

KfK 3510  
März 1983

**Die Bestimmung von Pu-241  
durch  
Flüssigszintillationsspektrometrie  
in der Abluft der  
Verbrennungsanlage FERAB und  
der Wiederaufarbeitungsanlage  
Karlsruhe WAK**

J. M. Godoy, H. Schüttelkopf  
Hauptabteilung Sicherheit

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Hauptabteilung Sicherheit

KfK 3510

Die Bestimmung von Pu-241 durch Flüssigszintillationsspektrometrie  
in der Abluft der Verbrennungsanlage FERAB  
und der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe WAK

J. M. Godoy, H. Schüttelkopf

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 erfolgt über die Emission von Pu-241 mit Abluft und Abwasser. Ebenso gibt es praktisch keine Angaben über die Pu-241-Kontamination der Umgebung kerntechnischer Anlagen.

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

Die Messung von Pu-241 erfolgte in der Abluft der FERAB, der Verbrennungsanlage für radioaktive brennbare Abfälle, und in der Abluft der WAK, der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe. Die monatlichen Emissionsraten der FERAB liegen zwischen 13 und 5030  $\mu\text{Ci}$  und die der WAK zwischen  $<1$  und 7700  $\mu\text{Ci}$ . Das Pu-241/Pu-239+240-Aktivitätsverhältnis betrug im Mittel in der FERAB 93 und in der WAK 160.

Die Dosisexposition der Umgebungsbevölkerung der WAK durch das emittierte Pu-241 ist vernachlässigbar klein.

THE DETERMINATION OF Pu-241 BY LIQUID SCINTILLATION COUNTING  
IN GASEOUS EFFLUENTS OF AN INCINERATION FACILITY, FERAB, AND  
THE KARLSRUHE NUCLEAR REPROCESSING PLANT, WAK.

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 installation 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  $\alpha$ -spectrometer was used.

Pu-241 was measured in the gaseous effluents of an incineration facility for radioactive burnable waste and of the Karlsruhe Nuclear Reprocessing Plant. The monthly release rates of the incineration facility were between 13 and 5030  $\mu\text{Ci}$  Pu-241 and of the reprocessing plant between <1 and 7700  $\mu\text{Ci}$  Pu-241. The activity ratio Pu-241/Pu-239+240 in the plutonium released by the incineration facility and by the reprocessing plant was 93 respectively 160.

The dose exposure of the environmental population of the Karlsruhe Reprocessing Plant caused by 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 Die Analysenmethode für Plutonium	
3.3 Die Flüssigszintillationsspektrometrie von Pu-241	5
3.4 Die Korrektur der Selbstabsorption	7
3.5 Eine alternative Präparation durch Mitfällung von Plutonium	9
3.6 Vergleich der Pu-241-Bestimmungsmethoden	12
4. Die Messung der Pu-241-Emissionen mit der Abluft der WAK und der FERAB	13
4.1 Probenahme und Probenvorbereitung	13
4.2 Die Plutoniumemissionen aus der WAK und der FERAB	13
5. Die Dosisexposition durch Pu-241	21
6. Literatur	22

## 1. Einleitung

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

Pu-241 zerfällt in den  $\alpha$ -Strahler Am-241, welcher eine Halbwertszeit von 433 a hat. Die Aktivität von Am-241 erreicht im Plutonium des Brennstoffes oder im freigesetzten Plutonium nach 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  $\beta$ -Strahlung des Pu-241 und wegen des Fehlens von  $\alpha$ - und  $\gamma$ -Strahlung ist die direkte Messung von Pu-241 schwierig. Die  $\beta$ -Aktivitätsmessungen mit 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  $\alpha$ -Peak des aufgebauten Am-241 kann zur Berechnung des Pu-241-Gehaltes des Präparates herangezogen werden. Der Arbeitsaufwand für diese Methode ist gering; sie ist durchaus anwendbar, wenn die Pu-238-Gehalte der untersuchten Proben niedrig sind. Dies ist der Fall in den meisten Proben des Kernwaffen-Fallouts, besonders 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  $\alpha$ -Energien des Pu-238 und des Am-241 identisch sind, wird bei der Bestimmung des nachgebildeten Am-241 immer ein hoher Untergrundwert zu subtrahieren sein. Dies führt zu einer großen Standardabweichung des Ergebnisses, 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  $\alpha$ -Spektrums des erhaltenen Americium-Präparates. Aus dem Am-241-Gehalt wird das Pu-241 berechnet. Zur Ausbeutenbestimmung wird Am-243 zugesetzt.

Mit dieser Methode sind bereits relativ kurze Wartezeiten ausreichend, da die hohe Empfindlichkeit der  $\alpha$ -Spektrometer vollgenutzt 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  $\alpha$ -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  $\alpha$ -Spektrometrie hergestellten Plutonium-Präparaten die Pu-241-Aktivitäten bestimmt werden können, haben wir uns zur Untersuchung dieser Methodik und deren Anwendung auf Abwasser-, Abluft- und Umweltproben entschlossen.

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

### 3. Experimenteller Teil

#### 3.1 Geräte und Chemikalien

Flüssigszintillationsspektrometer, LS 7800 der Firma Beckmann mit Spektrumanalysenprogramm.

20-ml-Probenfläschchen aus Polyäthylen

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

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 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<sub>3</sub>- und HNO<sub>3</sub>/Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>-Lösungen, aus einer Extraktion mit Trioctylphosphinoxid/Cyclohexan, einer Rückextraktion mit Ascorbinsäure/HCl, der Mitfällung des Plutoniums mit LaF<sub>3</sub> 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.

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

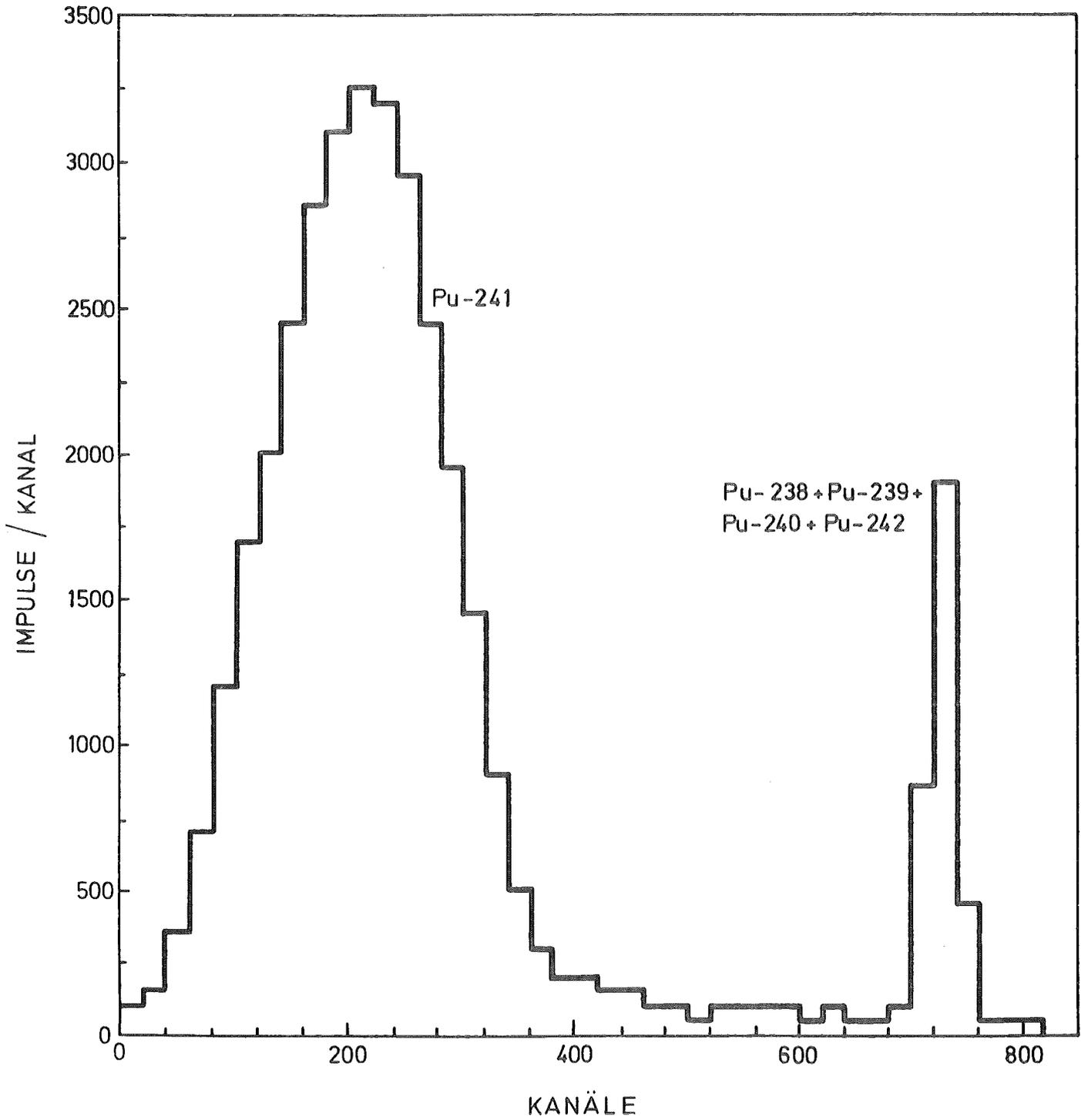


Abb. 1:  $\beta$ - und  $\alpha$ -Spektrum eines Pu-Standardpräparates

### 3.4 Die Korrektur der Selbstabsorption

Von der Firma Beckmann wird als physikalischer Wirkungsgrad für Tritium 64% angegeben. Da die  $\beta$ -Maximalenergie für Pu-241 der des Tritiums entspricht, wurde bei homogen verteiltem Pu-241 ein vergleichbarer Wirkungsgrad erwartet. Da das Pu-241 auf Edelstahlplättchen abgeschieden wurde, war nur eine  $2\text{-}\pi$ -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 geflammt waren, zeigten wesentlich höhere Wirkungsgrade.

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

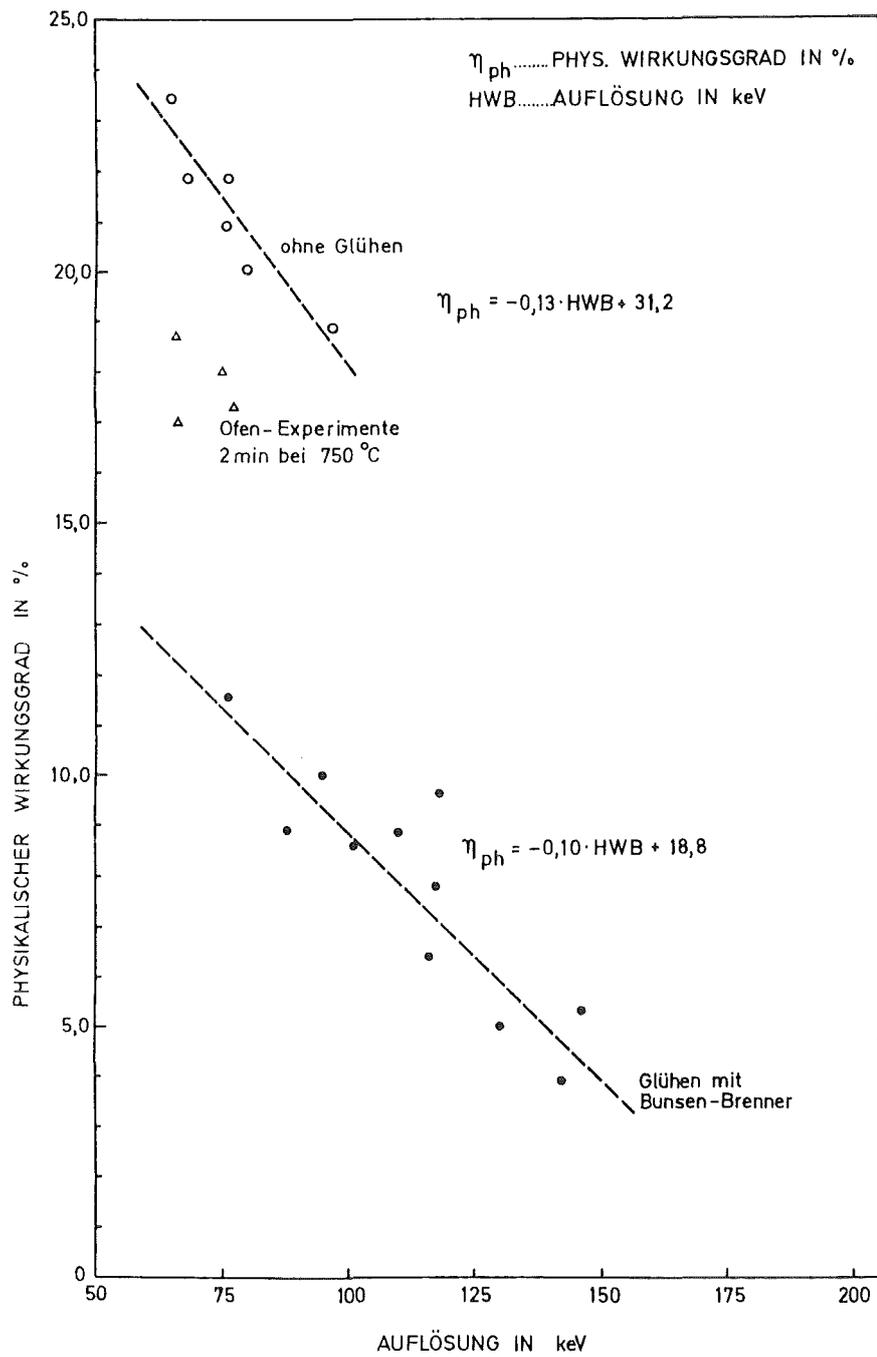


Abb. 2: Abhängigkeit des physikalischen Wirkungsgrades im Flüssigszintillationsspektrometer und der Auflösung im  $\alpha$ -Spektrometer

lische 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  $\alpha$ -spektrometrische Messungen vor und nach der Messung im Flüssigszintillations-spektrometer wurde sichergestellt, daß eine Auflösung des Plutoniums in der Szintillatorlösung nicht erfolgt.

### 3.5 Eine alternative Präparation durch Mitfällung von Plutonium

Durch die Anwendung der Mikrofällungsmethode von C.Sill [18] mit  $\text{LaF}_3$  wurde eine Alternative zur Herstellung von Plutoniumpräparaten durch Elektrodeposition geschaffen. Zur gereinigten Plutoniumfraktion wird 1 ml  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , 98%ig, 10 ml  $\text{HNO}_3$ , 65%ig, und 3-4 Tropfen HF, 40%ig, zugegeben. Es wird eingedampft bis  $\text{SO}_3$ -Nebel entstehen. Die Probe wird mit 5 ml  $\text{H}_2\text{O}$  aufgenommen. Die Lösung wird in einen Polyäthylen-Zentrifugenbecher gebracht, und die Abdampfschale wird mit 5 ml  $\text{H}_2\text{O}$  gewaschen. Die Lösungen

werden vereinigt. 2-3 Tropfen Methylrot-Indikator werden zugesetzt. Mit  $\text{NH}_3$ -Lösung, 25%ig, wird neutralisiert. Mit 0,2 ml HF, 40%ig, und 0,1 ml  $\text{La}^{3+}$ -Lösung, 0,50 mg  $\text{La}^{3+}$ /ml, wird die  $\text{LaF}_3$ -Fällung eingeleitet. Es wird 30 min unter gelegentlichem Rühren stehengelassen.

Ein nasses Membranfilter von 2,5 cm Durchmesser, Fa. Sartorius, mit SM 11, 3558 N, wird in das Filtrationsgerät der Fa. Sartorius, Typ SM 16306, eingelegt. 5 ml des gut durchgeschüttelten  $\text{LaF}_3$ -Substrates, bestehend aus 5 mg  $\text{La}(\text{NO}_3)_3$  in 500 ml 1 M HCl versetzt mit 40 ml 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  $\text{H}_2\text{O}$  und zweimal mit 80%iger wässriger Äthanollösung gewaschen. 15 s nach der zweiten Äthanolwäsche wird das Filter auf ein 25 cm  $\varnothing$  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  $\text{La}^{3+}$ -Lösung, 0,5 mg  $\text{La}^{3+}$ /ml, das 80%ige Äthanol und das destillierte Wasser vor Gebrauch durch ein 0,1  $\mu$ -Membranfilter filtriert und in Polypropylenflaschen aufbewahrt werden müssen.

Das so erhaltene Präparat wird zur  $\alpha$ -Spektrometrie verwendet (Abb. 3). Nach der  $\alpha$ -Spektrometrie wird das Filter, nach wie vor montiert auf einem Edelstahlplättchen, mit 10 ml Filter-Count und 5 ml Instagel gelöst. Zusätzlich wird 10 mg  $\text{Al}^{3+}$ , 0,1 ml von 0,695 g  $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$ /ml Lösung zugesetzt, um das kolloidale  $\text{LaF}_3$  zu lösen und eine homogene Lösung zu bekommen. Als physikalischen Wirkungsgrad für die Zählung der Pu-241- $\beta$ -Teilchen erhält man mit dieser Präparationsmethode ca. 28%.

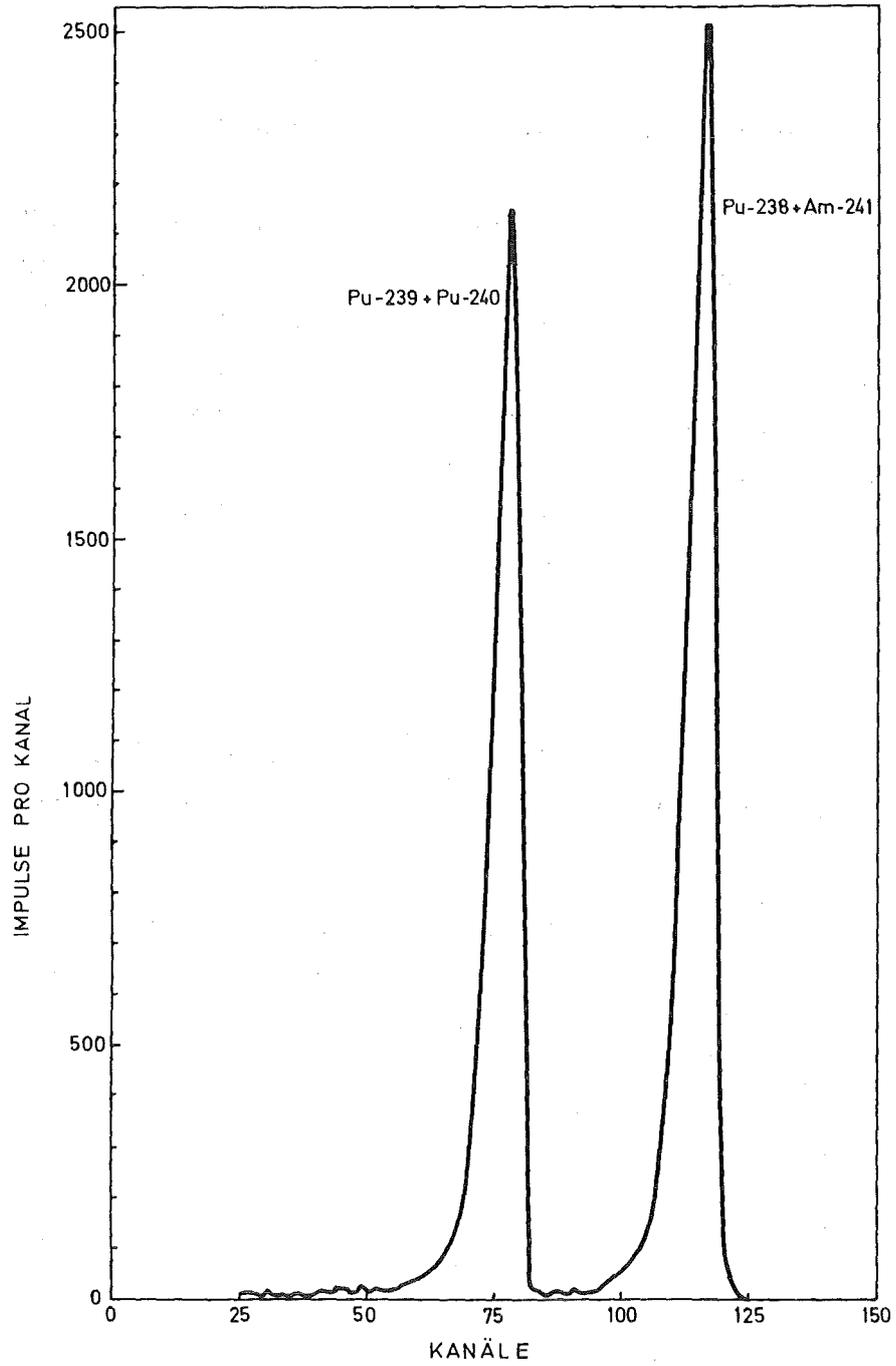


Abb. 3:  $\alpha$ -Spektrum eines Plutoniumpräparates, hergestellt durch Mitfällung mit Mikromengen von  $\text{LaF}_3$

### 3.6 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  $\alpha$ -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 $\alpha$ -Spektrometrie
Februar	199 $\pm$ 30	188 $\pm$ 24	281 $\pm$ 48
Mai	83 $\pm$ 12	94 $\pm$ 12	58 $\pm$ 8
Juni	70 $\pm$ 13	82 $\pm$ 11	41 $\pm$ 7

#### 4. Die Messung der Pu-241-Emissionen mit der Abluft der WAK und der FERAB

##### 4.1 Probenahme und Probenvorbereitung

Zur Probenahme in der Abluft der WAK wird ein 20 cm- $\emptyset$ -Glasfaserfilter mit den Aerosolen eine 13 m<sup>3</sup>/h-Bypasses bestaubt. Durch das Personal der WAK wird aus diesen bestaubten Filtern je eine 2 cm  $\emptyset$ -Scheibe für die in der HS/R durchgeführten Aktinidenbestimmungen ausgestochen. Die monatlich angelieferten Filterscheibchen werden gemeinsam mit HNO<sub>3</sub> ausgekocht und ein genau gemessener Bruchteil der Lösung gelangt zur Plutoniumanalytik.

In der FERAB, einer Verbrennungsanlage für brennbaren, radioaktiven Abfall, wird arbeitstäglich ein 20 cm  $\emptyset$ -Glasfaserfilter in einem Bypass von 20 m<sup>3</sup>/h bestaubt. Aus diesen Filtern werden 6 cm  $\emptyset$ -Scheibchen ausgestochen, und die in einem Monat anfallenden Proben gelangen zur Aktinidenanalyse. Da in der Abluft der FERAB mit hochgeglühten Aktiniden gerechnet werden muß, erfolgt eine NaOxydation mit HNO<sub>3</sub> und HClO<sub>4</sub> zur Beseitigung des organischen Bindemittels, der Ruß- und Teerablagerungen auf dem Filter; das Glasfasermaterial und der Probenstaub selbst werden durch eine HNO<sub>3</sub>/HF-Mischung in Lösung gebracht. Im allgemeinen wird die gesamte Lösung nach Zusatz des Pu-236-Ausbeutentracers zur Plutoniumbestimmung benützt.

##### 4.2 Die Plutoniumemissionen aus der WAK und der FERAB

In den Tabellen 3, 4 und 5 sind die Emissionen der Isotope Pu-238, Pu-239+240 und Pu-241 mit der Abluft der FERAB von 1979, 1980 und 1981 wiedergegeben. Die monatlichen Emissionen liegen zwischen 0,06  $\mu$ Ci und 74  $\mu$ Ci Pu-238, 0,04 und 141  $\mu$ Ci Pu-239+240 und 13 und 5030  $\mu$ Ci Pu-241. Im Mai 1980 ereignete sich in der WAK ein Störfall mit Aktivitätsfreisetzung in und aus der Anlage. Die

hohen Pu-241-Emissionen zwischen Mai und Juli dürften im direkten Zusammenhang mit den Dekontaminationsarbeiten stehen.

Tabelle 3: Emissionsraten der verschiedenen Pu-Isotope mit der FERAB-Abluft, 1979.

Probenahme- Zeitraum	Emissionsraten in $\mu\text{Ci}/\text{Monat}$		
	Pu-239+240	Pu-238	Pu-241
Januar	0,16	1,1	-
Februar	0,04	0,09	-
März	0,12	0,67	-
April	3,2	5,2	241
Mai	2,9	8,0	270
Juni	3,3	38	550
Juli	1,4	4,3	161
August	0,68	2,2	18
September	0,89	1,8	96
Oktober	1,3	4,0	60
November	1,0	1,9	29
Dezember	1,0	1,1	456

Tabelle 4: Emissionsraten der verschiedenen Pu-Isotope mit der FERAB-Abluft, 1980.

Probe- nahme Zeitraum	Emissionsraten in $\mu\text{Ci}/\text{Monat}$		
	Pu-239+240	Pu-238	Pu-241
Januar	0,63	1,2	20
Februar	141	74	5030
März	17	9,0	691
April	5,7	3,6	456
Mai	26	19	2080
Juni	22	15	1770
Juli	6,2	3,7	1110
August	2,0	1,2	267
September	3,5	2,3	366
Oktober	2,6	1,6	162
November	13	7,7	223
Dezember	0,10	0,06	13

Tabelle 5: Emissionsraten der verschiedenen Pu-Isotope mit der FERAB-Abluft, 1981.

Probe- nahme- Zeitraum	Emissionsraten in $\mu\text{Ci}/\text{Monat}$		
	Pu-239+240	Pu-238	Pu-241
Januar	0,20	0,08	29
Februar	0,30	0,13	22
März	0,21	0,09	19
April	0,29	0,12	13
Mai	1,7	0,44	39
Juni	5,7	6,1	41
Juli	4,4	1,7	447
August	1,9	2,6	456
September	0,39	0,50	23
Oktober	1,1	1,1	57
November	0,48	0,50	44
Dezember	0,23	0,29	13

In den Tabellen 6 und 7 werden die Ergebnisse für die monatlichen Plutoniumemissionen der WAK wiedergegeben. Die monatlichen Emissionswerte liegen zwischen 0,01 und 39  $\mu\text{Ci}$  Pu-238, 0,01 und 37  $\mu\text{Ci}$  Pu-239+240 und <1 und 7700  $\mu\text{Ci}$  Pu-241.

Die WAK war bis Anfang Juni 1980 in Betrieb. Seit Juni 1980 erfolgen Revisionsarbeiten. Die Abnahme der Emission der Pu-Isotope um ca. 2 Größenordnungen bestätigt die Veränderungen der Betriebszustände der WAK.

Tabelle 6: Emissionsraten der verschiedenen Pu-Isotope mit der WAK-Abluft, 1980.

Probenahme Zeitraum	Emissionsraten von Pu-Isotopen in $\mu\text{Ci}/\text{Monat}$		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
Januar	11	18	2200
Februar	6,4	17	2000
März	12	22	2100
April	39	24	6200
Mai	27	37	7700
Juni	0,24	0,31	48
Juli	0,14	0,15	20
August	0,17	0,14	51
September	0,12	0,14	29
Oktober	0,51	0,68	110
November	0,10	0,09	9
Dezember	0,14	0,11	20

Tabelle 7: Emissionsraten der verschiedenen Pu-Isotope mit der WAK-Abluft, 1981.

Probenahme-Zeitraum	Emissionsraten von Pu-Isotopen in $\mu\text{Ci}/\text{Monat}$		
	Pu-238	Pu-239+240	Pu-241
Januar	0,52	0,38	10
Februar	0,60	0,55	47
März	0,22	0,26	29
April	0,08	0,17	18
Mai	0,06	0,12	10
Juni	0,03	0,14	6
Juli	0,06	0,06	5
August	0,04	0,06	5
September	0,01	0,01	<1
Oktober	0,04	0,04	3
November	0,16	0,23	17
Dezember	0,79	1,2	95

In den Tabelle 8-12 werden die Aktivitätsverhältnisse Pu-238/Pu-239+240, Pu-241/Pu-238 und Pu-241/Pu-239+240 wiedergegeben. In der Abluft der FERAB liegen die Aktivitätsverhältnisse Pu-241/Pu-239+240 zwischen 7,3 und 456. Der Mittelwert liegt bei 93 und die hohe Streuung um diesen Mittelwert entspricht der unterschiedlichen Brennmaterialzusammensetzung der FERAB.

Während der Betriebszeit der WAK bis Juni 1980 lagen die Pu-241/Pu-239+240-Verhältnisse bei  $160 \pm 60$ . In dieser Zeit wurde Brennstoff mit dem Abbrand 8600 - 17100 MWd/t Schwermetall aufgearbeitet. Das Aktivitätsverhältnis ist höher als der nach [1] erwartete Wert von 80 - 130 für Kühlzeiten zwischen 1a und 10a und einem Abbrand von 34.000 MWd/t Schwermetall.

In der Revisionsphase schwankten die Aktivitätsverhältnisse Pu-241/Pu-239+240 zwischen 70 und 830. d.h. über einen wesentlich weiteren Bereich als in der Betriebsphase.

Tabelle 8: Aktivitätsverhältnisse der Pu-Isotope in der Abluft der FERAB, 1979.

Probe- nahme- Zeitraum	Aktivitätsverhältnisse		
	Pu-238/Pu-239+240	Pu-241/Pu-238	Pu-241/Pu-239+240
Januar	6,6	-	-
Februar	2,7	-	-
März	5,5	-	-
April	1,6	47	76
Mai	2,8	38	94
Juni	12	14	167
Juli	3,1	38	116
August	3,2	8,2	26
September	2,0	54	108
Oktober	3,1	15	46
November	1,9	15	28
Dezember	1,1	434	456

Tabelle 9: Aktivitätsverhältnisse der Pu-Isotope in der Abluft der FERAB, 1980.

Probe- nahme- Zeitraum	Aktivitätsverhältnisse		
	Pu-238/Pu-239+240	Pu-241/Pu-238	Pu-241/Pu-239+240
Januar	2,0	16	31
Februar	0,52	68	36
März	0,55	77	42
April	0,63	127	80
Mai	0,71	112	79
Juni	0,68	117	80
Juli	0,60	296	177
August	0,60	220	133
September	0,65	163	106
Oktober	0,60	103	62
November	0,59	29	17
Dezember	0,59	220	138

Tabelle 10: Aktivitätsverhältnisse der Pu-Isotope in der Abluft der FERAB, 1981.

Probe- nahme- Zeitraum	Aktivitätsverhältnisse		
	Pu-238/Pu-239+240	Pu-241/Pu-238	Pu-241/Pu-239+240
Januar	0,42	348	144
Februar	0,45	167	75
März	0,44	200	87
April	0,44	98	43
Mai	0,27	88	24
Juni	1,1	6,8	7,3
Juli	0,40	259	103
August	1,3	178	235
September	1,3	47	60
Oktober	1,0	52	53
November	1,2	74	90
Dezember	1,3	45	57

Tabelle 11: Aktivitätsverhältnisse der Pu-Isotope in der Abluft der WAK, 1980.

Probenahme-Zeitraum	Aktivitätsverhältnisse		
	Pu-238/Pu-239+240	Pu-241/Pu-238	Pu-241/Pu-239+240
Januar	0,60	200	120
Februar	0,38	310	120
März	0,56	180	100
April	1,6	160	260
Mai	0,73	290	210
Juni	0,77	200	150
Juli	0,93	140	130
August	1,2	300	360
September	0,86	240	210
Oktober	0,75	220	160
November	1,1	90	100
Dezember	1,3	140	180

Tabelle 12: Aktivitätsverhältnisse der Pu-Isotope in der Abluft der WAK, 1981.

Probenahme-Zeitraum	Aktivitätsverhältnisse		
	Pu-238/Pu-239+240	Pu-241/Pu-238	Pu-241/Pu-239+240
Januar	1,4	190	260
Februar	1,1	80	80
März	0,85	130	110
April	0,47	230	110
Mai	0,50	170	80
Juni	0,21	200	430
Juli	1,0	830	830
August	0,70	1250	830
September	1,0	<100	<100
Oktober	1,0	750	750
November	0,70	110	70
Dezember	0,67	120	80

## 5. Die Dosisexposition durch Pu-241

Während der Betriebsphase der WAK bis Juni 1980 wurden monatlich zwischen 2,0 und 7,7 mCi Pu-241, im Mittel also 4,0 mCi/Monat, emittiert. Mit diesem Mittelwert errechnet man eine Jahresemission von 48,5 mCi. Diese Pu-241-Aerosole werden in der Umgebungsluft verdünnt; mit einem Ausbreitungsfaktor von  $1,6 \cdot 10^{-6}$  s/m<sup>3</sup> [19] ist im Jahresmittel in der bodennahen Luft am Hauptbeaufschlagungspunkt eine Konzentration von 2,5 fCi Pu-241/m<sup>3</sup> zu erwarten.

Nach der Strahlenschutzverordnung [20] ist der Grenzwert der Jahres-Aktivitätszufuhr über die Inhalation  $1,4 \cdot 10^{-9}$  Ci Pu-241. Mit einer Atemrate von 20 m<sup>3</sup>/d werden  $1,8 \cdot 10^{-11}$  Ci Pu-241/a eingeatmet. Dies bedeutet, daß durch die zu erwartenden Pu-241-Emissionen mit der Abluft der WAK nur ca. 1% der maximal zulässigen Jahres-Aktivitätszufuhr am ungünstigsten Ort der Umgebung erfolgt.

## 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  $\alpha$ -Spectrometry without Electrodeposition", Anal. Chem. 53, 412-415, 1981
- [19] Kiefer, H., Koelzer, W., Koenig, L.A.- "Jahresbericht 1980 der Hauptabteilung Sicherheit", KfK 3113, April 1981
- [20] Fischerhof, H.- "Atomgesetz mit Verordnungen", Nomos Verlagsgesellschaft, Baden-Baden, 1978