

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

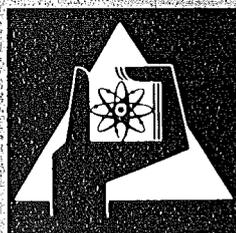
Juni 1977

KFK 2421

Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit

**Die Emission von  $^{14}\text{CO}_2$  mit der Abluft  
kerntechnischer Anlagen**

H. Schüttelkopf



**GESELLSCHAFT  
FÜR  
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

**KARLSRUHE**

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE  
ABTEILUNG STRAHLENSCHUTZ UND SICHERHEIT

KFK - 2421

DIE EMISSION VON  $^{14}\text{CO}_2$  MIT DER ABLUFT

KERntechnischer ANLAGEN

H. SCHÜTTELKOPF

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H.,  
KARLSRUHE



## Inhalt

	<u>Seite</u>
1. Einleitung	1
2. Die Probenahme	2
3. Die Abtrennung von $^{14}\text{C}$ als $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$	3
4. Arbeitsvorschrift	4
5. Die Messung des $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$	5
6. Auswertung der Messungen	6
7. Ergebnisse der $^{14}\text{CO}_2$ -Messungen in der Abluft kerntechnischer Anlagen	7
8. Dosisbelastungen durch $^{14}\text{CO}_2$ in der Umgebung des KFZ	10

## Zusammenfassung

Da sehr wenig Information über Ausmaß und Art der  $^{14}\text{C}$ -Emission aus kerntechnischen Anlagen zur Verfügung steht, wurde von der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit des Kernforschungszentrums Karlsruhe (KFZK) die  $^{14}\text{C}$ -Emission mit der Kaminabluft aus verschiedenen Anlagen gemessen. Die Messung beschränkte sich auf  $^{14}\text{CO}_2$ , da nur diese Verbindung, nicht aber  $^{14}\text{C}$ -Alkane, zu Dosisbelastungen durch Ingestion und Inhalation führen kann.

(1) Die Probenahme erfolgte mit 200 ml 5 M NaOH in einer Waschflasche. Der Probendurchfluß betrug 1 l/min. Die Probenahmedauer lag bei einer Woche.

(2) Die Abtrennung des  $^{14}\text{CO}_3^{2-}$  aus der NaOH erfolgt durch Fällung mit  $\text{Ba}^{2+}$ . Die chemische Ausbeute beträgt  $100 \pm 2$  %. Da die Lösungen meist mit Cs- und J-Nukliden kontaminiert sind, wird zur Vermeidung der Mitfällung mit je 30 mg  $\text{Cs}^+$  und  $\text{J}^-$  geträgert.

(3) 2 g des  $\text{BaCO}_3$  werden in einem low level  $\beta$ -Meßplatz gemessen. Der auf das Probengewicht bezogene Detektorwirkungsgrad beträgt 1,79 %, der mittlere Fehler der Präparation  $\pm 1,5$  %. Die radiochemische Reinheit der  $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$ -Präparate wurde bewiesen. Die Nachweisgrenze liegt bei 13 pCi  $^{14}\text{CO}_2/\text{m}^3$  Abluft.

(4) Die Messung der  $^{14}\text{CO}_2$ -Emission erfolgte in der Kaminabluft des Forschungsreaktors 2 (FR 2), des Mehrzweckforschungsreaktors (MZFR), der Verbrennungsanlage für radioaktive, brennbare Abfälle (FERAB), der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) - alle Anlagen im KFZK - und in der Abluft der Kernkraftwerke Obrigheim (KWO) und Biblis A.

Während des Probenahmezeitraumes wurde aus dem Kernkraftwerk Biblis A 6 % und aus dem KWO 31 % der berechneten  $^{14}\text{C}$ -Produktion im Kühlmittel emittiert. Die aus dem FR 2 emittierte  $^{14}\text{CO}_2$ -

Emission von umgerechnet 2,4 Ci/a stimmt mit dem berechneten Wert von 2,5 Ci/a sehr gut überein. Die  $^{14}\text{CO}_2$ -Emission des MZFR von 2-3 Ci/a liegt über der errechneten  $^{14}\text{C}$ -Produktion von 0,55 Ci/a.

(5) Erfolgt in der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe keine Auflösung, dann liegt die  $^{14}\text{CO}_2$ -Emission im Bereich zwischen 0,11 und 1,1 mCi/d. Bei der Auflösung von Brennstoff aus einem Druckwasserreaktor wurden  $61 \pm 15$  % des errechneten  $^{14}\text{C}$ -Inventars während und knapp nach der Auflösung emittiert; aus Brennstoff eines Siedewasserreaktors wurden  $79 \pm 29$  % des berechneten  $^{14}\text{C}$ -Inventars während und knapp nach einer Auflösung abgegeben.

(6) Die Dosisbelastung in der Umgebung des KFZ Karlsruhe beträgt auch bei maximalem Brennstoffdurchsatz der WAK  $< 0,01$  mrem/a für Einzelpersonen. Die maximal mögliche Dosisbelastung liegt bei 0,8 mrem/a (spezifisches Aktivitätsmodell).

## Releases of $^{14}\text{C}$ from Nuclear Facilities with Gaseous Effluents

### Abstract

Since only little information is available about the extent and type of the  $^{14}\text{C}$  emission from nuclear facilities, the Radiation Protection and Safety Department of the Karlsruhe Nuclear Research Center has measured the  $^{14}\text{C}$  stack vent emission from various facilities. The measurement was restricted to  $^{14}\text{CO}_2$ , because it is only this compound, not the  $^{14}\text{C}$ -alkanes, which can lead to exposure doses as a result of ingestion and inhalation.

- (1) Sampling was carried out with 200 ml of 5 M NaOH in a scrubber. The sample flow was 1 l/min. The sampling period was one week.
- (2)  $^{14}\text{CO}_3^{2-}$  was separated from the NaOH by precipitation with  $\text{Ba}^{2+}$ . The chemical yield is  $100 \pm 2$  %. Since most solutions are contaminated with Cs- and I-nuclides, 30 mg each of  $\text{Cs}^+$  and  $\text{I}^-$  is added as a carrier to prevent co-precipitation.
- (3) 2 g of  $\text{BaCO}_3$  are measured in a low level  $\beta$ -measuring station. The detector efficiency relative to the sample weight is 1.79 %, the mean error of the preparation is  $\pm 1.5$  %. The radiochemical purity of the  $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$  preparations was proved. The limit of detection is 13 pCi  $^{14}\text{CO}_2/\text{m}^3$  of exhaust air.
- (4) The  $^{14}\text{CO}_2$  emission was measured in the stack vent air of the FR 2 research reactor, the Multi-purpose Research Reactor (MZFR), the combustion facility for burnable radioactive waste (FERAB), the Karlsruhe Reprocessing Plant (WAK), all of which are located on the premises of the Karlsruhe Nuclear Research Center, and in the exhaust air of the Obrigheim (KW0) and Biblis A Nuclear Power Stations.

Over the sampling period, 6 % of the calculated  $^{14}\text{C}$ -production was emitted out of the coolant of the Biblis A Nuclear Power Station, and 31 % by KW0. The  $^{14}\text{CO}_2$  emission from the FR 2 of, in a converted format, 2.4 Ci/a is in very good agreement with the calculated level of 2.5 Ci/a. The  $^{14}\text{CO}_2$  emission of the MZFR

of 2-3 Ci/a is above the calculated  $^{14}\text{C}$  production of 0.55 Ci/a.

(5) If no dissolution is carried out at the Karlsruhe Reprocessing Plant, the  $^{14}\text{CO}_2$  emission is in the range between 0.11 and 1.1mCi/d. When fuel from a pressurized water reactor was dissolved,  $61 \pm 15$  % of the calculated  $^{14}\text{C}$  inventory were emitted during and shortly after dissolution; from the fuel of a boiling water reactor  $79 \pm 29$  % of the calculated  $^{14}\text{C}$  inventory were released during and shortly after the dissolution step.

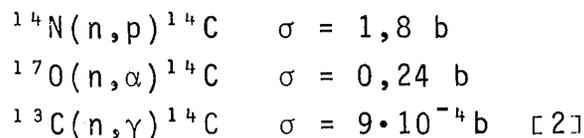
(6) The exposure dose in the environment of the Karlsruhe Nuclear Research Center, even if WAK is operated at its maximum fuel throughput, is likely to be  $< 0.01$  mrem/a per individual. The maximum possible exposure dose is 0.8 mrem/a (specific activity model).

## 1. Einleitung

$^{14}\text{C}$  ist ein durch die Reaktion der Höhenstrahlung mit der Atmosphäre produziertes Radionuklid. Die auf diesem Weg aufgebaute  $^{14}\text{C}$ -Aktivität entspricht einer Luftkonzentration von  $1,2 \text{ pCi/m}^3$ . Zusätzlich zu dieser Aktivität wurde durch die Kernwaffenexperimente vor allem von 1961/62  $^{14}\text{C}$  produziert und in der Atmosphäre verteilt. Die gegenwärtige Konzentration liegt bei ca.  $1,7 \text{ pCi } ^{14}\text{C/m}^3$  Luft [1].

Die heutige Energiegewinnung erfolgt im wesentlichen durch Verbrennung fossiler Brennstoffe und im bescheidenen, aber wachsenden Ausmaß durch Kernspaltung. Bei der Verbrennung fossiler Brennstoffe wird  $^{14}\text{C}$ -freies  $\text{CO}_2$  in die Luft abgegeben. Dadurch erfolgt eine Verdünnung von  $^{14}\text{C}$  in der Biosphäre durch das stabile  $^{12}\text{C}$ .

Bei der Energiegewinnung durch Kernspaltung entsteht durch Neutronenreaktionen  $^{14}\text{C}$ . Die wichtigsten Reaktionen sind



Das  $^{14}\text{C}$ , welches im Kühlmittel der Reaktoren oder im Brennstoff gebildet wird, wird im wesentlichen als  $^{14}\text{CO}_2$  und als niedermolekulare Alkane aus den Reaktoren oder als  $^{14}\text{CO}_2$  aus Wiederaufarbeitungsanlagen mit der Abluft freigesetzt.

Da sehr wenig Informationen über Ausmaß und Art der  $^{14}\text{C}$ -Emission aus kerntechnischen Anlagen zur Verfügung stehen, wurde von der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit des Kernforschungszentrums Karlsruhe eine Reihe von Messungen von  $^{14}\text{C}$  in der Abluft verschiedener kerntechnischer Anlagen durchgeführt. Da Alkane und  $^{14}\text{CO}$  keine Bedeutung bei der Dosisbelastung der Bevölkerung durch  $^{14}\text{C}$  haben, wurde ausschließlich die Emission von  $^{14}\text{CO}_2$  gemessen.

## 2. Die Probenahme

Da die Mechanismen der Emission von  $^{14}\text{CO}_2$  mit der Abluft - die Konzentrationen in und die Abgaberaten aus verschiedenen Teilen kerntechnischer Anlagen - nicht bekannt sind, aber diskontinuierliche Abgaben sehr wahrscheinlich sind, wurde eine kontinuierliche Probenahme gewählt.

Aus der Abluftleitung wird ein Teilstrom entnommen, über ein Aerosolfilter geleitet und das  $\text{CO}_2$  in einem NaOH-Wäscher absorbiert. Vor und hinter dem Wäscher ist je eine Sicherheitsflasche installiert. Der Probendurchfluß wird mit einer Trockengasuhr gemessen. Mit einem 250 ml-Wäscher mit 200 ml NaOH und der Probenahme über die Dauer einer Woche, sind Luftdurchsätze von 1 l/min ausreichend, um genügend  $\text{BaCO}_3$  für die Analyse und Messung zu erhalten.

1 M NaOH war bei den ersten Experimenten eingesetzt worden. Der Säuregehalt in der Abluft der WAK (Tab.1) reduzierte den pH 14 auf pH 12. Daher wurde bei den folgenden Experimenten in allen Anlagen 3 M NaOH verwendet. Bei der Verlängerung der Probenahmedauer auf 1 Woche, wurden trotzdem wesentliche Teile der NaOH durch das  $\text{CO}_2$  der Luft verbraucht. Daher wurde die Masse der Experimente mit 5 M NaOH und 1 l/min Probendurchfluß ausgeführt. Unter diesen Umständen wird ca. 20 % der NaOH durch  $\text{CO}_2$  verbraucht.

Wegen der unterschiedlichen Drucke in verschiedenen Abluftsystemen, ist eine Pumpe geeigneter Leistung - am besten eine im weiten Bereich drosselbare Pumpe für maximal einen  $\text{m}^3/\text{h}$  - zu verwenden. Bei höherer Temperatur des Abgases oder im Raum, in welchem die Probenahme erfolgt, muß in geeigneten Abständen  $\text{H}_2\text{O}$  zur NaOH zugesetzt werden. Ist der Unterdruck in der Abluftleitung, in welche der Probenteilstrom zurückgeführt wird, zu hoch, muß nach der Gasuhr der Druck gegenüber Außendruck gemessen werden und der Durchsatz korrigiert werden (Abb. 1).

Die beschriebene Apparatur scheidet  $\text{CO}_2$  nicht quantitativ ab<sup>1)</sup>). Die Rückhaltung ist außerdem vom Durchfluß abhängig. Der Rückhaltegrad des Wäschers wurde bei verschiedenen Durchflüssen mit 3 hintereinandergeschalteten Waschflaschen gemessen. Aus den  $\text{BaCO}_3$ -Mengen aller Wäscher und der  $\text{BaCO}_3$ -Menge der ersten Waschflasche wurde die Rückhaltung berechnet (Abb.2).

### 3. Die Abtrennung von $^{14}\text{C}$ als $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$

Die Abtrennung des  $^{14}\text{C}$  erfolgt wie in der Literatur vielfach beschrieben, durch Fällung des  $^{14}\text{CO}_3^{2-}$  als  $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$ . Die Fällung ist - unabhängig von der NaOH-Konzentration - praktisch quantitativ. Mit je 50-380 ml NaOH, den Konzentrationen 0,15 M bis 5 M, wurden die chemischen Ausbeuten bestimmt nach Zusatz von  $\text{CO}_3^{2-}$  und dem gleichen Volumen an 1 M  $\text{NH}_4\text{Cl}$ . Bei 15 Proben wurde ein Mittelwert von  $100 \pm 2$  % für die chemische Ausbeute der  $\text{BaCO}_3$ -Fällung gemessen.

Trotzdem die Probenahme in den kerntechnischen Anlagen im Kamin, also nach den Aerosolfiltern, erfolgte und obwohl ein Membranfilter dem NaOH-Wäscher vorgeschaltet war, waren alle Proben außer mit gasförmiger auch mit Aerosolaktivität kontaminiert. Mehrere nCi wurden von  $\gamma$ -Strahlern in den NaOH gemessen, welche zur Absorption des  $^{14}\text{CO}_2$  aus der WAK-Abluft eingesetzt wurde. In den 22 Proben wurden  $^{131}\text{J}$ ,  $^{133}\text{J}$ ,  $^{135}\text{J}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{135}\text{X}$  und  $^{212}\text{Pb}$   $\gamma$ -spektrometrisch gefunden. Außerdem wurden bis zu einigen nCi  $^{129}\text{J}$  bestimmt. Um eine Mitfällung der wichtigsten Nuklide von Cs und J zu vermeiden, wurde die Lösung mit  $\text{Cs}^+$  und  $\text{J}^-$  vor der Fällung des  $\text{BaCO}_3$  geträgert. Das aus einer besonders hoch kontaminierten NaOH-Probe gewonnene  $\text{BaCO}_3$  wurde  $\gamma$ -spektrometrisch geprüft. Die Konzentrationen der genannten  $\gamma$ -Strahler lagen im  $\text{BaCO}_3$  unter der Nachweisgrenze und unter einigen pCi/m<sup>3</sup> Abluft.

---

<sup>1)</sup> Bei späteren Versuchen mit der Sicherheitswaschflasche nach Thielert mit Fritte D<sub>1</sub>, 500 ml, Nr. 498 der Fa. Otto Fritz GmbH (NORMAG), 6236 Hofheim, wurde eine quantitative Absorption erreicht.

Mit der Fällung des  $\text{CO}_3^{2-}$  als  $\text{BaCO}_3$  kann auch der inaktive  $\text{CO}_2$ -Gehalt der Abluft gemessen werden. Allerdings sind dann einige Vorsichtsmaßnahmen einzuhalten. Die übliche Herstellung von NaOH-Lösung durch Auflösung gewaschener NaOH-Plätzchen, führt bei 5 M NaOH nicht mehr zu einer  $\text{CO}_3^{2-}$ -freien Lösung. Selbst wenn die Plätzchen sorgfältig mit destilliertem Wasser gewaschen werden und das Lösen unter Luftausschluß erfolgt, bleibt ein zu bestimmender Blindwert von Karbonat in der 5 M NaOH. Bei der Fällung und beim Abfiltrieren muß rasch gearbeitet werden, um die Absorption von  $\text{CO}_2$  aus der Umgebungsluft zu vermeiden.

#### 4. Arbeitsvorschrift

1. Die 200 ml 5 M NaOH werden nach der  $\gamma$ -Spektrometrie mit destilliertem Wasser auf 400 ml aufgefüllt und mit je 1 ml  $\text{J}^-$ - und  $\text{Cs}^+$ -Lösung, je 30 mg, versetzt. 10 ml Hydrazinhydrat, 24 %ig, werden zugesetzt.
2. 100 ml werden aus dieser Lösung entnommen, 100 ml 1 M  $\text{NH}_4\text{Cl}$  wird zugesetzt und es wird zum Sieden erhitzt. Es werden 40 ml 1 M  $\text{BaCl}_2$  langsam zugesetzt. Die Probe wird über Nacht in einer verschlossenen PÄ-Flasche stehen gelassen.
3. Über ein Blaubandfilter wird filtriert und die Vollständigkeit der Fällung mit 1 M  $\text{BaCl}_2$  am Filtrat geprüft. Das  $\text{BaCO}_3$  wird 5 mal mit je 50 ml heißem, destilliertem  $\text{H}_2\text{O}$  gewaschen. Dann wird mit Alkohol und Aceton gewaschen. Das  $\text{BaCO}_3$  wird bei  $110^\circ\text{C}$  2 h im Trockenschrank getrocknet.
4. Das Filter wird gewogen und das Gewicht des  $\text{BaCO}_3$  bestimmt. Der Filterkuchen wird in einer Reibschale zerkleinert und das Pulver gut gemischt. Mit diesem Pulver erfolgt die Aktivitätsmessung.

## 5. Die Messung des Ba<sup>14</sup>CO<sub>3</sub>

Die Messung von <sup>14</sup>C als Ba<sup>14</sup>CO<sub>3</sub> erfolgt üblicherweise im Flüssigszintillationsspektrometer. Diese Methode ist unersetzlich, wenn der <sup>14</sup>C-Gehalt der Umgebung gemessen werden soll. Bei Abluftmessungen sind die interessierenden Luftkonzentrationen hoch genug, daß eine direkte Ausmessung des Ba<sup>14</sup>CO<sub>3</sub> in einem  $\beta$ -Meßplatz möglich ist. Es wurde ein Meßplatz mit einem Methandurchflußzähler mit 0,3 mg Al/cm<sup>2</sup> Fensterdicke und Antikoinzidenzabschirmung mit einer Nullrate von 7 Impulse/min benutzt. Beim Einsieben von verschiedenen Gewichten von Ba<sup>14</sup>CO<sub>3</sub> mit 0,6  $\mu$ Ci<sup>14</sup>C/g BaCO<sub>3</sub> zeigte sich, daß Ba<sup>14</sup>CO<sub>3</sub> Klümpchen bildete, welche zu sehr unregelmäßiger Flächenbelegung führten. Parallelmessungen führten daher besonders bei niedrigen Gewichten zu wesentlich abweichenden Ergebnissen (Abb.3). Der mittlere Fehler von Parallelmessungen lag bei  $\pm 9$  % bei einem Fehler der Zählstatistik von  $\pm 0,3-0,8$  %.

Eine wesentlich bessere Präparation der Ba<sup>14</sup>CO<sub>3</sub>-Proben wurde wie folgt erreicht. Eine gewogene Menge von BaCO<sub>3</sub> wird auf einem 6 cm  $\phi$  Aluminiumschälchen verteilt, mit Aceton bedeckt und die Koagulationen zerkleinert. Das Aceton läßt man verdampfen und trocknete die Probe kurz im Trockenschrank bei 110<sup>0</sup>C. Die abgekühlte Probe wird mit einer Polyäthylenfolie bedeckt und mit einem polierten Aluminiumstempel gepreßt. So entsteht ein dichtes Präparat mit glatter Oberfläche. 5 2g-Proben, die so hergestellt wurden, hatten eine mittlere Abweichung der Zählraten von  $\pm 4,8$  %. Nach einiger Übung konnte mit weiteren 5 2g-Proben eine mittlere Schwankung des Einzelwertes von  $\pm 1,5$  % erreicht werden. Bei kleineren Einwaagen wurde keine vollständige Bedeckung der Probenschale erreicht und die Abweichungen der Parallelmessungen blieben hoch. Da die  $\beta$ -Teilchen von <sup>14</sup>C eine maximale Reichweite von 27 mg Al/cm<sup>2</sup> haben und 2g-Proben verwendet wurden, erfolgten alle Messungen im Bereich über der Sättigungsschichtdicke (siehe Abb.3). Mit 5 so hergestellten Proben aus je 2 g Ba<sup>14</sup>CO<sub>3</sub> bekannter <sup>14</sup>C-Aktivität wurde der Zählerwirkungsgrad des  $\beta$ -Meßplatzes zu  $0,0179 \pm 0,0005$  gemessen.

Ob die aus den Wäscherlösungen gefällten  $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$ -Proben wirklich  $^{14}\text{C}$  und nur  $^{14}\text{C}$  enthielten, wurde wie folgt geprüft. Fünf Proben wurden mit Al-Folien verschiedenen Flächengewichtes abgedeckt und die nicht absorbierte  $\beta$ -Strahlung jeweils gemessen. Ebenso wurde mit einer reinen  $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$ -Probe verfahren. Alle Impulsraten wurden auf die Rate ohne Al-Abdeckung = 1 normiert. Die so erhaltenen Absorptionskurven wurden miteinander verglichen (Abb.4 bis 8). Alle Werte stimmen bis zu 1/100 der nichtabgeschirmten Impulsrate sehr gut mit den vom reinen  $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$  gewonnenen Absorptionsdaten überein.

Wegen der leichten Abweichungen der Absorptionskurven der WAK-Proben im Bereich von 0,01 der Rate ohne Abschirmung, wurden zwei WAK-Proben wie folgt behandelt. In der in Abb.9 wiedergegebenen Apparatur wurde  $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$  mit  $\text{CH}_3\text{COOH}$  gelöst und das  $^{14}\text{CO}_2$  in einem NaOH-Wäscher absorbiert. Aus dieser NaOH-Lösung und der  $\text{Ba}(\text{CH}_3\text{COO})_2$ -Lösung wurde mit  $\text{Ba}^{2+}$  bzw.  $\text{CO}_3^{2-}$  wieder  $\text{BaCO}_3$  gefällt. Das aus der NaOH-Lösung gefällte  $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$  hatte 97 bzw. 98 % der spezifischen Aktivität des Ausgangsmaterials. Aus der Acetatlösung wurde ein  $\text{BaCO}_3$  gewonnen, in dem 0,6 % bzw. 0,3 % der spezifischen Aktivität des Ausgangsmaterials gemessen wurden (Abb.9). Daraus wurde geschlossen, daß bei den in den WAK-Proben und mehr noch in den weniger durch andere Nuklide verunreinigten anderen Proben praktisch alle  $\beta$ -Aktivität vom  $^{14}\text{C}$  stammt.

#### 6. Auswertung der Messungen

Die Berechnung der Aktivitätskonzentration von  $^{14}\text{CO}_2$  in der Abluft und der Jahresemission von  $^{14}\text{CO}_2$  aus einer kerntechnischen Anlage erfolgte mit den unten angegebenen Formeln:

Aktivitätskonzentration von  $^{14}\text{CO}_2$ ,  $A_L$ :

$$A_L = \frac{G_{\text{BaCO}_3} \cdot V_G \cdot R_N}{2,22 \cdot \eta_{\text{ph}} \cdot \eta_{\text{ch}} \cdot \eta_W \cdot V_P \cdot V_L} \quad \text{in} \quad \frac{\text{pCi}^{14}\text{C}}{\text{m}^3}$$

$G_{\text{BaCO}_3}$	Gewicht von $\text{BaCO}_3$ in g, das aus $V_p$ gefällt wurde
$V_p$	Probenvolumen der NaOH in ml
$V_G$	Gesamtvolumen der NaOH in ml
$V_L$	Probenluftvolumen in $\text{m}^3$
$R_N$	Nettoimpulsrate in $\text{min}^{-1}$
$\eta_{\text{ph}}$	Zählerwirkungsgrad des Detektors = 0,0179
$\eta_{\text{ch}}$	Chemische Ausbeute = 1,00
$\eta_W$	Wirkungsgrad des Wäschers

Jahresemission  $A_E$ :

$$A_E = 8,76 \cdot 10^{-9} \cdot A_L \cdot D \text{ in } \frac{\text{Ci}}{\text{a}}$$

D Luftdurchsatz des Abluftsystems  
in  $\text{m}^3/\text{h}$

Der mittlere Fehler eines Meßwertes von  $A_L$  setzt sich zusammen aus dem Fehler der Zählstatistik,  $\pm 8\%$  für den Einzelmeßwert von  $\eta_{\text{ch}}$ ,  $\pm 1,5\%$  für  $\eta_{\text{ph}}$  und für die Präparation und ungefähr  $\pm 5\%$  als Fehler für  $\eta_W$ . Die  $\pm 1,5\%$  sind als Mindestfehler der Zählstatistik anzusehen. Der zu erwartende Fehler von  $A_L$  beträgt daher  $\pm 10\%$ . Die  $2\sigma$ -Nachweisgrenze liegt bei  $13 \text{ pCi } ^{14}\text{C}/\text{m}^3$  bei einer 1 000 min-Messung und liegt damit ca. um den Faktor 10 über dem natürlichen Untergrund.

## 7. Ergebnisse der $^{14}\text{CO}_2$ -Messungen in der Abluft kerntechnischer Anlagen

$^{14}\text{CO}_2$  wurde in der Kaminabluft der schwerwassermoderierten Reaktoren FR 2 und MZFR, der Druckwasserreaktoren KWO und Biblis A und in der Kaminabluft der WAK und der FERAB gemessen. Die Probenahmezeiten liegen je nach Anlage zwischen 5 und 15 Wochen (siehe Tab.1).

## FR 2

Während der Betriebszeit wurden Luftkonzentrationen zwischen 1 und 5 nCi  $^{14}\text{CO}_2/\text{m}^3$  gemessen. Die zu Vergleichszwecken hochgerechnete Jahresemission betrug aufgrund der gemessenen  $^{14}\text{CO}_2$ -Messungen im Mittel 2,4 Ci. Dabei wurden die jeweils zwischen 87 000  $\text{m}^3/\text{h}$  und 118 000  $\text{m}^3/\text{h}$  schwankenden Kamindurchsätze berücksichtigt (Tab. 3 u. 4). Die theoretische  $^{14}\text{C}$ -Produktion setzt sich zusammen aus dem der Leistung von 44 MW entsprechenden Anteil im  $\text{D}_2\text{O}$  und der bei der Aktivierung der Kühlluft des biologischen Schildes aufgebauten  $^{14}\text{C}$ -Aktivität. Der 1. Teil wurde mit den Daten aus Tabelle 2 für im Kühlmittel von Leichtwasserreaktoren produziertes  $^{14}\text{C}$  berechnet; der 2. Teil wurde aus der bekannten Abgabe von  $1,1 \cdot 10^4 \text{ Ci } ^4\text{Ar}/\text{Monat}$  zu  $0,19 \text{ Ci } ^{14}\text{C}/\text{Monat}$  bestimmt [4].

Während der Betriebspause wurde nur ca. 8 % der mittleren Jahresemissionsrate erreicht. Die Emission dieses Restes kann vom Graphitblock der thermischen Säule oder aus Versuchsanlagen stammen. Wahrscheinlicher ist ein langsames Abdampfen von  $^{14}\text{CO}_2$  aus dem  $\text{D}_2\text{O}$  und aus der zur He-Reinigung verwendeten Aktivkohle.

## MZFR

Während der Betriebszeit lagen die Luftkonzentrationen zwischen 0,4 und 1,6 nCi  $^{14}\text{CO}_2/\text{m}^3$ , wenn man vom ersten Meßwert, erhalten vom 20.7.-22.7.1976, absieht. Außer diesem besonders hohen Wert ist überraschend, daß die zweitgrößte Luftkonzentration in der Betriebspause gemessen wurde.

Die zum Vergleich hochgerechnete Jahresemission beträgt  $2,0 \text{ Ci } ^{14}\text{CO}_2/\text{a}$ , wenn der Wert für die Probe vom 20.7.-22.7.1976 ausgeklammert wird. Zur Umrechnung wurde der Durchsatz von 220 000  $\text{m}^3$  Kaminabluft/h verwendet.

Auch für die Berechnung der  $^{14}\text{C}$ -Produktion im  $\text{D}_2\text{O}$  des MZFR wurden die Daten aus Tabelle 2 verwendet (Tab. 4 und 5).

### KWO

Die Konzentrationen in der Kaminabluft vom KWO schwanken zwischen 0,4 und 1,8 nCi  $^{14}\text{CO}_2/\text{m}^3$ . Die mittlere Jahresemission, berechnet aus den zwischen dem 30.9.1976 und dem 12.11.1976 gemessenen  $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentrationen und aus dem Luftdurchsatz von 130 000  $\text{m}^3/\text{h}$ , liegt bei 1,1 Ci  $^{14}\text{CO}_2/\text{a}$ . Dies entspricht den Erwartungen, wenn man berücksichtigt, daß 3,6 Ci  $^{14}\text{C}/\text{a}$  im Kühlmittel gebildet werden und dieses  $^{14}\text{C}$  aus einem DWR vor allem als niedermolekulare Alkane emittiert wird. Der Anteil der Anlagenabluft an der  $^{14}\text{CO}_2$ -Emission ist vernachlässigbar niedrig. Es wurde mit einem Luftdurchsatz von 500  $\text{m}^3/\text{h}$  gerechnet (Tab.4, 6, 7).

### Kernkraftwerk Biblis A

Die Konzentrationen in der Kaminabluft liegen zwischen 0,2 und 1,1 nCi  $^{14}\text{CO}_2/\text{m}^3$ . Die aus diesen Konzentrationen und 180 000  $\text{m}^3/\text{h}$  hochgerechnete Jahresemission von 0,7 Ci  $^{14}\text{CO}_2/\text{a}$  liegt sehr weit unter dem Produktionswert von 12,6 Ci  $^{14}\text{C}/\text{a}$  (Tab. 4 und 8).

### FERAB

Die Konzentrationen liegen zwischen  $\leq 0,2$  und 19 nCi  $^{14}\text{CO}_2/\text{m}^3$ . Die große Differenz bestätigt die Erwartung, da  $^{14}\text{C}$  im Brennstoff der FERAB - radioaktive Abfälle aus dem Lande Baden-Württemberg - unregelmäßig enthalten ist. Die errechnete Jahresemission von ca. 2 Ci  $^{14}\text{CO}_2$  ist daher eine ungefähre Angabe (Tab. 9).

### WAK

Die  $^{14}\text{CO}_2$ -Emission während der Betriebspause nimmt zwischen dem 23.7.1976 und dem 1.10.1976 um den Faktor 10 ab. Die Abluftkonzentrationen liegen zwischen 106 und 11 nCi  $^{14}\text{CO}_2/\text{m}^3$ . Mit 500  $\text{m}^3$  Abgas/h errechnet man aus den gemessenen Abluftkonzentrationen die Emissionen von  $^{14}\text{CO}_2$ . Die Halbwertszeit der Abnahme der  $^{14}\text{CO}_2$ -Emission liegt bei ca. 3 Wochen.

Während der Zeit der Auflösungen wurden Luftkonzentrationen zwischen 1,1 und 3,2  $\mu\text{Ci } ^{14}\text{CO}_2/\text{m}^3$  gemessen. Bei 10 Auflösungen von DWR-Brennstoff wurden im Mittel  $61 \pm 15$  % des theoretisch erwarteten  $^{14}\text{C}$ -Gehaltes während der Probenahmezeit als  $^{14}\text{CO}_2$  emittiert. Während der 14 Auflösungen von SWR-Brennstoff wurden im Mittel  $79 \pm 29$  % des theoretisch erwarteten  $^{14}\text{C}$ -Gehaltes des Brennstoffes im Probenahmezeitraum als  $^{14}\text{CO}_2$  abgegeben. Berechnet wurde der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt des Brennstoffes nach Tabelle 2 und mit dem bekannten Abbrand. Berücksichtigt man, daß ein wesentlicher Rest in Betriebspausen emittiert wird, stimmen diese Ergebnisse sehr gut mit der Theorie überein (Tab. 10, 11, 12).

Sieht man von den Ergebnissen beim MZFR ab, liegen alle gemessenen Emissionen des sicherheitstechnisch relevanten  $^{14}\text{CO}_2$  unter, zum Teil wesentlich unter den für Kühlmittel und Brennstoff berechneten  $^{14}\text{C}$ -Inventaren bzw. Jahresproduktionen.

#### 8. Dosisbelastungen durch $^{14}\text{CO}_2$ in der Umgebung des KFZ

Die höchsten  $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentrationen in der Umgebungsluft des Kernforschungszentrums Karlsruhe werden durch die WAK verursacht. Bei 30 t/a Durchsatz und 25 000 MWd/t wäre mit einer Jahresemission von ca. 10 Ci  $^{14}\text{CO}_2$  zu rechnen. Dabei wurde quantitative Emission des  $^{14}\text{C}$  als  $^{14}\text{CO}_2$  angenommen. Mit einem Ausbreitungsfaktor von  $1,7 \cdot 10^{-6}$  s/ $\text{m}^3$  für das Hauptbeaufschlagungsgebiet, errechnet man 0,56 pCi  $^{14}\text{CO}_2/\text{m}^3$  bzw. 3,5 pCi  $^{14}\text{C}/\text{g } ^{12}\text{C}$ . Dies entspricht für diesen Punkt einer Erhöhung des natürlichen  $^{14}\text{C}$ -Gehaltes um 47 %.

Da der Ort höchster Bodenkonzentration bewaldet ist, kann als relevanter Belastungspfad nach § 45 [5], nur die Ingestion von Beeren, Pilzen und Wild angesehen werden. Da diese Nahrungsmittel vom Hauptbeaufschlagungsgebiet auch bei kritischen Personen sicher < 1 % der jährlichen Kohlenstoffaufnahme darstellen, erwartet man durch die  $^{14}\text{CO}_2$ -Emissionen der WAK eine Dosisbelastung von < 0,01 mrem/a. Dieser Wert liegt um mehr als den Faktor 100 unter der natürlichen  $^{14}\text{C}$ -Belastung.

Der Vollständigkeit halber soll außer dieser Überlegung, wie für  $^{14}\text{C}$  üblich, auch das spezifische Aktivitätsmodell auf die  $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration von  $0,56 \text{ pCi/m}^3$  Luft angewandt werden. Es soll aber ausdrücklich betont werden, daß diese Methode nicht geeignet ist, reale Dosisbelastungen zu errechnen, sondern ausschließlich die Berechnung einer oberen Grenze der Dosisbelastung erlaubt.

Vorausgesetzt wird, daß die kritische Person am Hauptbeaufschlagungsgebiet lebt und auf dem relativ kleinen Raum der maximalen Luftkonzentration seinen gesamten C-Bedarf deckt. Gemüse, Getreide, Kartoffeln, Obst, Schwein, Rind, Hühner und Fische werden auf dem Hauptbeaufschlagungsgebiet gezogen. Die Ernährung der Haustiere erfolgt mit am Ort gezüchtetem Futter u.s.w. Man errechnet eine obere Grenze der Dosisbelastung dieser kritischen Person, welche nicht überschritten werden kann, von  $0,8 \text{ mrem/a}$ . Es ist aber nochmals zu betonen, daß dieser Grenzwert nicht nur in der Umgebung des KFZ Karlsruhe nicht erreicht werden kann, sondern, daß die hier betrachtete kritische Person in keinem Industriestaat zu finden sein dürfte.



## Literatur

- [1] J. Rudolph, W. Weiss, Atomwirtschaft, September/Oktober 1976, S. 485
  
- [2] G.N. Kelly, J.A. Jones, P. M. Bryant, F. Morley  
"The predicted radiation exposure of the population of the European Community resulting from discharges of krypton-85, tritium, carbon-14 and iodine-129 from the nuclear power industry to the year 2000", Commission of the European Communities.  
Contract No.079-74-8 PST GB p.10, September 1975
  
- [3] H. Bonka, K. Brüssermann, G. Schwarz  
"Umweltbelastung durch Radiokohlenstoff aus kerntechnischen Anlagen", Reaktortagung, 2.4.1974-5.4.1974, Berlin, S. 454, Anhang
  
- [4] Persönliche Mitteilung von H.-U. Berger, Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, Kernforschungszentrum Karlsruhe.
  
- [5] Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen, 13. Oktober 1976, Bundesgesetzblatt, Teil I, Z 1997A, S. 2905



Tab. 1: Liste der in diesem Bericht verwendeten Abkürzungen für kerntechnische Anlagen

WAK	-	Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe
FR 2	-	Forschungsreaktor 2, Karlsruhe
MZFR	-	Mehrzweckforschungsreaktor, Karlsruhe
FERAB	-	Verbrennungsanlage für feste, brennbare radioaktive Abfälle, Karlsruhe
KWO	-	Kernkraftwerk Obrigheim, Obrigheim
DWR	-	Druckwasserreaktor
SWR	-	Siedewasserreaktor
WAA	-	Wiederaufarbeitungsanlage

Tab. 2: Produktion von  $^{14}\text{C}$  im Kühlmittel, dem Brennstoff und den Brennstoffhüllen und seine Freisetzung [3].

$^{14}\text{C}$ produziert im/ freigesetzt aus	$^{14}\text{C}$ -Produktion in $\text{Ci}/\text{GW}_e \cdot \text{a}$	
	DWR	SWR
Kühlmedium/ Reaktor	11,0	11,2
Brennstoff/WAA	16,0	18,9
Brennstoffhülle/ Endlagerung	3,9	3,0

Tab. 3: Aktivitätskonzentrationen von  $^{14}\text{CO}_2$  in der Kaminabluft des FR 2. Zu Vergleichszwecken wurde die Emission während der Probenahmezeit auf eine Jahresemission hochgerechnet.

Probenahme 1976 von bis	$^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration in der Abluft in $\text{pCi}/\text{m}^3$	Hochgerechnete Jahresemission in $\text{Ci}/\text{a}$
15.7.-16.7.	295 <sup>1)</sup> <sup>2)</sup>	2,4
18.8.-25.8.	4 580	
25.8.-1.9.	3 760 <sup>3)</sup>	
1.9.-8.9.	4 940 <sup>4)</sup>	
8.9.-15.9.	2 780	
15.9.-22.9.	975	
22.9.-28.9.	1 260 <sup>5)</sup>	

<sup>1)</sup> Bei der Probenahme wurde ein Wäscher verwendet, dessen Wirkungsgrad nicht bekannt ist; daher erfolgte die Berechnung mit der mittleren  $\text{CO}_2$ -Konzentration entsprechend 2,7 g  $\text{BaCO}_3/\text{m}^3$  Abluft

<sup>2)</sup> Betriebspause von 6 Wochen

<sup>3)</sup> Betriebsunterbrechung am 26.8.1976,  $8^{44}-11^{37}$

<sup>4)</sup> Betriebsunterbrechung am 1.9.1976,  $8^{00}-21^{31}$

<sup>5)</sup> Betriebsunterbrechung am 27.9.1976,  $8^{00}-$

Tab. 4: Vergleich der berechneten  $^{14}\text{C}$ -Produktion im Kühlmittel mit der gemessenen  $^{14}\text{CO}_2$ -Emission aus verschiedenen Kernreaktoren

Anlage	Art und Leistung des Reaktors in $\text{MW}_e$ <sup>1)</sup>	Berechnete $^{14}\text{C}$ -Produktion im Kühlmittel in Ci/a <sup>2)</sup>	Gemessene $^{14}\text{CO}_2$ -Emission in Ci/a	in % der Theorie
Kernkraftwerk Biblis A	DWR/1145	12,6	0,7	6
KWO Obrigheim	DWR/328	3,6	1,1	31
Kaminabluft:			0,025	0,7
Anlagenabluft:				
MZFR Karlsruhe	SWMR/50	0,55	2,0	360 <sup>3)</sup>
FR 2 Karlsruhe	SWMR/15	2,5	2,4	97

<sup>1)</sup> DWR = Druckwasserreaktor, SWMR = Schwerwassermoderierter Reaktor

<sup>2)</sup> 11 Ci  $^{14}\text{C}/\text{GW}_e \cdot \text{a}$  wurden zur Rechnung verwendet [ 3 ]

<sup>3)</sup> Die Messung vom 20.7.-22.7. wurde verworfen.

Tab. 5: Aktivitätskonzentrationen von  $^{14}\text{CO}_2$  in der Kaminabluft des MZFR. Zu Vergleichszwecken wurde die Emission während der Probenahmezeit auf eine Jahresemission hochgerechnet.

Probenahme 1976 von bis	$^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration in der Abluft in $\mu\text{Ci}/\text{m}^3$	Hochgerechnete Jahresemission in Ci/a
20.7.-22.7.	13 700 <sup>1)</sup>	2,0 <sup>3)</sup>
18.8.-25.8.	1 630 <sup>2)</sup>	
25.8.-1.9.	1 630	
1.9.-8.9.	438	
8.9.-15.9.	852	
15.9.-22.9.	444	
22.9.-29.9.	1 127	

<sup>1)</sup> Bei der Probenahme wurde ein Wäscher verwendet, dessen Wirkungsgrad nicht bekannt ist. Daher erfolgte die Berechnung mit der mittleren  $\text{CO}_2$ -Konzentration entsprechend  $2,7 \text{ g BaCO}_3/\text{m}^3$  Abluft.

<sup>2)</sup> Betriebspause

<sup>3)</sup> Die Messung vom 20.7.-22.7. wurde verworfen

Tab. 6: Aktivitätskonzentrationen von  $^{14}\text{CO}_2$  in der Kaminabluft des Kernkraftwerkes Obrigheim. Zu Vergleichszwecken wurde die Emission während der Probenahmezeit auf eine Jahresemission hochgerechnet.

Probenahme 1976 von bis	$^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration in der Abluft in $\mu\text{Ci}/\text{m}^3$	Hochgerechnete Jahresemission in $\text{Ci}/\text{a}$
30.9.-6.10.	1 770	1,1
6.10.-15.10.	359 <sup>1)</sup>	
15.10.-22.10.	461	
22.10.-29.10.	954	
29.10.-4.11.	1 520	
5.11.-12.11.	1 180	

<sup>1)</sup> Der Reaktor war vom 11.10.1976 bis zum 13.10.1976 abgeschaltet.

Tab. 7: Aktivitätskonzentrationen von  $^{14}\text{CO}_2$  in der Anlagenabluft des Kernkraftwerkes Obrigheim. Zu Vergleichszwecken wurde die Emission während der Probenahmezeit auf eine Jahresemission hochgerechnet.

Probenahme 1976 von bis	$^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration in der Abluft in $\mu\text{Ci}/\text{m}^3$	Hochgerechnete Jahresemission in Ci/a
30.9.-6.10.	2 110	0,025
6.10.-15.10.	20 600 <sup>1)</sup>	
15.10.-22.10.	1 800	
22.10.29.10.	981	
29.10.-4.11.	1 280	
5.11.-12.11.	1 850	

<sup>1)</sup> Der Reaktor war vom 11.10.1976 bis zum 13.10.1976 abgeschaltet

Tab. 8: Aktivitätskonzentrationen von  $^{14}\text{CO}_2$  in der Kaminabluft des Kernkraftwerkes Biblis A. Zu Vergleichszwecken wurde die Emission während der Probenahmezeit auf eine Jahresemission hochgerechnet.

Probenahme 1976 von bis	$^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration in der Abluft in $\text{pCi}/\text{m}^3$	Hochgerechnete Jahresemission in $\text{Ci}/\text{a}$
8.10.-14.10.	210	0,7
14.10.-21.10.	250	
21.10.-28.10.	385	
28.10.-4.11.	293	
4.11.-11.11.	1 060 <sup>1)</sup>	

<sup>1)</sup> Betriebspause ab 8.11.1976

Tab. 9: Aktivitätskonzentrationen von  $^{14}\text{CO}_2$  in der Kaminabluft der FERAB. Zu Vergleichszwecken wurde die Emission während der Probenahmezeit auf eine Jahresemission hochgerechnet.

Probenahme 1976 von bis	$^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration in der Abluft in $\text{pCi}/\text{m}^3$	Hochgerechnete Jahresemission in Ci/a
16.7.-19.7.	167 <sup>1) 3)</sup>	ca. 2
19.8.-25.8.	18 800	
25.8.-1.9.	1 770	
1.9.-8.9.	232	
8.9.-15.9.	385	
15.9.-22.9.	$\leq 166$ <sup>2)</sup>	
22.9.-28.9.	2 180	

<sup>1)</sup> Bei der Probenahme wurde ein Wäscher verwendet, dessen Wirkungsgrad nicht bekannt ist; daher erfolgte die Berechnung mit der mittleren  $\text{CO}_2$ -Konzentration entsprechend  $2,7 \text{ g BaCO}_3/\text{m}^3$  Abluft.

<sup>2)</sup>  $2\sigma$ -Nachweisgrenze berechnet auf der Basis der Zählstatistik

<sup>3)</sup> Betriebspause

Tab. 10: Aktivitätskonzentrationen von  $^{14}\text{CO}_2$  in der Kaminabluft der WAK. Zu Vergleichszwecken wurde die Emission während der Probenahmezeit auf eine Jahresemission hochgerechnet. In der Probenahmezeit wurde kein Brennstoff aufgelöst.

Probenahme 1976 von bis	$^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration in der Abluft in $\text{nCi/m}^3$	Hochgerechnete Jahresemission in $\text{mCi/d}$
23.7.-26.7.	106 <sup>1)</sup>	1,1
26.7.-28.7.	44 <sup>1)</sup>	0,5
3.8.-6.8.	46	0,5
6.8.-9.8.	57	0,6
9.8.-13.8.	65	0,7
13.8.-16.8.	48	0,5
16.8.-20.8.	41	0,4
20.8.-26.8.	37	0,4
26.8.-2.9.	21	0,2
2.9.-9.9.	16	0,2
9.9.-16.9.	23	0,3
16.9.-23.9.	18	0,2
23.9.-1.10.	11	0,1

<sup>1)</sup> Bei der Probenahme wurde ein Wäscher verwendet, dessen Wirkungsgrad nicht bekannt ist. Daher erfolgte die Berechnung mit der mittleren  $\text{CO}_2$ -Konzentration, welche in den anderen Proben in der WAK-Abluft gemessen wurde.

Tab. 11: Aktivitätskonzentrationen von  $^{14}\text{CO}_2$  in der Kaminabluft der WAK. Die Emissionen während der Probenahmezeit werden angegeben. Es wurde Brennstoff aufgelöst.

Probenahme 1976 von bis	$^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration in der Abluft in $\mu\text{Ci}/\text{m}^3$	Während der Probenahme emittiertes $^{14}\text{CO}_2$ in mCi/ Zahl der Auflösungen
1.10.-4.10.	1,12	36/2 <sup>1)</sup>
4.10.-6.10.	2,76	60/2
6.10.-12.10.	1,87	122/3
12.10.-15.10.	3,15	102/3
15.10.-19.10.	1,16	50/2
19.10.-22.10.	0,029	0,90/0
22.10.-27.10.	2,53	137/6 <sup>2)</sup>
27.10.-2.11.	2,58	168/3
2.11.-8.11.	2,39	156/3

<sup>1)</sup> Vom 1.10.1976-19.10.1976 wurde Brennstoff vom Kernkraftwerk Obrigheim (Druckwasserreaktor) aufgelöst. Je 140 kg/Auflösung mit 24 500 MWd Abbrand/t wurden eingesetzt.

<sup>2)</sup> Vom 22.10.1976-8.11.1976 wurde Brennstoff vom Kernkraftwerk Gundremmingen (Siedewasserreaktor) aufgelöst. Je 140 kg/Auflösung mit 19 200 MWd Abbrand/t wurden eingesetzt.

Tab.12: Das berechnete  $^{14}\text{C}$ -Inventar in ca. 145 kg Brennstoff, welcher aufgelöst wurde und die gemessene  $^{14}\text{CO}_2$ -Emission aus der WAK

Probenahme 1976 von bis	Abbrand in MWd/t/Zahl der Auflösungen	$^{14}\text{C}$ -Inventar pro Auflösung in mCi	Emittiertes $^{14}\text{CO}_2$ je Auflösung	
			in mCi	in % der Theorie
1.10.-4.10. <sup>1)</sup>	24 500/2	50	18	36
4.10.-6.10.	24 500/2		32	64
6.10.-12.10.	24 500/3		40	80
12.10.-15.10.	24 500/3		31	62
Mittelwert und mittlere Schwankung bei der einzelnen Auflösung			31 <sub>+8</sub>	61 <sub>+15</sub>
15.10.-19.10. <sup>2)</sup>	19 200/2	48	26	54
22.10.-27.10.	19 200/6		26	54
27.10.-2.11.	19 200/3		56	117
2.11.-8.11.	19 200/3		52	108
Mittelwert und mittlere Schwankung bei der einzelnen Auflösung			38 <sub>+14</sub>	79 <sub>+29</sub>

<sup>1)</sup> Brennstoff aus dem Kernkraftwerk Obrigheim. Für diesen Druckwasserreaktor wurden  $16,0 \text{ Ci } ^{14}\text{C}/\text{GW}_e \cdot \text{a}$  angesetzt [ 3 ].

<sup>2)</sup> Brennstoff aus dem Kernkraftwerk Gundremmingen. Für diesen Siedewasserreaktor wurden  $18,9 \text{ Ci } ^{14}\text{C}/\text{GW}_e \cdot \text{a}$  angesetzt [ 3 ].



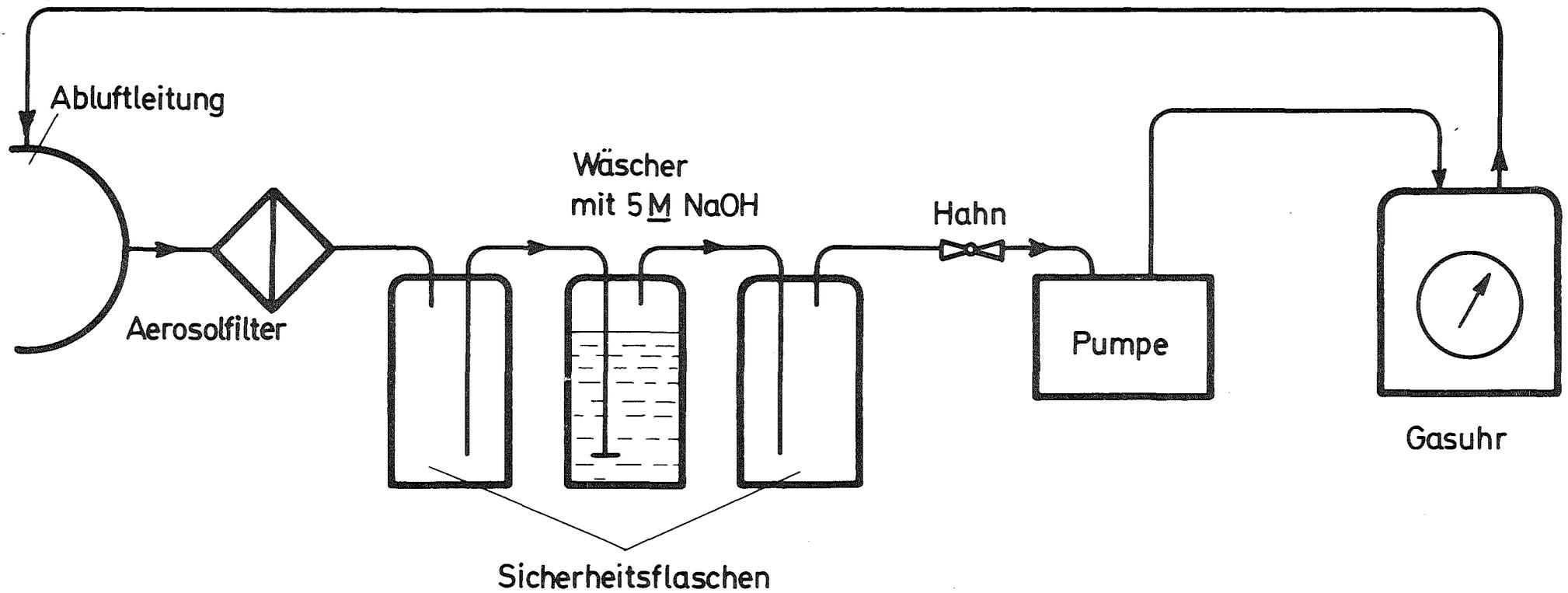


Abb.1: Schematische Darstellung der Apparatur zur Probenahme von  $^{14}\text{CO}_2$  in der Abluft kerntechnischer Anlagen

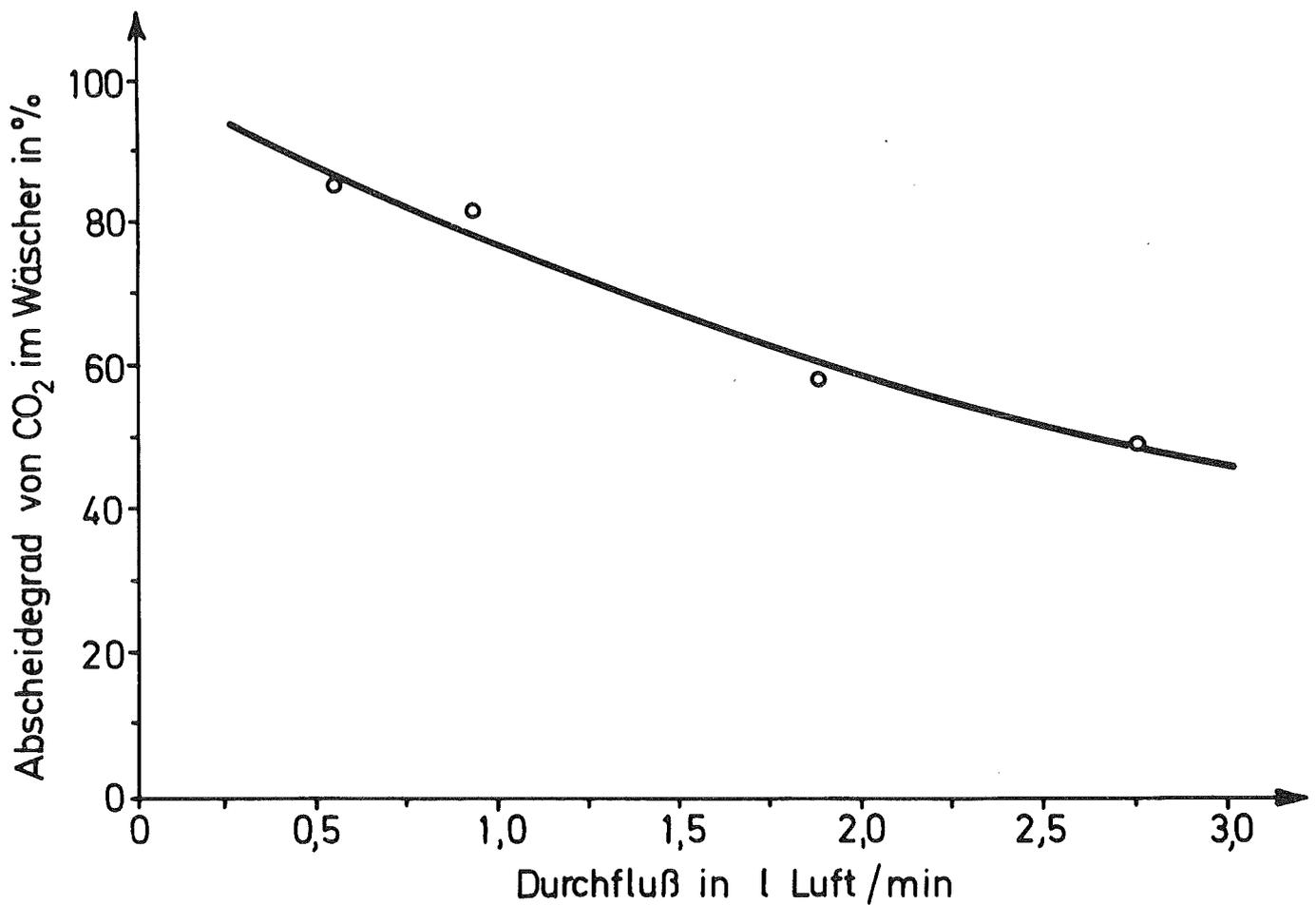


Abb. 2: Abhängigkeit des Abscheidegrades des NaOH-Wäschers gegenüber CO<sub>2</sub> vom Luftdurchsatz.

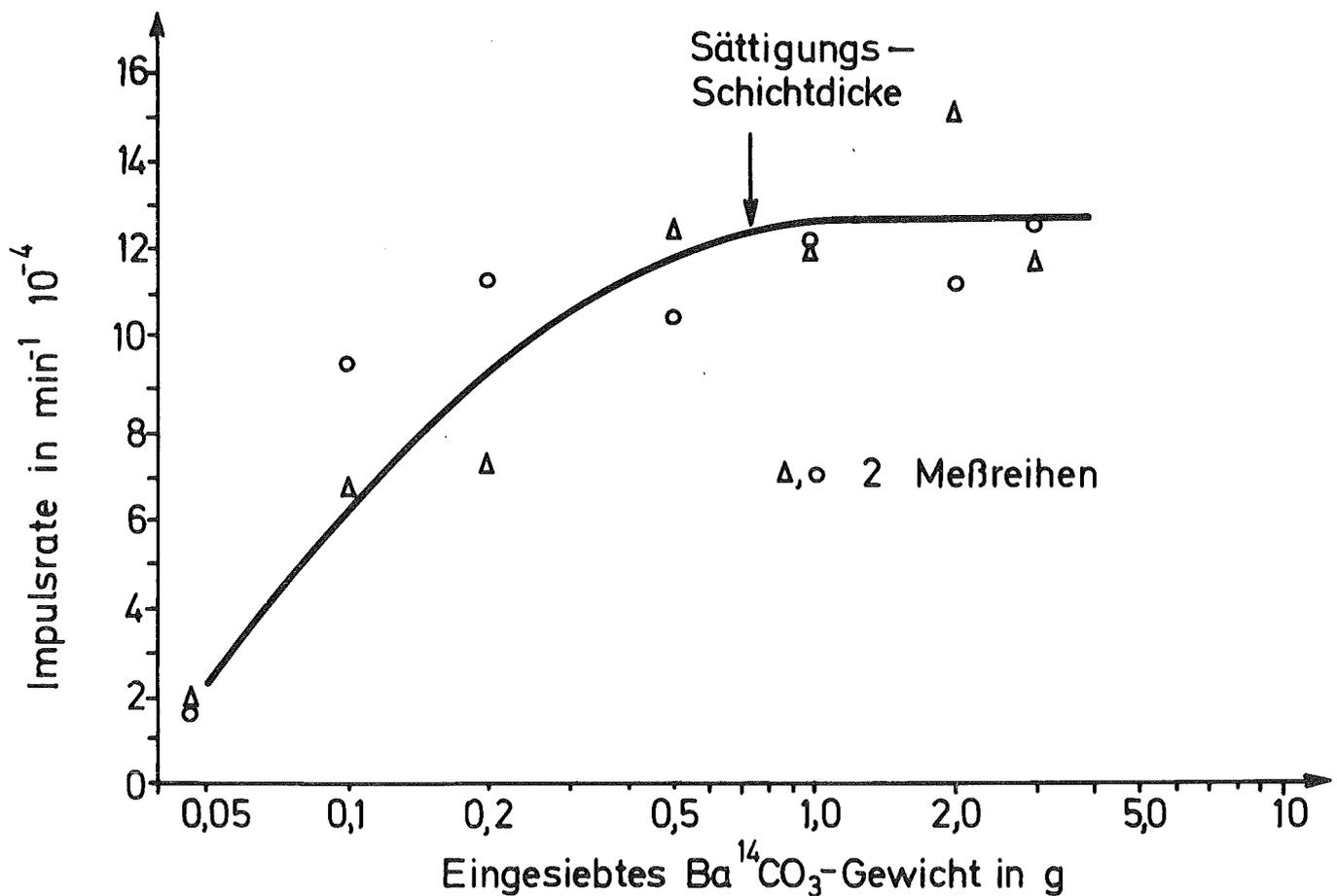


Abb. 3: Abhängigkeit der Impulsrate vom Gewicht des Ba<sup>14</sup>CO<sub>3</sub> das auf einer 6 cmϕ Schale eingesiebt wurde

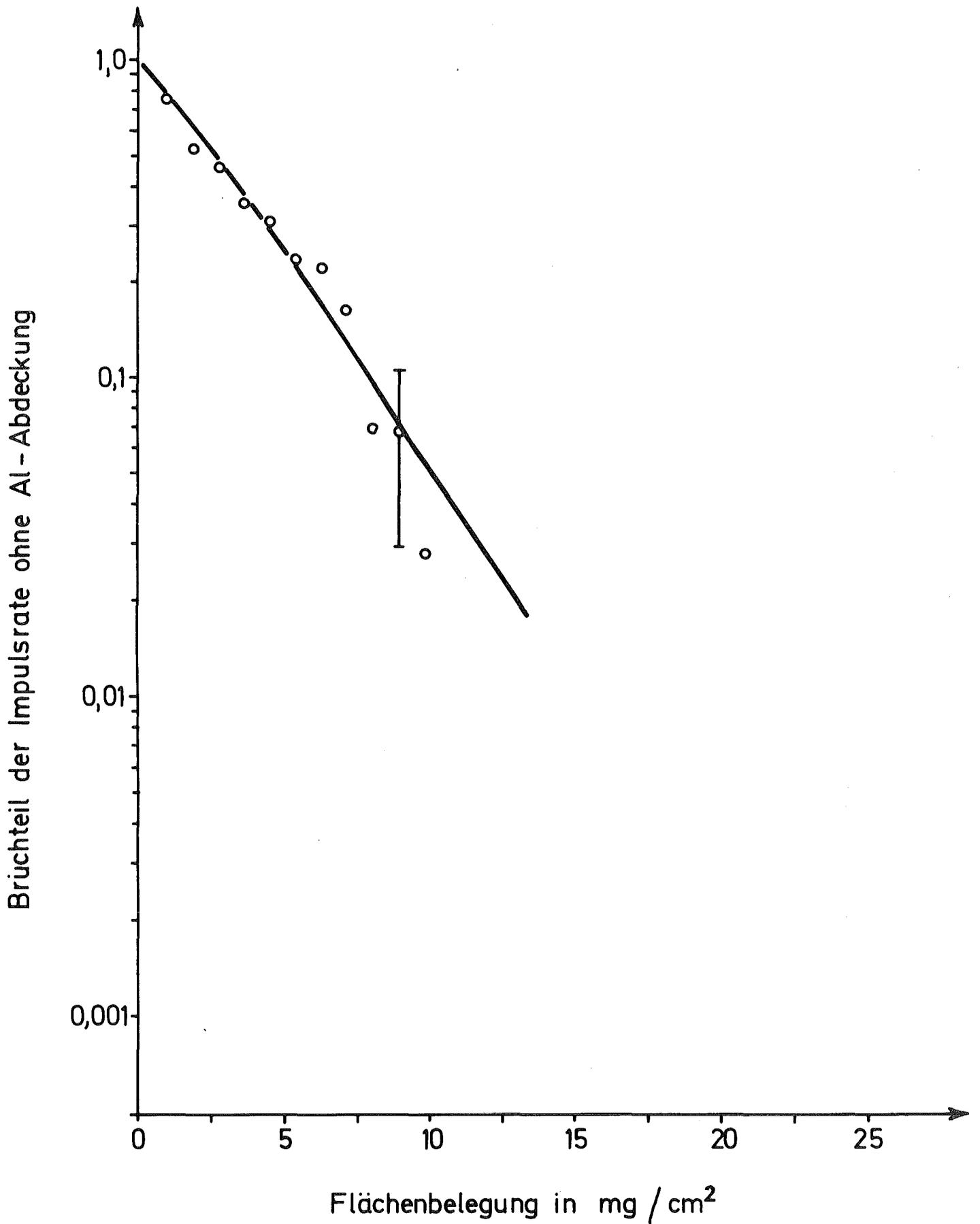


Abb. 4: Vergleich des Anteiles der  $\beta$ -Teilchen aus einer  $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$ -Probe, welcher durch eine Al-Abschirmung dringt, mit dem aus einer reinen  $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$ -Probe (—).  $\sigma$  Fehler der Zählstatistik.  
 Probe, FR 2. 1.9.1976 8.9.1976.



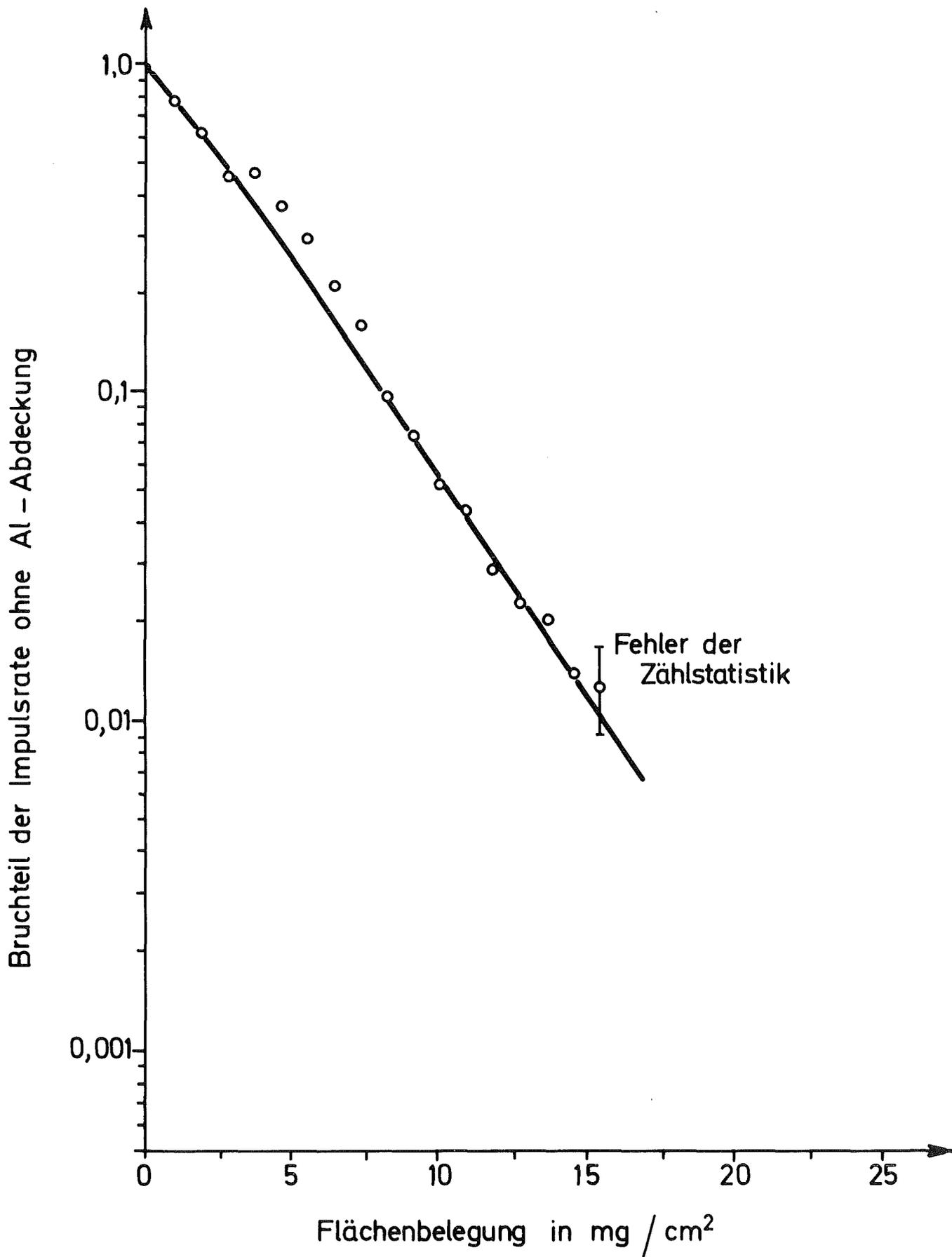


Abb. 6 : Vergleich des Anteiles der  $\beta$ -Teilchen aus einer  $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$ -Probe, welcher durch eine Al-Abschirmung dringt, mit dem aus einer reinen  $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$ -Probe. (—) Probe: FERAB, 19.8.1976. - 25.8.1976.

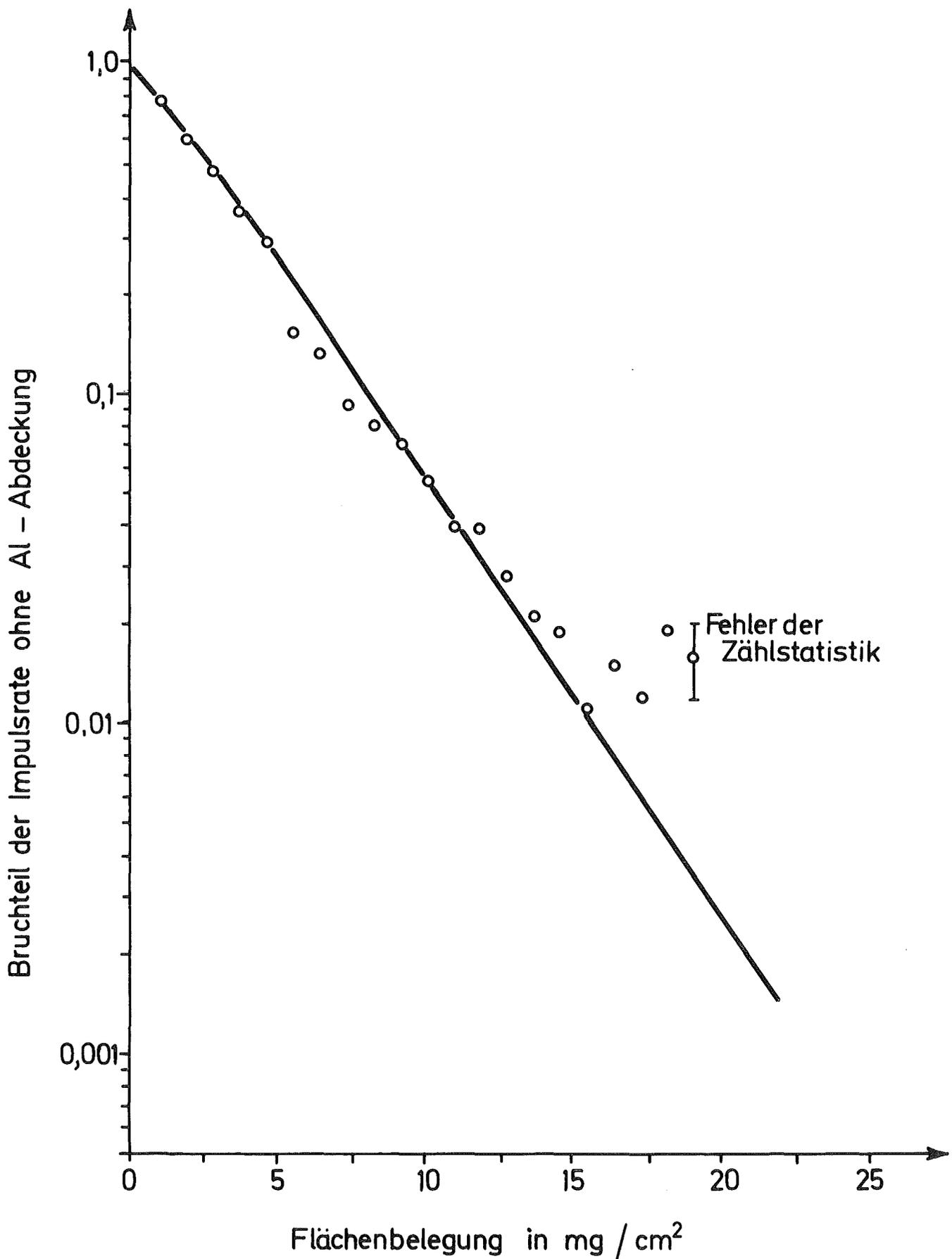


Abb.7: Vergleich des Anteiles der  $\beta$ -Teilchen aus einer  $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$ -Probe, welcher durch eine Al-Abschirmung dringt, mit dem aus einer reinen  $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$ -Probe (—) Probe: WAK, 16.8.1976. - 20.8.1976.

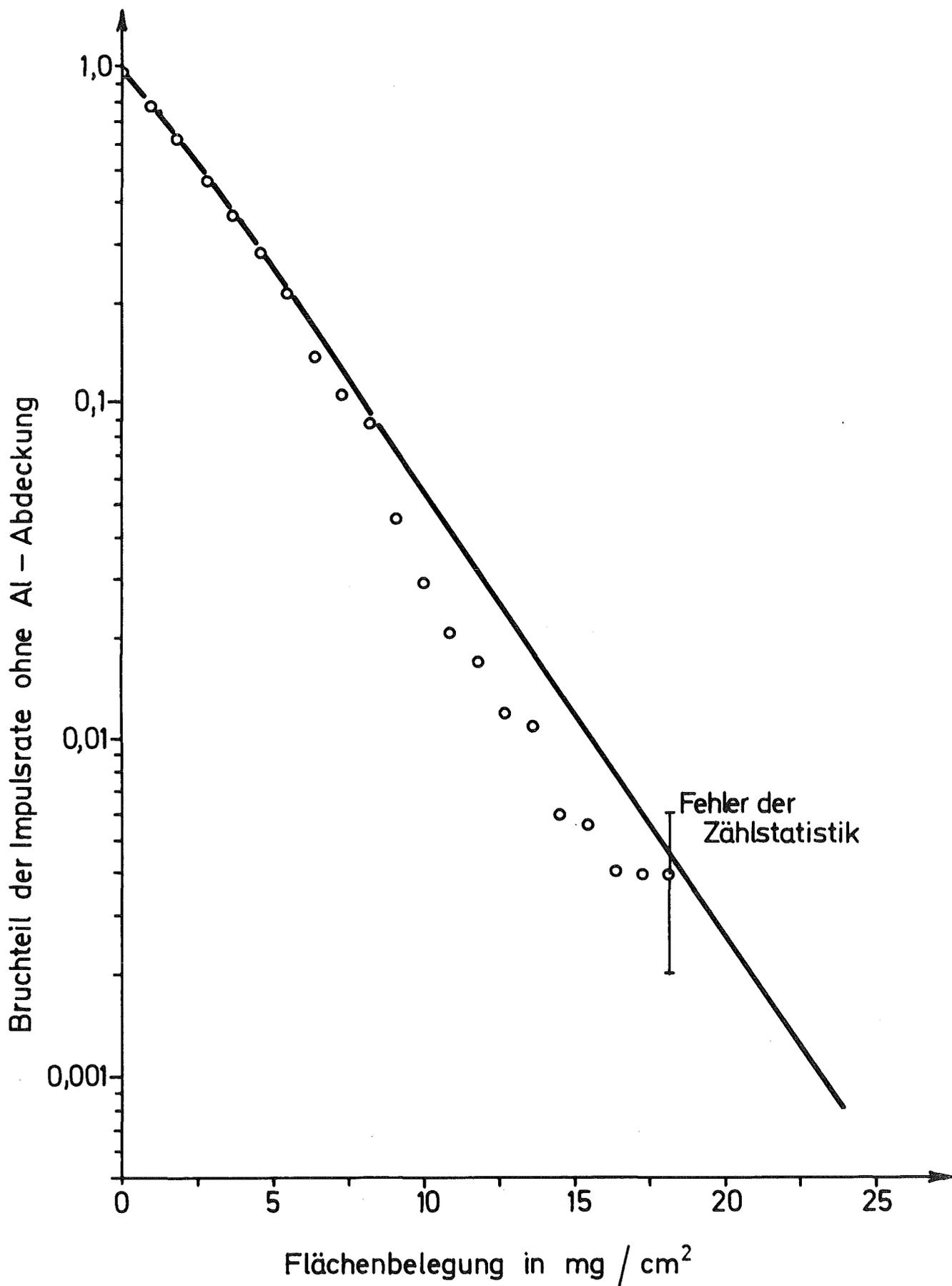


Abb. 8: Vergleich des Anteiles der  $\beta$ -Teilchen aus einer  $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$ -Probe, welcher durch eine Al-Abschirmung dringt, mit dem aus einer reinen  $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$ -Probe (—)  
 Probe: WAK, 9.8.1976. – 13.8.1976.

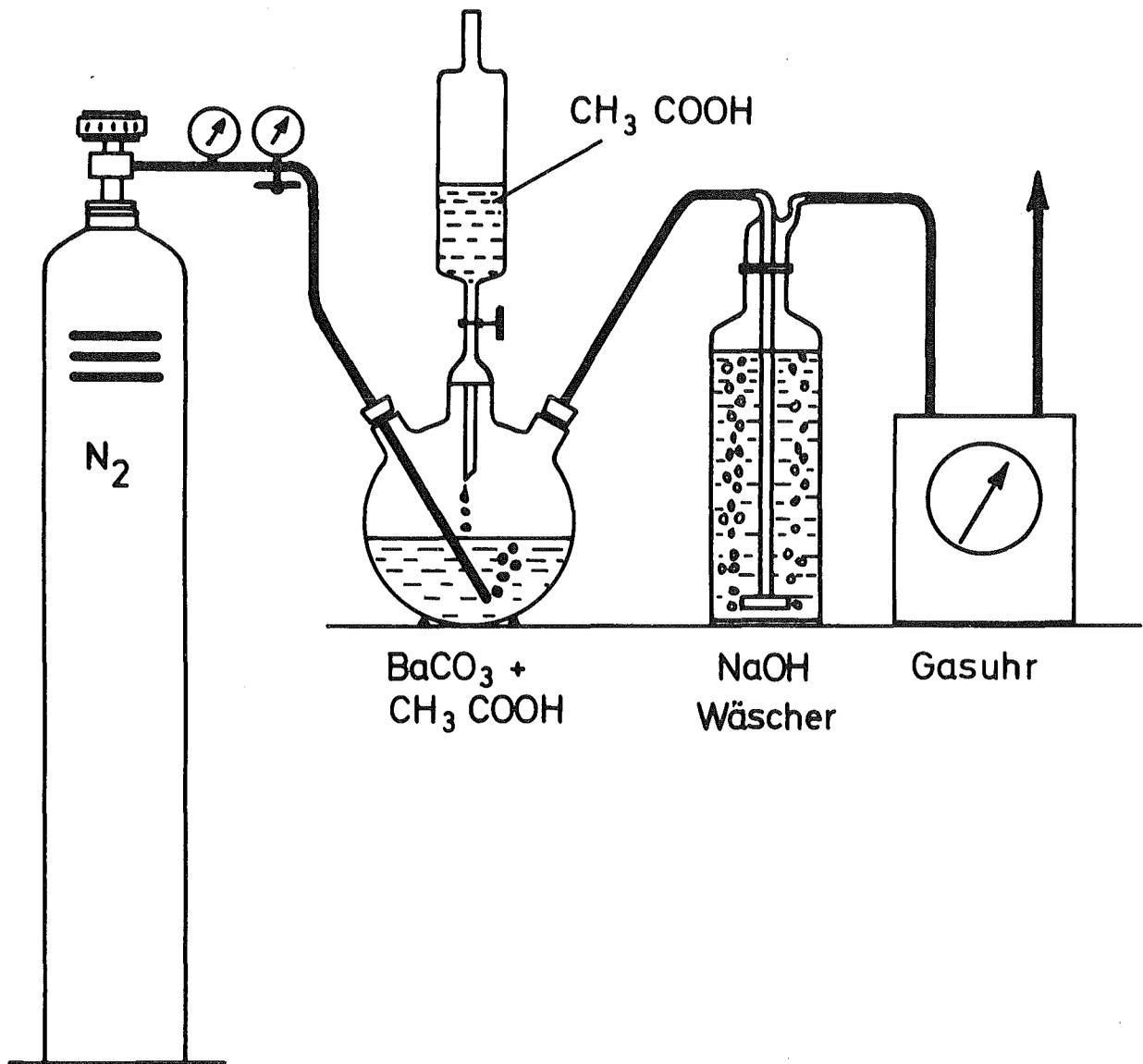


Abb.9. Schematische Darstellung der Apparatur zur Trennung von  $^{14}\text{C}$  als  $\text{CO}_2$  von nicht flüchtigen Aktivitäten

Ich danke Frl. K. Bender für die sorgfältige Durchführung der Arbeiten. Außerdem danke ich für die tatkräftige Unterstützung der Herren: Dr. Schüller, Dr. Herrmann, Wichmann - GWK, Dr. Schröder, Dr. Ambros, Dr. Paffrath - Kernkraftwerk Biblis, Dipl.-Phys. Wagner - KWO, Ing. Olles, Wendler - MZFR und den Mitarbeitern der ASS in der FERAB und im FR 2.

Der Erfahrungsaustausch, die Zusammenarbeit und die Vergleichsmessungen, welche mit Dipl.-Phys. Riedel und Ing. Gesewsky, Neuherberg, Bundesgesundheitsamt durchgeführt wurden, waren für die Arbeiten von großem Nutzen.