$  entsprechend  $1,6 \cdot 10^{-14} \text{ g } ^{239}\text{Pu}$ ), muß man zur Erzielung einer vertretbaren Meßpräzision von relativ großen Probenvolumina ausgehen (bis zu 250 Liter wurden verwendet), zusätzlich sind ein niedriger Hintergrund des Meßgerätes und lange Meßdauer erforderlich, was wieder eine große elektronische Stabilität des Apparats voraussetzt.

### 3. Einige Resultate der Plutoniumbestimmung in Wässern.

Die Resultate einiger Plutoniumbestimmungen in Wässern zeigt Tab. 1. Der verhältnismäßig hohe Gehalt des alkalischen, stark salzhaltigen Mono Lake Wassers an Plutonium ist höchstwahrscheinlich auf eine Komplexierung der oxidierten Wertigkeitsstufen (V + VI) des Elements durch  $\text{CO}_3^{--}$  zurückzuführen. Die wesentlich niedrigeren Werte für Michigan- und Ontariosee sowie den Hudson River rühren von der Konzentrierung des Plutoniums in den Sedimenten her.

Eine weitere Zusammenstellung von Analysenwerten zeigt Tab. 2. Hier sind die Plutonium-Werte auch nach der Elementwertigkeit aufgeschlüsselt: die Existenz von oxidiertem Plutonium im Seewasser läßt auf einen geringen Gehalt desselben an reduzierenden Stoffen schließen.

Tab. 1 Der Plutoniumgehalt verschiedener See- u. Flußwässer  
(nach SIMPSON 1980, 1982)

See (Fluß)	$^{239,240}\text{Pu}$ Konzentration (fCi/l)
Mono Lake (Kalifornien)	$14 \pm 4$
Michigan-See	ca. 0.5
Ontario-See	ca. 0.3
Hudson-River	ca. 0.3

Tab. 2 Der Plutoniumgehalt einiger nordamerikanischer Seewässer  
(WAHLGREEN AND ORLANDINI 1982)

See	p <sub>H</sub>	Alkalinity (in mg CaCO <sub>3</sub> /l)	Pu (III+IV) (fCi/l)	Pu(V+VI) (fCi/l)
1. Michigan	8,0	113	0,06	0,39
2. Last Mountain	8,4	305	0,28	0,46
3. Little Manito	8,7	770	9,6	0,2
4. Clear Lake	8,0	190	0,09	0,57
5. ELA- 223	5,6	1	0,19	0,30
6. ELA- 161	6,8	10	0,28	0,35
7. ELA-241	5,9	8	5,5	0,1

1,4: Calcareous Lakes

2,3: Saline Lake Zone, Saskatchewan

5,6,7: Experimental Lake Area, Kenona, Ontario

Nun können wir den Plutoniumgehalt des Neusiedler-, Alber-, Darscho- und Zicksees (Tab. 3) mit obigen Werten vergleichen. Da in diesen Wässern auch fluorimetrische Uranbestimmungen durchgeführt wurden, sind deren Resultate der Tabelle beigegeben. Die Plutoniumwerte entsprechen etwa den Zahlen für den Mono Lake oder den Little Manito Lake, in beiden Fällen Seen mit alkalischem, stark salzhaltigem Wasser. Es wäre zweifellos von Interesse, den Plutoniumgehalt der Sedimente der oben genannten burgenländischen Seen zu untersuchen, möglicherweise ist auch in diesen Fällen die Hauptmenge des Plutoniums im Wasser anzutreffen (siehe Tab. 1).

Tab. 3 Plutonium- und Urangehalt des Neusiedler Sees und der Lacken des Seewinkels.

Gewässer	p <sub>H</sub>	CO <sub>3</sub> <sup>--</sup> (mval/l)	<sup>239</sup> Pu (fCi/l)	U <sup>+</sup> ) ppb
Neusiedler See	8,4	19,2	11,5 ± 4,3	2,8
Alber See	8,6	45,4	12,8 ± 5,7	5,2
Darscho See	8,9	16,5	34,5 ± 4,3	2,2
Zick See	8,6	7,0	10,3 ± 2,8	6,0

+) Präzision etwa ± 20 %.

Wie aus Tab. 3 ersichtlich ist, sind die Wässer alle schwach alkalisch, ein Zusammenhang zwischen ihrem Plutoniumgehalt und der CO<sub>3</sub><sup>--</sup> - Konzentration scheint nicht zu bestehen.

#### L i t e r a t u r

- SIMPSON, H.J., R.M. TRIER, C.R. OLSEN, D.E. HAMMOND, A. EGE, L. MILLER, J.M. MELACKY: "Fallout Plutonium in an Alkaline, Saline Lake".  
Science 207 (7 March 1980) 1971.
- SIMPSON, H.J., R.M. TRIER, J.R. TOGGWEILER, G. MATHIEU, B.L. DECK, C.R. OLSEN, D.E. HAMMOND, C. FULLER, T.L. KU;  
"Radionuclides in Mono Lake, California".  
Science 216 (30 April 1982), 512
- WAHLGREN, M.A., K.A. ORLANDINI; "Comparison of the Geochemical Behaviour of Plutonium, Thorium and Uranium in selected North American Lakes"  
In "Environmental Migration of long-lived Radionuclides".  
Proceedings of a Symposium Knoxville 27-30 July 1981.  
IAEA Vienna 1982, 757 ff.
- VESELSKY, J.C.; " A routine procedure for the Determination of Trace Amounts of Plutonium in Urine". Mikrochim. Acta (Wien) 1978 I, 79.

# ZOBODAT - [www.zobodat.at](http://www.zobodat.at)

Zoologisch-Botanische Datenbank/Zoological-Botanical Database

Digitale Literatur/Digital Literature

Zeitschrift/Journal: [BFB-Bericht \(Biologisches Forschungsinstitut für Burgenland, Illmitz 1](#)

Jahr/Year: 1983

Band/Volume: [47](#)

Autor(en)/Author(s): Veselsky J. C., Merten Dietrich, Metz Heimo, Sauerzopf Franz

Artikel/Article: [Zum Plutoniumgehalt des Neusiedlersees und der Lacken des Seewinkels 59-63](#)