

KfK 4516
März 1989

Plutonium

Redaktion: W. Koelzer
Hauptabteilung Sicherheit

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KfK 4516

Plutonium

Redaktion: W. Koelzer

Beiträge von

H. Dilger, H. Doerfel, W. Koelzer, H. Schüttelkopf
Hauptabteilung Sicherheit

D. M. Taylor, V. Volf
Institut für Genetik und für Toxikologie von Spaltstoffen

D. Faude, G. Keßler, H. W. Wiese
Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

H. Krause
Institut für Nukleare Entsorgungstechnik

L. Ohlenschläger, H. Schieferdecker
Medizinische Abteilung

G. Mühling
Projekt Schneller Brüter

R. Kroebel
Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

C. Keller
Schule für Kerntechnik

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003

Zusammenfassung

Dieser Bericht enthält zum Stichwort "Plutonium" Angaben zu Chemie, Vorkommen und Verhalten in der Umwelt, Handhabung im Kernbrennstoffkreislauf, Strahlenschutzüberwachung sowie Biokinetik, Toxikologie und Strahlenschutzmedizin, um für die in der Öffentlichkeit geführte Diskussion über Plutonium, insbesondere seinen Einsatz in Kernkraftwerken und seine radiologische Bedeutung, zusammengefaßt verlässliche Daten zur Verfügung zu stellen.

Plutonium

Abstract

This report contains with regard to "plutonium" statements on chemistry, occurrence and reactions in the environment, handling procedures in the nuclear fuel cycle, radiation protection methods, biokinetics, toxicology and medical treatment to make available reliable data for the public discussion on plutonium especially its use in nuclear power plants and its radiological assessment.

Inhalt

0	Erfahrungen beim Umgang mit Plutonium - eine Zusammenfassung	1
1	Plutonium - Entdeckung, Chemie, Vorkommen	9
1.1	Entdeckung	9
1.2	Isotope	9
1.3	Chemische und physikalische Eigenschaften	10
1.3.1	Metall	10
1.3.2	Festkörperchemie	13
1.3.3	Chemie in wässriger Lösung	14
1.4	Vorkommen und Freisetzung von Plutonium	17
1.4.1	Natürliches Plutonium	17
1.4.1.1	Pu-239	18
1.4.1.2	Pu-244	18
1.4.2	Künstliches Plutonium	19
1.4.2.1	Unkontrollierte Freisetzung	19
1.4.2.1.1	Freisetzung durch Kernwaffentests	19
1.4.2.1.2	Freisetzung nach Satellitunfällen bzw. Flugzeugabstürzen	20
1.4.2.1.3	Freisetzung aus kerntechnischen Anlagen	20
1.4.2.2	Kontrollierte Freisetzung	21
1.4.2.2.1	Freisetzung beim Betrieb kerntechnischer Anlagen	21
1.4.2.2.2	Freisetzung durch kontrollierte Ableitung radioaktiver Abfalllösungen	23
1.5	Verhalten von Plutonium in der Umwelt	24
1.5.1	Plutonium im Boden	24
1.5.2	Die Mobilität von Plutonium im Boden	25
1.5.3	Die Resuspension	25
1.5.4	Der Transport vom Meer ans Land	26
1.5.5	Plutonium in Pflanzen	26
1.5.6	Plutonium in Haustieren	28
1.5.7	Plutonium im Wasser und in Sedimenten	30
1.5.8	Plutonium in Lebewesen aquatischer Ökosysteme	32
1.5.9	Plutonium in der Umgebungsluft	34
1.5.10	Die Messung von Plutonium	34
1.6	Literatur zu Kapitel 1	35
2	Plutonium-Handhabung im Brennstoffkreislauf	43
2.1	Einleitung	43
2.2	Brennstoff-Kreislauf-Varianten von Kernreaktoren	44
2.2.1	Der offene Brennstoff-Kreislauf	44
2.2.2	Der geschlossene Brennstoff-Kreislauf von Leichtwasserreaktoren (Plutonium-Rezyklierung)	47
2.2.3	Der geschlossene Brennstoffkreislauf von Schnellen Brutreaktoren	49
2.3	Mengenbilanzen für Transurane im Brennstoffkreislauf	50

2.4	Grundsätzliches zur Freisetzung von Transuranen aus kerntechnischen Anlagen	54
2.5	Freisetzungsmöglichkeiten von Transuranen in Kernkraftwerken	56
2.5.1	Das Barrierenkonzept	56
2.5.2	Freisetzungen durch Brennelementschäden	57
2.5.3	Abschätzung der Freisetzungen im Falle von Kernschmelz-Unfällen	60
2.6	Freisetzungsmöglichkeiten von Transuranen bei Transport und Lagerung abgebrannter Brennelemente	62
2.6.1	Brennelement-Transport	62
2.6.2	Zwischenlager für abgebrannte Brennelemente	64
2.6.2.1	Trockene Zwischenlager	64
2.6.2.2	Nasse Zwischenlager	65
2.7	Freisetzungsmöglichkeiten von Transuranen bei der Wiederaufarbeitung	66
2.7.1	Prozeßverläufe	66
2.7.2	Sicherheitsauslegung	67
2.7.3	Betriebserfahrungen in der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe	70
2.7.4	Freisetzung von radioaktiven Stoffen	71
2.8	Freisetzungsmöglichkeiten von Transuranen bei der MOX-Brennstoff-Refabrikation	71
2.9	Behandlung radioaktiver Abfälle	74
2.9.1	Verglasung hochradioaktiver Abfälle	76
2.9.2	Verdampfung schwach- und mittelaktiver Abfalllösungen	77
2.9.3	Einbindung in Zement	78
2.9.4	Verbrennung	78
2.9.5	Pressen	78
2.10	Literatur zu Kapitel 2	79
3	Strahlenschutzüberwachung beim Umgang mit Plutonium	82
3.1	Strahlenschutzüberwachung am Arbeitsplatz	82
3.1.1	Allgemeines	82
3.1.2	Überwachungsverfahren	82
3.1.2.1	Bestimmung der Oberflächenaktivität	82
3.1.2.1.1	Direktmessung	83
3.1.2.1.2	Wischprobenahme	83
3.1.2.2	Messung der Raumluftaktivität	84
3.1.2.2.1	Aerosolsammler	84
3.1.2.2.2	Aerosolmonitoren	85
3.1.2.3	Messung der Personenkontamination	86
3.1.3	Strahlenschutzmaßnahmen	86
3.2	In-vivo-Messung von Plutonium	88
3.2.1	Direkte in-vivo-Messung	88
3.2.1.1	Grundlagen	88
3.2.1.2	Detektorsysteme	89
3.2.1.3	Kalibrierung	91
3.2.1.4	Untere Nachweisgrenze	92
3.2.2	Leitnuklidmessung	94
3.2.3	Praktische Erfahrungen	94
3.2.4	Die weitere Entwicklung	99
3.3	Inkorporationsüberwachung durch Ausscheidungsanalysen	100

3.3.1	Grundlagen der Inkorporationsüberwachung	100
3.3.1.1	Grenzwerte der Körperdosis	100
3.3.1.2	Maximal zugelassene Körperbelastung	100
3.3.1.3	Grenzwerte der Jahres-Aktivitätszufuhr	101
3.3.1.4	Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr nach neuem Konzept	104
3.3.1.5	Metabolismus-Modelle	105
3.3.1.5.1	Lungenmodell	105
3.3.1.5.2	Ingestionsmodell	110
3.3.2	Allgemeines zur Inkorporationsüberwachung	112
3.3.3	Bestimmung von Plutonium im biologischen Material	113
3.3.4	Messung von Plutonium in Ausscheidungen	114
3.3.4.1	Allgemeines	114
3.3.4.2	Urin	115
3.3.4.3	Stuhl	117
3.3.4.4	Nasenabstriche	121
3.3.5	Nachweisverfahren	122
3.3.6	Gemeinsamer Trennungsgang	125
3.3.7	Durchführung der Plutoniumanalysen	129
3.3.7.1	Vorbereitung der Analysenproben	129
3.3.7.2	Analysengang von Plutonium für Urinproben	129
3.3.7.3	Elektrolytische Abscheidung des Plutoniums	130
3.3.7.4	Aktivitätsmessung	131
3.3.7.5	Bestimmung der Höhe einer Inkorporation	133
3.4	Anwendung der verschiedenen Meßverfahren zur Optimierung der Inkorporationsüberwachung	136
3.4.1	Regelmäßige Überwachung	136
3.4.2	Überwachung aus besonderem Anlaß	138
3.4.3	Ergebnisse der Überwachung	141
3.4.4	Zusammenfassung	157
3.5	Literatur zu Kapitel 3	158
4	Biokinetik und Toxikologie von Plutonium	163
4.1	Verteilung und Biokinetik des Plutoniums im Menschen	163
4.2	Strahlentoxikologie des Plutoniums	164
4.3	Risikoabschätzungen	165
4.4	Therapie nach Plutoniumaufnahme	166
4.4.1	Hemmung des Übertritts von Plutonium ins Blut	166
4.4.2	Stimulierung der Plutoniumausscheidung	167
4.5	Literatur zu Kapitel 4	168
5	Unfallsituationen und strahlenschutzmedizinische Möglichkeiten	172
5.1	Potentielle Strahlenzwischenfälle beim Umgang mit Plutonium	172
5.1.1	Plutoniumkontaminationen der Körperoberfläche	172
5.1.2	Inkorporationen beim Umgang mit Plutonium	174
5.1.3	Wundkontaminationen mit Plutonium	175
5.2	Erste-Hilfe-Maßnahmen unter Zugrundelegung eines Dreistufenplanes	176

5.2.1	Stufe I des Dreistufenplans	177
5.2.2	Stufe II des Dreistufenplans	178
5.2.3	Stufe III des Dreistufenplans	178
5.2.4	Regionale Strahlenschutzzentren	179
5.3	Bewertung der strahlenschutzmedizinischen Möglichkeiten bei Unfallsituationen	181
5.4	Literatur zu Kapitel 5	183

Erfahrungen beim Umgang mit Plutonium - eine Zusammenfassung

W. Koelzer

Das 94. Element im Periodensystem wurde 1940 beim Beschuß von U-238 mit Deuteronen entdeckt. Analog dem nach dem Planeten Uranus benannten Uran erhielten die auf das Uran folgenden neuen Elemente ihren Namen Neptunium (Element 93) und Plutonium (Element 94) nach den auf Uranus folgenden Planeten Neptun und Pluto. Besondere Bedeutung von den heute bekannten sechzehn Plutoniumisotopen hat wegen seiner Eigenschaft als spaltbares Material das Isotop Pu-239 erhalten.

Eigentlich ist Plutonium kein künstliches Element. Uranerze enthalten sehr geringe Spuren von Pu-239, das sich aus U-238 durch Einfang von Neutronen aus der Spontanspaltung des Urans bildet. Die natürliche Pu-239-Menge wird aufgrund des Urangehaltes der Erdkruste auf etwa 10 kg geschätzt. In den natürlichen Kernreaktoren, die in den Uranerzlagerstätten von Oklo/Gabun vor zwei Milliarden Jahren "in Betrieb" waren, wurden rund vier Tonnen Pu-239 gebildet, das allerdings bereits wieder vollständig zu U-235 zerfallen ist. Weiterhin wurde 1971 natürliches Pu-244 entdeckt, das aufgrund seiner relativ langen Halbwertszeit noch in geringen Mengen, vergleichbar dem Pu-239-Vorkommen, als primordiales Nuklid vorhanden ist.

Plutonium ist also streng genommen ein natürliches Element, es war schon in der vorkerntechnischen Zeit ein Teil unserer Umwelt. Aber eine Bedeutung hatte dieses natürliche Plutonium nicht, der Mensch kam erstmals mit dem synthetisch hergestellten Element in Berührung.

Plutonium entsteht ständig beim Betrieb von Kernkraftwerken durch Kernreaktionen im Brennstoff. Einfangreaktionen von Neutronen in U-238 führen zu U-239, das sich relativ rasch über zwei Betazerfälle mit der Zwischenstufe des Np-239 in Pu-239 umwandelt. Weitere Einfangreaktionen führen zu den Plutoniumisotopen Pu-240, Pu-241 und Pu-242. Das so während des Reaktorbetriebs im Kernbrennstoff entstandene Plutonium wird gleichzeitig zu einem nicht unerheblichen Teil wieder gespalten und trägt dadurch direkt beträchtlich zur

Energieerzeugung im Reaktor bei. Während der üblichen dreijährigen Einsatzzeit eines Brennelements in einem Druckwasserreaktor werden rund 2,3 % des U-238 in Plutonium umgewandelt, von dem über die Hälfte unmittelbar wieder gespalten wird. Rund ein Drittel der gesamten Energieerzeugung eines Druckwasserreaktors entstammt der Plutoniumspaltung. Und das bedeutet, daß zur Zeit jährlich rund 40 Milliarden kWh der bundesdeutschen Stromerzeugung aus Plutonium gewonnen werden; das ist mehr als der Strom aus Wasserkraft, Erdgas, Heizöl und Müllverbrennung zusammen.

Nach dreijähriger Einsatzzeit werden die Brennelemente aus dem Reaktorkern entladen. Sie enthalten dann etwa 0,9 % Plutonium. Für einen 1000-MWe-Druckwasserreaktor entspricht das einer jährlichen Entlademenge von 215 kg Plutonium und 15 kg Transplutoniumelementen (überwiegend Americium und Curium). Zwei Entsorgungskonzepte für diese entladenen, ausgedienten Brennelemente werden zur Zeit diskutiert: die direkte Endlagerung ("offener Brennstoffkreislauf") und die nach dem Atomgesetz als Regelfall vorgeschriebene Wiederaufarbeitung mit Rückführung von Uran und Plutonium ("geschlossener Brennstoffkreislauf").

Der offene Brennstoffkreislauf - man könnte ihn auch als Wegwerfkonzept bezeichnen - führt neben den radioaktiven Spaltprodukten die gesamten Plutonium- und Transplutoniummengen von 230 kg pro Jahr (alle Werte sind auf einen 1000-MWe-Druckwasserreaktor bezogen) dem Endlager zu. Der geschlossene Brennstoffkreislauf mit Wiederaufarbeitung und Spaltstoffrezyklierung führt dagegen zu einer Ressourcenschonung und vermindert durch erneuten Reaktoreinsatz des Plutoniums und seine Spaltung die Akkumulation von Plutonium im Endlager erheblich. Bei Annahme eines Verlustes von insgesamt 2 % aus den Produkt- in die Abfallströme gelangen im Gleichgewichtszustand dabei jährlich nur noch 9 kg Plutonium und 48 kg Transplutoniumelemente, also nur 57 kg statt 230 kg, ins Endlager. Das entspricht übrigens in etwa der Menge, die bei einem geschlossenen Brennstoffkreislauf für Schnelle Brutreaktoren in das Endlager gelangt: 30 kg Plutonium/Jahr und 33 kg Transplutoniumelemente/Jahr.

Die Sicherheit von Mensch und Umwelt fordert in allen Umgangs- und Behandlungsschritten einen sicheren Einschluß der beim Reaktorbetrieb entstehenden radioaktiven Stoffe und damit auch des Plutoniums.

Im Reaktor sind die radioaktiven Stoffe durch mehrere Barrieren von der Umwelt getrennt. Bei Plutonium kommt hinzu, daß es in der keramischen Brennstoffmatrix fest eingebunden als Plutoniumoxid vorliegt, dessen Schmelz- bzw. Verdampfungstemperatur bei 2600 °C bzw. 3500 °C liegen. Ein Verdampfen mit Aerosolbildung ist hier also nur - wenn überhaupt - bei extremen Unfallsituationen möglich.

Denkbare Freisetzungen von Plutonium, Neptunium und Americium durch Brennelementschäden in den Primärkühlkreislauf und letztlich in die Umwelt spielen nach den Betriebserfahrungen mit Kernkraftwerken praktisch keine Rolle. Nach Veröffentlichungen des Bundesumweltministeriums traten, wenn überhaupt, nur Spurenabgaben von 10^3 bis 10^4 Becquerel pro Jahr auf. Und es bestehen keine Gründe, weshalb sich das bei Einsatz von Brennelementen mit rezykliertem Plutonium - sogenannten MOX-Elementen - verschlechtern sollte oder könnte. Diese MOX-Elemente haben einen Plutoniumanteil von 4 % beim Einsatz in den Reaktorkern gegenüber von 0,9 % bei jetzigen Uran-Brennelementen am Ende ihrer Standzeit. Der Americium/Curium-Anteil ist dagegen gegenüber Uran-Brennelementen etwa zehn- bis dreißigmal höher. Da wiederum nur ein Drittel aller im Reaktor eingesetzten Brennelemente solche MOX-Brennelemente sind, wird sich an der Größenordnung einer etwaigen Freisetzung infolge Brennelementschäden wenig ändern, und die radiologischen Auswirkungen der radioaktiven Spalt- und Korrosionsprodukte werden wie bisher die Strahlenexposition bestimmen.

Selbst für den hypothetischen Unfall mit Kernschmelzen zeigen Rechnungen, daß nur ein Anteil von $2 \cdot 10^{-11}$ der ursprünglich vorhandenen Aktivität von Uran, Neptunium, Plutonium und Americium in die Umgebung freigesetzt wird. Die radiologischen Konsequenzen sind damit praktisch zu vernachlässigen gegenüber denen, die durch die Freisetzung der Spaltprodukte, wie z. B. Iod oder Cäsium, verursacht werden.

Wie für Kernkraftwerke gilt auch für die weitere Behandlung der ausgedienten Brennelemente zur Abtrennung des Plutoniums in einer Wiederaufarbeitungsanlage sowie zur Fabrikation von Uran/Plutonium-Mischoxidbrennelementen das Mehrfachbarrieren-Konzept zum Schutz von Mensch und Umwelt. Betriebserfahrungen an der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe beweisen seine Leistungsfähigkeit. So betrug 1987 die Ableitung aller Alpha-Aerosole mit der Ab-

luft - also einschließlich Plutonium und Transplutoniumelementen - nur 1,1 MBq bei einem Plutoniumdurchsatz von über 100 kg. Eine Angabe über die Abgabe radioaktiver Stoffe mit dem Abwasser nur für die Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe ist nicht möglich, da die Ableitung zusammen mit allen anderen wissenschaftlich-technischen Einrichtungen des Kernforschungszentrums Karlsruhe erfolgt. Immerhin ist diese Gesamtableitung mit 1 MBq Pu-239/Pu-240 um mehrere Größenordnungen geringer als die Plutoniumableitung ausländischer Wiederaufarbeitungsanlagen. Die gesamte Strahlenexposition der rund 600 Beschäftigten (Eigen- und Fremdpersonal) betrug 1,7 Sv mit einer höchsten Einzeldosis von 20 mSv. Knapp 50 % aller Dosiswerte lagen unterhalb der Nachweisgrenze des amtlichen Dosimeters von 0,2 mSv. Und von 1975 bis 1988 ergab sich bei den Beschäftigten der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe nur ein Fall, bei dem durch Plutoniuminkorporation der Grenzwert der Jahresaktivitätszufuhr überschritten wurde.

Plutonium befindet sich in unserer Umwelt. Dabei sind zwar die natürlichen Plutoniummengen an Pu-239 + Pu-244 von rund 20 kg radiologisch bedeutungslos, aber immerhin sollte ihr Vorhandensein "Plutonium-Hysteriker" etwas nachdenklich stimmen. Wichtiger sind im Hinblick auf eine Bewertung einer möglichen Gefährdung durch Plutonium schon die rund drei bis fünf Tonnen Plutonium (das entspricht 10^{16} Becquerel oder 10 Milliarden Becquerel für diejenigen, die bereits aus der Größe einer Zahl eine Gefahr herleiten), die weltweit als Folge der Kernwaffentests in den oberen fünf Zentimetern des Bodens deponiert wurden. Immerhin sind damit pro Quadratmeter rund 100 Bq Plutonium abgelagert worden, das ist das Hundertfache des jährlichen Grenzwertes der Aktivitätszufuhr durch Inhalation für Personen der Bevölkerung nach unserer Strahlenschutzverordnung. Und auf der Fläche eines Kreises von zehn Metern Durchmesser liegt aus dem Kernwaffen-Fallout eine Plutoniummenge, die dem Grenzwert der Jahresaktivitätszufuhr für Aufnahme durch Ingestion entspricht. Gleichwohl stellen die Auswirkungen aus dem Kernwaffen-Fallout keine konkrete Gefährdung dar. Diese Zahlen werden hier nicht angegeben, um die Kernwaffentests und die durch sie erfolgte Aktivitätsverteilung zu verteidigen, sondern nur, um Horrorvisionen über die Wirkungen bereits einzelner Plutonium-Becquerels zu relativieren.

Untersuchungen zur Chemie des Plutoniums im Boden zeigen, daß selbst lösliche Plutoniumverbindungen relativ rasch an Tonpartikeln adsorbiert und auch später nicht durch Veränderungen der Chemie im Boden oder durch die Einflüsse von Mikroorganismen mobilisiert werden. Ganz allgemein gilt, daß die Verfügbarkeit von Plutonium im Boden außergewöhnlich niedrig ist. Den Experimenten, die einen verfügbaren Anteil von einigen Prozent nahelegen, widerspricht der Verteilungskoeffizient von Plutonium zwischen Boden und Wasser mit einer typischen Größe von $5 \cdot 10^3$. Untersuchungen bestätigen, daß im Freiland gewachsene Pflanzen hauptsächlich eine Oberflächenkontamination mit Plutonium aufwiesen und der Plutoniumgehalt kaum auf den Transfer über die Wurzeln zurückzuführen war.

Die für Pu-239 und das natürliche Ra-226 unterschiedlichen Boden-Pflanzen-Transferfaktoren und Dosisfaktoren für Ingestion ergeben, bezogen auf die Knochendosis, für Ra-226 eine 2300mal höhere Radiotoxizität. Berücksichtigt man, daß die mittlere Ra-226-Konzentration im Boden etwa hundertmal größer ist als die Pu-239-Konzentration, so ist zur Zeit über den Boden-Pflanzen-Transfer eine um den Faktor 230 000 höhere Knochenexposition durch Ra-226 als durch Pu-239 zu erwarten. Für die Dosisexposition über den Weide-Kuh-Milch-Pfad ergibt sich im Vergleich zwischen Pu-239 und Ra-226 eine Knochendosisexposition für Erwachsene durch das natürliche Ra-226, die eine Milliarde mal höher ist als durch die bestehende Pu-239-Konzentration im Boden.

Auch Plutonium in der Umgebungsluft führt durch Inhalation plutoniumhaltiger Aerosole und deren Ablagerung in der Lunge zu keiner wesentlichen Dosis. Messungen der Umgebungsüberwachung des Kernforschungszentrums Karlsruhe ergeben eine Plutoniumkonzentration in der Luft von weniger als 10^{-7} Bq/m³. Unterstellt man diese Plutoniumkonzentration von 10^{-7} Bq/m³ - in den sechziger Jahren wurden als Folge der Kernwaffentests Plutoniumkonzentrationen in der Luft von ca. 10^{-5} Bq/m³ gemessen, höhere Werte werden auch am Hauptbeaufschlagungspunkt einer großen Wiederaufarbeitungsanlage kaum auftreten - und deren fünfzigjährige Einatmung, so ergibt sich in diesen fünfzig Jahren eine Lungendosis von rund 6 μ Sv. Im gleichen Zeitraum bewirken das natürliche Radon und seine kurzlebigen, alphastrahlenden Folgeprodukte eine integrierte Lungendosis von 500 mSv - das Achtzigtausendfache.

Plutonium wird generell eine schwierige, häufig sogar nicht ausreichende Nachweismöglichkeit nachgesagt. Dabei lassen sich die für die Messung von Pu-239 in Umweltproben benötigten Nachweisgrenzen in Becquerel pro Kilogramm aus dem Grenzwert der Jahresaktivitätszufuhr, den Transferdaten und den jährlich verzehrten Nahrungsmittelmengen berechnen. Den mindestens zu erreichenden Nachweisgrenzen zur Einhaltung der Forderungen der Strahlenschutzverordnung von bis zu einigen hundert Becquerel pro Kilogramm stehen die routinemäßig erreichbaren Nachweisgrenzen im Millibecquerel-Bereich gegenüber.

Auch die zum Schutz der in kerntechnischen Einrichtungen Beschäftigten erforderliche Überwachung der Raumluft auf Plutonium ist mit den vorhandenen Meßgeräten problemlos möglich. Aerosolsammler mit Luftdurchsatzraten von 20 bis 50 m³/h erreichen nach einer Abklingzeit der natürlichen Radioaktivität von einigen Stunden eine Nachweisgrenze für Alpha-Aktivität von 60 mBq/m³, bei noch längerer Abklingzeit lassen sich Nachweisgrenzen von 1 mBq/m³ und weniger ohne weiteres erreichen. Bei einem Grenzwert der Jahresaktivitätszufuhr für beruflich strahlenexponierte Personen durch Inhalation von 160 Bq ist also gewährleistet, daß selbst eine mögliche Zufuhr nicht dosissignifikanter Mengen meßtechnisch erfaßt werden kann.

Ergänzt wird diese hochempfindliche Luftüberwachung durch die Inkorporationsüberwachung durch Direktmessungen und/oder Ausscheidungsmessungen. Die Direktmessung ist dabei die Methode der Wahl zur schnellen Bestimmung inkorporierten Plutoniums bei störfallbedingten Freisetzungen in die Arbeitsräume, um bei einer deutlichen Überschreitung des Grenzwertes der Jahresaktivitätszufuhr unverzüglich ausscheidungsintensivierende Maßnahmen einleiten zu können. Sind die besonderen Arbeitsbedingungen bezüglich der gehandhabten Nuklidgemische bekannt, so kann über die Methode der Leitnuklidmessung nach den Erfahrungen im Kernforschungszentrum Karlsruhe auch mittels Direktmessung eine Plutoniumzufuhr bis in den Bereich von 5 Bq/Jahr - entsprechend 3 % des Grenzwertes - nachgewiesen werden.

Eine Inkorporation durch Inhalation von Plutonium läßt sich wegen der schnellen und intensiven Lungenclearance sehr empfindlich durch Fäzesanalysen feststellen. So wird z. B. nach einer Zufuhr von 10 Bq Pu-239 durch Inhalation innerhalb der ersten Tage mehr als 1 Bq/Tag wieder in den Fäzes ausgeschieden. Bei der erreichten Nachweisgrenze von 1,5 mBq/Probe kann somit selbst eine so ge-

ringe Zufuhr je nach chemischer Löslichkeitsklasse noch nach mehr als 100 Tagen durch Fäzesanalysen ermittelt werden. Erfolgt die Fäzesanalyse unmittelbar nach einer vermuteten Zufuhr von Plutonium, so ist noch eine Aktivität in Höhe von weniger als 1/10 000 des Grenzwertes der Jahresaktivitätszufuhr für beruflich strahlenexponierte Personen erkennbar.

Aus den Erfahrungen der Inkorporationsüberwachung auf Plutonium in den letzten vierzehn Jahren im Kernforschungszentrum Karlsruhe geht hervor, daß bei den über 4500 untersuchten Personen bei 98 % keine Zufuhren festgestellt wurden, die oberhalb von 5 % der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr betragen. Sie lagen in den meisten Fällen weit darunter. Überschreitungen der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr - maximal bis zum Dreifachen - wurden elfmal ermittelt (0,24 % der untersuchten Personen). Hier ist anzumerken, daß die Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr nach dem Konzept der 50-Jahre-Folgedosis festgelegt werden, so daß selbst das Erreichen des Jahresaktivitätszufuhr-Grenzwertes einer effektiven Dosis im ersten Jahr von weniger als 3 % des Grenzwertes der jährlichen Ganzkörperdosis nach der Strahlenschutzverordnung entspricht.

Die heutigen Kenntnisse der Strahlentoxizität des Plutoniums stammen ausschließlich aus Tierversuchen. Die Ergebnisse dieser Studien zeigen, daß Inhalation von Plutonium zu malignen Tumoren der Lunge und der Knochen führen kann. Bis jetzt gibt es aber keinen Hinweis auf einen durch Plutonium verursachten Tumor beim Menschen. Retrospektive und prospektive epidemiologische Studien in den USA an über 7000 Plutoniumarbeitern haben bisher keine erhöhte Krebsrate ergeben. 107 Krebssterbefällen in dieser Gruppe steht eine Erwartungszahl für eine normale US-Bevölkerung von 167 Krebstodesfällen gegenüber. Die jüngsten Ergebnisse des US Committee on the Biological Effects of Ionizing Radiation deuten darauf hin, daß es aufgrund der Ergebnisse der Tierversuche keinen Hinweis für eine leukämogene Wirkung von Plutonium oder anderen Transuranelementen gibt.

In den Körper aufgenommenes Plutonium kann mit geeigneten Methoden am Übertritt ins Blut gehindert werden. Wenn Plutonium bereits im Blut zirkuliert, kann seine Ablagerung in den Organen durch Ausscheidungsintensivierung herabgesetzt werden. Dadurch wird die Strahlendosis deutlich vermindert. Zu diesem Zweck steht als bewährtes Arzneimittel Diäthylentriaminpentaessigsäure

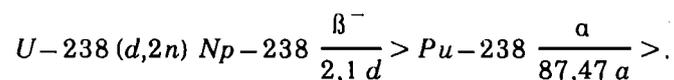
(DTPA) zur Verfügung. Seine Pharmakologie und Bindung mit Plutonium und anderen Radionukliden werden im Kernforschungszentrum Karlsruhe seit mehr als dreißig Jahren untersucht. Diesen Forschungsergebnissen ist es zu verdanken, daß DTPA in der Bundesrepublik Deutschland als einzigem Land der Welt in jeder Apotheke erhältlich ist.

1 Plutonium - Entdeckung, Chemie, Vorkommen

C. Keller, H. Schüttelkopf

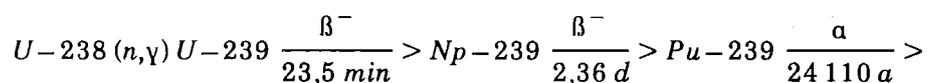
1.1 Entdeckung

Das erste Plutoniumisotop Pu-238 wurde Ende 1940 durch Seaborg, McMillan, Kennedy und Wahl durch Beschuß von U-238 mit 16 MeV Deuteronen des Berkeley-Zyklotrons über die Zwischenstufe von Np-238 erhalten



(Die Veröffentlichung wurde am 28.1.1941 eingereicht, sie erschien aber erst im Jahr 1946 [Se 46]).

Pu-239 als heute wichtigstes Pu-Isotop wurde wenige Monate später durch die gleiche Forschergruppe nach Bestrahlung von U-238 mit sekundären Neutronen des Berkeley-Zyklotrons



entdeckt. Die erste wägbare Menge Pu-239 von ca. 1 µg wurde am 20. August 1942 aus 90 kg bestrahltem Uranylinitrat durch Cunningham und Werner isoliert. Die erste Wägung einer reinen Pu-Verbindung, 2,77 µg PuO₂, erfolgte durch Cunningham am 10. September 1942. Dies bedeutet: Obwohl Plutonium ein natürliches Element ist (siehe Kapitel 1.4), kam der Mensch erstmals mit dem synthetisch hergestellten Element in Berührung.

1.2 Isotope

Heute (Ende 1988) sind Plutoniumisotope mit Massenzahlen von A = 232 bis A = 247 nachgewiesen worden. Die leichten Plutoniumisotope zerfallen überwiegend durch Elektroneneinfang, die schwersten Isotope ausschließlich durch β⁻-Zerfall, während für die mittelschweren Isotope meist der α-Zerfall dominiert. Wegen der langen Halbwertszeiten für die Spontanspaltung ist deren Anteil am Zerfall der Plutoniumisotope ohne Bedeutung.

Die wichtigsten Plutoniumisotope sind Pu-238 bis Pu-242. Sie entstehen bei der Bestrahlung von Uran je nach Bestrahlungsbedingungen in unterschiedlicher Isotopenzusammensetzung. Daneben bilden sich bei einer längeren Bestrahlung von Uran bzw. Pu-239 im Kernreaktor noch Pu-236 bzw. Pu-244 in ppm-Mengen. Bildungs- und Zerfallsdaten dieser wichtigsten Pu-Isotope sind in Tabelle 1.1 aufgeführt [Br 86, We 86].

1.3 Chemische und physikalische Eigenschaften

Mit seiner Elektronenkonfiguration $[Rn]5f^67s^2$ ist Plutonium ein typisches Aktinidenelement. Seine Eigenschaften sind von denen des analogen 4f-Elements Samarium sehr verschieden. Nachfolgend soll ein kurzer Überblick über seine wichtigsten Eigenschaften gegeben werden, für detaillierte Angaben siehe z. B. [We 86, Ke 71, Ke 85].

1.3.1 Metall

Plutoniummetall wird hergestellt durch Reduktion von PuF_4 mit Calcium. Ein weiteres Verfahren, das auch zur Feinreinigung benutzt wird, benutzt die Elektrolyse in Chlorid- bzw. Chlorid/Fluorid-Schmelzen.

Zwischen Raumtemperatur und seinem Schmelzpunkt von $640\text{ }^\circ\text{C}$ besitzt Plutoniummetall sechs allotrope Modifikationen - unter allen Metallen einzigartig. Eine siebte Modifikation bildet sich bei $>0,6\text{ kbar}$. Die niedrige Symmetrie der Tieftemperaturmodifikation verhindert die technische Nutzung von Plutoniummetall.

Plutoniummetall löst sich leicht in Säuren. An Luft überzieht es sich rasch mit einer mehr oder minder dicken Oxidschicht.

Isotop	Halbwertszeiten	Zerfallsarten	Häufigste Energien in MeV	Bildung bzw. Herstellung
^{236}Pu	2,851 a $3,5 \cdot 10^9$ a	α sf	α : 5,768 (68 %) 5,721 (31,7 %)	$^{237}\text{Np} (n, 2n) ^{236m}\text{Np} \xrightarrow[22,5 \text{ h}]{\beta^-(48 \%)} ^{236}\text{Pu} \xrightarrow[2,851 \text{ a}]{\alpha} ^{232}\text{U}$
^{238}Pu	87,74 a $4,8 \cdot 10^{10}$ a	α sf	α : 5,499 (71,6 %) 5,456 (28,3 %)	$^{237}\text{Np} (n, \gamma) ^{238}\text{Np} \xrightarrow[2,1 \text{ d}]{\beta^-} ^{238}\text{Pu}$ $^{239}\text{Pu} (n, 2n) ^{238}\text{Pu}$ $^{242}\text{Cm} \xrightarrow[162,9 \text{ d}]{\alpha} ^{238}\text{Pu}$
^{239}Pu	$2,411 \cdot 10^4$ a $5,5 \cdot 10^{15}$ a	α sf	α : 5,156 (73,2 %) 5,143 (15,1 %)	$^{238}\text{U} (n, \gamma) ^{239}\text{U} \xrightarrow[23,5 \text{ min}]{\beta^-} ^{239}\text{Np} \xrightarrow[2,36 \text{ d}]{\beta^-} ^{239}\text{Pu}$
^{240}Pu	6563 a $1,34 \cdot 10^{11}$ a	α sf	α : 5,168 (73,5 %) 5,124 (26,4 %)	$^{239}\text{Pu} (n, \gamma) ^{240}\text{Pu}$

Tab. 1.1a: Zerfalls- und Bildungseigenschaften wichtiger Plutoniumisotope

Isotop	Halbwertszeiten	Zerfallsarten	Häufigste Energien in MeV	Bildung bzw. Herstellung
^{241}Pu	14,4 a	β^-	β^- : max. 0,021	$^{240}\text{Pu} (n, \gamma) ^{241}\text{Pu} \xrightarrow[14,4 \text{ a}]{\beta^-} ^{241}\text{Am}$
^{242}Pu	$3,763 \cdot 10^5 \text{ a}$ $6,8 \cdot 10^{10} \text{ a}$	α sf	α : 4,901 (78 %) 4,856 (22 %)	$^{241}\text{Pu} (n, \gamma) ^{242}\text{Pu}$
^{243}Pu	4,956 h	β^-	β^- : max. 0,581 γ : 0,084	$^{242}\text{Pu} (n, \gamma) ^{243}\text{Pu} \xrightarrow[4,956 \text{ h}]{\beta^-} ^{243}\text{Am}$
^{244}Pu	$8,27 \cdot 10^7 \text{ a}$ $6,6 \cdot 10^{10} \text{ a}$	α sf	α : 4,589 (80,5 %) 4,456 (19,4 %)	$^{243}\text{Pu} (n, \gamma) ^{244}\text{Pu}$ $^{248}\text{Cm} \xrightarrow[3,4 \cdot 10^5 \text{ a}]{\alpha} ^{244}\text{Pu}$

Tab. 1.1b: Zerfalls- und Bildungseigenschaften wichtiger Plutoniumisotope

Die kritischen Massen für Plutonium betragen für

Pu-239-Metall: 5,4 kg für α -Pu in Kugelform, voll H₂O-reflektiert
7,6 kg für δ -Pu in Kugelform, voll H₂O-reflektiert

Pu-239 in Lösung: 509 g als Pu(NO₃)₄-Lösung in kugelförmigem Behälter mit mindestens 30,48 cm innerem Durchmesser und mindestens 33 g/l, voll H₂O-reflektiert

Pu-241 in Lösung: 260 g mit mindestens 32 g/l in einem kugelförmigen Behälter, voll H₂O-reflektiert

Für Pu-238 und Pu-240, d. h. auch für das im Reaktorplutonium vorliegende Isotopengemisch sind die kritischen Massen größer. Wegen der höheren Neutronenemission durch diese (g,g)-Isotope nimmt der Aufwand, eine unterkritische Anordnung in eine überkritische Anordnung (z. B. für Waffenzwecke) überzuführen, mit dem Gehalt an den (g,g)-Isotopen sehr stark zu. Waffen-Plutonium („defense Pu“) darf daher nur ca. 1 % Pu-240 enthalten.

1.3.2 Festkörperchemie

Von den Oxidationsstufen Pu(III) bis Pu(VII) sind eine Vielzahl von binären und polynären Verbindungen beschrieben worden. Sie entsprechen überwiegend analogen Phasen der anderen Aktiniden in den jeweiligen Oxidationsstufen. Die wichtigste Verbindung ist das im Flußspatgitter kristallisierende kubische PuO₂. Es entsteht beim Erhitzen zahlreicher Verbindungen, wie Pu-Oxalat, -Nitrat und -Sulfat auf höhere Temperaturen. Oberhalb ca. 600 °C geglühtes PuO₂ ist in nichtoxidierenden Säuren (wie HCl, HNO₃) unlöslich, es geht jedoch in heißer HNO₃/HF-Mischung als auch in siedender HClO₄ in Lösung. Die Lösekinetik hängt in starkem Maße sowohl von dem „Alter“ der Probe als auch von der Isotopenzusammensetzung ab, da die inhärente α -Strahlung das Kristallgitter des PuO₂ langsam „zerstört“ und daher die Löslichkeit verändert.

Von technischer Bedeutung sind die Mischkristalle UO₂-PuO₂, da sie als Kernbrennstoffe dienen. Die Darstellung sehr homogener Mischkristalle ist unter Anwendung spezieller Verfahren möglich, wenngleich aufwendig. Das Auflösever-

halten in Salpetersäure hängt sowohl vom Homogenitätsgrad als auch vom U:Pu-Verhältnis ab: je größer der Plutoniumanteil, desto schwieriger geht das $(U, Pu)O_2$ in Lösung.

Andere wichtige Verbindungen des Plutoniums sind:

- PuC und $(U, Pu)C$ als mögliche Kernbrennstoffe der Zukunft;
- PuF_4 als Ausgangsprodukt für Plutoniummetall, aus $PuO_2 + HF/O_2$ bei ca. 500 °C zu erhalten;
- PuF_6 als einzige, leichtflüchtige Verbindung des Plutoniums;
- $Pu(NO_3)_4 \cdot 2(C_4H_9O)_3PO$ als im PUREX-Prozeß extrahierte Pu-Verbindung.

1.3.3 Chemie in wäßriger Lösung

Das Verhalten von Plutonium in wäßriger Lösung ist insofern einzigartig unter allen Elementen, als Lösungen thermodynamisch stabil sind, die die vier Wertigkeitsstufen Pu(III) bis Pu(VI) in vergleichbaren Konzentrationen nebeneinander enthalten können. Die relative Beständigkeit der einzelnen Oxidationsstufen bei stark unterschiedlichen pH-Werten läßt sich aus den formalen Redoxpotentialen (Tabelle 1.2) ableiten [We 86].

Das Verhalten der einzelnen Oxidationsstufen in wäßrigen Lösungen läßt sich wie folgt beschreiben:

Pu^{3+} : Eine blaue Lösung von Pu^{3+} erhält man durch Reduktion höherer Oxidationsstufen mit SO_2 , Hydrazin etc. Durch die eigene α -Strahlung erfolgt eine langsame "Selbstoxidation", speziell in Lösungen mit Komplexbildnern.

Pu^{4+} : Das bräunliche Pu^{4+} ist die stabilste Oxidationsstufe in Lösung. Oberhalb pH 2,5 bis 3 erfolgt aber sehr leicht quantitative Hydrolyse zu $PuO_2 \cdot aq$, falls nicht sehr starke Komplexbildner (wie EDTA, NTA) anwesend sind. Bei geringer Plutoniumkonzentration entstehen in diesem pH-Bereich Kolloide bzw. es erfolgt eine Adsorption an anderen Substanzen (z. B. Glaswänden, Staubteilchen).

Vierwertiges Plutonium kann aus Lösung als Peroxid $\text{PuO}_4 \cdot \text{aq}$ sehr spezifisch von anderen Nicht-Aktiniden durch Fällung abgetrennt werden, ferner weniger spezifisch, aber z. B. besser filtrierbar als Fluorid $\text{PuF}_4 \cdot \text{aq}$ oder als Oxalat $\text{Pu}(\text{C}_2\text{O}_4)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$.

$\text{Pu}(\text{IV})$ läßt sich in Gegenwart von Komplexbildnern leicht extrahieren, wie das Beispiel von $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 \cdot 2(\text{C}_4\text{H}_9\text{O})_3\text{PO}$ im Purex-Prozeß zeigt. Die gute Extrahierbarkeit gilt auch für Komplexe mit z. B. 1,3-Diketonen und α -Hydroxysäuren.

PuO_2^+ : Das schwach rosa gefärbte fünfwertige Plutonium liegt in Lösung als formal einwertiges „yl“-Ion mit kovalenter Pu-O-Bindung vor. Es ist nur in schwach saurem bis neutralem Bereich ohne Disproportionierung beständig. PuO_2^+ ist ein sehr schwacher Komplexbildner, dessen Eigenschaften wegen seiner Instabilität noch nicht sehr gründlich untersucht wurden.

PuO_2^{++} : Das gelblich-grüne sechswertige Plutonium erhält man durch Oxidation der niedrigeren Oxidationsstufen, z. B. mit KMnO_4 , XeF_2 oder AgO . Sowohl durch die eigene α -Strahlung als auch durch organische Verbindungen - z. B. durch Komplexbildner wie EDTA und Zitronensäure als auch durch organische Ionenaustauscher - wird $\text{Pu}(\text{VI})$ reduziert. $\text{Pu}(\text{VI})$ -Lösungen müssen daher stets direkt vor ihrer Nutzung hergestellt werden.

Eine Stabilisierung von $\text{Pu}(\text{VI})$ ist durch starke anorganische Komplexbildner möglich, z. B. durch CO_3^{2-} unter Bildung von $[\text{PuO}_2(\text{CO}_3)_3]^{4-}$. Lösungen dieses Komplexes sind besonders stabil, wenn sie sehr verdünnt sind (z. B. im Seewasser, in dem auch der Gehalt an reduzierend wirkenden organischen Verbindungen minimal ist).

Sechswertiges Plutonium wird ebenfalls effektiv extrahiert, falls keine reduzierbaren Substanzen vorhanden sind. Die Verteilungskoeffizienten für das Extraktionsmittel Tri-n-butylphosphat/Dodecan aus salpetersaurer Lösung sind für $\text{Pu}(\text{VI})$ nur geringfügig niedriger als für $\text{Pu}(\text{IV})$. Die extrahierte $\text{Pu}(\text{VI})$ -Spezies ist $\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 2(\text{C}_4\text{H}_9\text{O})_3\text{PO}$ und entspricht daher derjenigen des Urans.

Pu(VII): Siebenwertiges Plutonium ist in saurer Lösung extrem instabil, nur in stark alkalischen Lösungen läßt sich Pu(VII) für kurze Zeiten nachweisen, bevor es durch Wasser reduziert wird. Seine Eigenschaften sind noch wenig untersucht worden.

a) 1 M HClO ₄
$PuO_2^{2+} \xrightarrow{0,916} PuO_2^+ \xrightarrow{1,170} Pu^{4+} \xrightarrow{0,982} Pu^{3+} \xrightarrow{-2,03} Pu^0$ <div style="border: 1px solid black; padding: 5px; margin: 10px auto; width: 80%;"> <p style="text-align: center;">1,043</p> <hr style="width: 80%; margin: 0 auto;"/> <p style="text-align: center;">1,023</p> </div>
b) in neutraler Lösung (pH7)
$PuO_2(OH)_2(aq) \xrightarrow{0,77} PuO_2^+ \xrightarrow{1,11} PuO_2 \cdot yH_2O(s) \xrightarrow{-0,63} Pu^{3+}$ <div style="border: 1px solid black; padding: 5px; margin: 10px auto; width: 80%;"> <p style="text-align: center;">0,94</p> </div>
c) in OH ⁻ -Lösung
$PuO_2(OH)_3^- \xrightarrow{0,26} PuO_2(OH) \xrightarrow{0,76} PuO_2 \cdot yH_2O(s) \xrightarrow{-0,95} Pu(OH)_3 \cdot xH_2O(s)$ <div style="border: 1px solid black; padding: 5px; margin: 10px auto; width: 80%;"> <p style="text-align: center;">≈ -0,5</p> </div>

Tab. 1.2: Formale Redoxpotentiale der Plutoniumionen (in Volt bei 25 °C)

1.4 Vorkommen und Freisetzung von Plutonium

Bei der Betrachtung über die Verteilung des Plutoniums in unserer Umwelt ist es sinnvoll, natürliches und künstliches Plutonium zu unterscheiden. Wenngleich der geschätzte Gehalt des natürlichen Plutoniums wesentlich geringer ist als der des von Menschenhand dorthin gelangten Plutoniums (vgl. Abbildung 1.1), so ist es doch wesentlich zu wissen, daß schon vor dem kerntechnischen Zeitalter dieses Element Bestandteil unserer Umwelt war - auch wenn der Mensch es damals noch nicht kannte [Ke 82]. Plutonium ist daher ein natürliches Element.

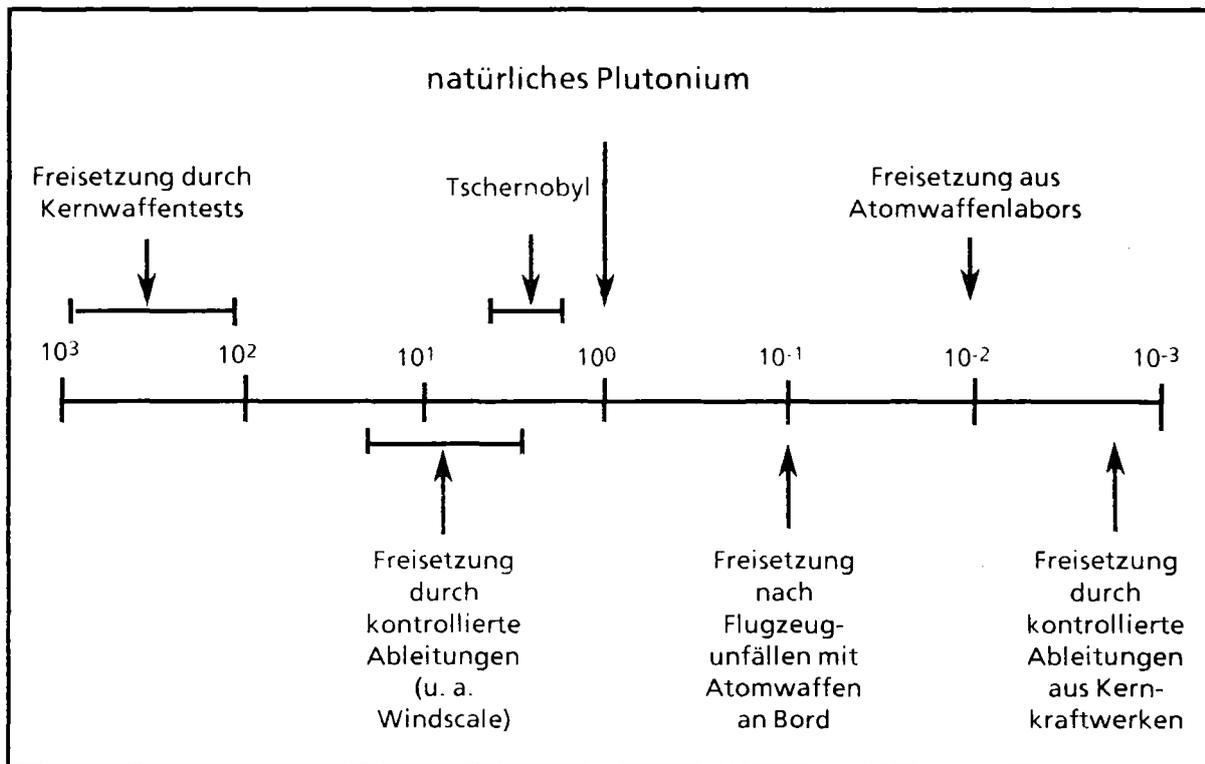


Abb. 1.1: Relative Plutoniummengen in der Umwelt, bezogen auf "natürliches, non man-made" Plutonium

1.4.1 Natürliches Plutonium

Für natürliches Plutonium gibt es zwei Quellen

- Pu-239, das sich aus U-238 bildet,
- Pu-244, das Bestandteil unserer Erde seit ihrer Erschaffung ist.

1.4.1.1 Pu-239

Den Beweis für das Vorkommen von Pu-239 in Uranerzen lieferte Seaborg und Perlman bereits während des 2. Weltkrieges im US-amerikanischen Manhattan-Programm [Se 48]. Aus verschiedenen Pechblenden isolierten danach Peppard et al. [Pe 51] Mikrogramm-Mengen Pu-239. Dabei erkannten sie gleichzeitig, daß der natürliche Gehalt an Plutonium in Uranerzen für eine technische Nutzung nicht ausreicht.

Dieses Plutonium bildet sich aus U-238 durch Einfang von Neutronen, die bei der Spontanspaltung des U-238 freiwerden (ca. 60 Neutronen/h·g(U)). Das damit berechnete Verhältnis Pu-239:U-238 $\approx 10^{-11}$ (10^{-10} - 10^{-12} je nach Konzentration an Uran und an Fremdelementen) stimmt mit experimentellen Werten überein.

Die gesamte natürliche Pu-239-Menge läßt sich anhand des bekannten U-238-Gehalts der Erdkruste zu etwa 10 kg abschätzen - wobei diese Menge allerdings um bis zu einer Größenordnung nach oben und unten abweichen kann [Ke 79].

Die größte Konzentration an Plutonium in der Erdrinde dürfte in den Uranlagerstätten von Oklo/Gabun vorhanden gewesen sein, in denen vor ca. zwei Milliarden Jahren mindestens dreizehn natürliche Kernreaktoren arbeiteten [Ke 86]. Es ist abzuschätzen, daß dort bis zu vier Tonnen Pu-239 gebildet wurden - das Pu-239 ist in der Zwischenzeit jedoch vollständig in U-235 zerfallen. Aus der Verteilung dieses U-235 - und speziell an der starken Erhöhung dieses Isotops direkt am Rande der Kernreaktorzonen [Hi 87] ist abzuleiten, daß das Plutonium höchstens wenige Millimeter gewandert ist - und dies, obwohl die Reaktorzone damals unter Wasser lag (nötig als Moderator für die Reaktoren) und die dortigen Temperaturen in den Naturkernreaktoren bis über 300 °C betrugten [Ec 83].

1.4.1.2 Pu-244

Primordiales, d. h. noch von der Entstehung unseres Sonnensystems her verbliebenes Plutonium, entdeckten D.C. Hoffman et al. 1971 [Ho 71]. Aus dem präkambrischen Cer-Mineral Bastnäsit von Mountain Pass in Kalifornien isolierten sie $2 \cdot 10^7$ Atome (ca. 10^{-18} g) und identifizierten es massenspektrometrisch.

Berechnungen ergaben, daß die noch in der Erdkruste vorhandene Menge Pu-244 etwa gleich groß ist wie die Menge an Pu-239. Eine Gewinnung ist daher nicht sinnvoll.

1.4.2 Künstliches Plutonium

Der Gehalt an Plutonium in unserer Umwelt ist überwiegend bedingt durch dessen Freisetzung infolge menschlicher Aktivitäten. Es sind unkontrollierte Freisetzungen, z. B. nach Kernwaffenversuchen bzw. Unfällen oder kontrollierte, d. h. genehmigte und gemessene Abgaben zu unterscheiden.

1.4.2.1 Unkontrollierte Freisetzung

1.4.2.1.1 Freisetzung durch Kernwaffentests

Die bis heute in über 400 oberirdischen Kernwaffentests mit einer Sprengkraft von über 500 Mt TNT-Äquivalent freigesetzte Plutoniummenge wird weltweit auf 3 bis 5 t (ca. 10^{16} Bq) geschätzt.

Dieses Plutonium ist heute zu >98 % auf der Erdoberfläche abgelagert. Es ist jedoch im Boden chemisch so fixiert, daß eine Aufnahme über die Nahrungskette in merklichen Mengen praktisch nicht erfolgt.

Das freigesetzte Plutonium resultiert zum Teil aus dem ungespaltenen Pu-239 der Kernwaffen, zum andern entstand es mit den schwereren Isotopen durch Neutroneneinfang in U-238. Die in den Jahren 1970/1971 gesammelte Fallout-Proben zeigten folgende Isotopenverhältnisse (bezogen auf Januar 1971):

$$\begin{aligned}\text{Pu-240:Pu-239} &= 0,176 \pm 0,014, \\ \text{Pu-241:Pu-239} &= 0,0086 \pm 0,0017, \\ \text{Pu-242:Pu-239} &= 0,0044 \pm 0,011.\end{aligned}$$

Wegen des Zerfalls von Pu-241 mit $t_{1/2} = 14,9$ a ist heute (Ende 1988) dessen Anteil auf etwas über 40 % gesunken [Kr 76]. Wegen der längeren Halbwertszeit des Pu-241-Zerfallsproduktes Am-241 wird dieses mit einem Am-241:(Pu-239 + Pu-240)-Verhältnis von 0,42 etwa im Jahre 2037 sein Maximum erreichen.

1.4.2.1.2 Freisetzung nach Satellitenunfällen bzw. Flugzeugabstürzen

Beim Absturz eines militärischen Satelliten über dem Indischen Ozean am 21. April 1964 wurden die ca. 1 kg $^{238}\text{PuO}_2$ der SNAP-9A-Isotopenbatterie freigesetzt. Dadurch wurde das Pu-238:(Pu-239 + Pu-240)-Verhältnis des Fallouts in den folgenden Jahren von 0,03 (1965) auf einen maximalen Wert von 0,48 (1967) erhöht. Seit dieser Zeit nimmt dieses Verhältnis jedoch wieder ständig ab (siehe z. B. in [Ke 82]).

Zwei Abstürze US-amerikanischer Flugzeuge mit Kernwaffen sind bekannt, bei denen durch Zerstörung der Kernwaffen eine lokale Plutoniumkontamination erfolgte (siehe z. B. in [Wi 74]):

- Beim Absturz eines B-52-Flugzeugs am 16. Januar 1966 in der Nähe von Palomares/Spanien wurde eine Fläche von ca. 2 km² mit Plutonium kontaminiert. Nach Abtragung der obersten Bodenschicht verblieben etwa 30 g am Unfallort. Eine Plutoniumkontamination der dort lebenden Personen erfolgte nicht. In dort angebauten Pflanzen ergab sich in den folgenden Jahren keine unfallbedingte Plutoniumkontamination.
- Beim Absturz eines gleichen Flugzeugs am 21. Januar 1968 auf das Eis im Wolstenhole-Fjord in der Nähe von Thule/Grönland wurde ebenfalls Plutonium freigesetzt. Bis auf eine auf 400 g geschätzte Restmenge konnte dieses jedoch mit dem kontaminierten Schnee eingesammelt werden.

1.4.2.1.3 Freisetzung aus kerntechnischen Anlagen

Die größte Freisetzung erfolgte bei dem Kernreaktorunfall in Tschernobyl am 26. April 1986. Von sowjetischer Seite wurde angegeben, daß etwa 3 % des Plutoniums freigesetzt wurde (Pu-Inhalt: $2 \cdot 10^{15}$ Bq, Freisetzung: $6 \cdot 10^{13}$ Bq). Verlässliche Absolutmengen sind jedoch nicht bekannt. Der allergrößte Teil dieses Plutoniums verblieb in der näheren Umgebung des Unfallortes, geringe Mengen wurden mit "heißen Teilchen" des Kernbrennstoffs auch weiter verbreitet.

Werte über die Plutoniumkontamination in der Bundesrepublik Deutschland als Folge dieses Unfalls sind in Tabelle 1.3 aufgeführt. Man erkennt, daß die Luft für kurze Zeit stärker kontaminiert war als infolge des durch die Resuspension bedingten Plutoniumgehalts. Dagegen ist die zusätzliche Bodenkontamination durch das Tschernobyl-Plutonium wesentlich geringer als die durch das Fallout-Plutonium bedingte Kontamination.

Aus anderen, überwiegend militärisch genutzten kerntechnischen Anlagen werden einige Unfälle mit kleineren Plutoniumfreisetzungen gemeldet. Die jeweiligen Mengen lagen dabei unter 1 g. Die größte Freisetzung mit 5 g bis 60 g Plutonium erfolgte nach einem Feuer am 11.05.1969 in den Rocky-Flats-Laboratorien. Der größte Anteil dieses Plutoniums wurde innerhalb des Forschungsgeländes wiedergefunden, doch wiesen Bodenproben bis zu einem Umkreis von 40 Meilen erhöhte Plutoniumkonzentrationen auf.

1.4.2.2 Kontrollierte Freisetzung

1.4.2.2.1 Freisetzung beim Betrieb kerntechnischer Anlagen

Die Abgabe α -aktiver Radionuklide (einschließlich Plutonium) über gasförmige Ableitungen lag 1987 für 16 Kernkraftwerke zwischen 0,1 und 3 kBq/a. Nur ein Kernkraftwerk (Würgassen) hatte eine höhere Emissionsrate von 27 kBq/a für Pu-238 + Am-241 bzw. je 39 kBq/a für Cm-242 und Cm-244. Diese Werte sind jedoch wesentlich geringer als die Abgabe α -aktiver Stoffe (z. B. Po-210) durch Kohlekraftwerke: 10 GBq/a für ein Steinkohlekraftwerk bzw. 1 GBq/a für ein Braunkohlekraftwerk, je für eine erzeugte elektrische Energie von 1 GW·a.

Die Abgabe α -aktiver Substanzen durch flüssige Ableitungen lag in den Jahren 1983 bis 1985 bei über der Hälfte der Kernkraftwerke unter der Nachweisgrenze, der Höchstwert der Abgabe betrug 21 MBq/a. Diese α -Aktivität ist überwiegend durch Cm-242 bedingt, Plutonium konnte nur in einigen Proben nachgewiesen werden [Wi 88].

Werte für Luft im Raum München in $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$							
Isotop	30.04.	01.05. Nacht	01.05. 10 - 12.00 Uhr	01.05. 12 - 14.00 Uhr	02./03.05.	03./04.05.	Untergrund
Pu-238	140	<30	130	<15	<1	-	
Pu-239 + 240	90	70	200	45	2	3	$(3-5) \cdot 10^{-2}^*$
Cm-242	190	70	1 500	190	-	-	
Werte für Luft im Raum Berlin in $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$							
Isotop	April Monatsmitte		29./30.04.		Mai 1986		
Pu-239 + 240	1,3		46		1,8		
Pu-238	0,62				0,74		
Ablagerung auf dem Boden (29.04. - 09.05.1986) in kBq/m^2							
	Pu-238			Pu-239 + 240			
München	$14 \cdot 10^{-6}$			$40 \cdot 10^{-6}$			
Berlin	< 10^{-2}			< 10^{-2}			
Mainz	-			< 10^{-4}			
im Vergleich zu Fallout-Plutonium	$4 \cdot 10^{-3}$			0,1			

Tab. 1.3: Meßdaten über die Plutoniumkontamination als Folge des Tschernobyl-Unfalls für den Zeitraum April/Mai 1986 (ausgewählte Werte nach [ISH 87, SSK 87, Wi 86]); *durch Resuspension

1.4.2.2.2 Freisetzung durch kontrollierte Ableitung radioaktiver Abfalllösungen

Große Mengen α -aktiver Substanzen wurden aus der Wiederaufarbeitungsanlage Windscale/Großbritannien in die Irish Sea abgeleitet. Die angegebenen Gesamt- α -Aktivitätswerte liegen zwischen ca. 4 TBq/a (1969) und ca. 15 TBq/a (1973) mit Werten für Pu-238 bis Pu-240 zwischen 2,5 TBq/a (1969) und 5,5 TBq/a (1973) bei Am-241:Pu-Verhältnissen zwischen 0,49 (1969) und 2,50 (1974). Untersuchungen haben ergeben, daß mindestens 96 % dieses Plutoniums sofort nach dem Einleiten durch Ablagerung in den Sedimenten aus dem Wasserhaushalt der Irish Sea entfernt und dabei immobilisiert wurde [Lu 78, UN 7].

Ableitungen aus anderen kerntechnischen Anlagen, z. B. der französischen Wiederaufarbeitungsanlage La Hague sind wesentlich geringer. Pu-239 + 240-Konzentrationen und - zum Vergleich - Konzentrationen des natürlichen Ra-226 in wichtigen Umweltmaterialien sind in Tabelle 1.4 angegeben [Bo 79a].

	Pu-239 + 240	Ra-226
Luft	$4 \cdot 10^{-8} - 1 \cdot 10^{-5} \text{ Bq/m}^3$	$4 \cdot 10^{-6} - 8 \cdot 10^{-6} \text{ Bq/m}^3$
Süßwasser	0,02 Bq/m ³	4 - 400 Bq/m ³
Meerwasser	0,0075 - 0,21 Bq/m ³	3,3 Bq/m ³
Boden (TG*)	0,05 - 1,4 Bq/kg	7 - 180 Bq/kg
Meereslebewesen (TG*):		
Phytoplankton	0,23 Bq/kg	4 - 1 400 Bq/kg
Algen	0,13 - 16 Bq/kg	0,08 - 8 Bq/kg
Zooplankton	0,01 - 2 Bq/kg	2 - 20 Bq/kg
Korallen	0,07 Bq/kg	-
Mollusken	0,014 - 0,08 Bq/kg	0,1 - 8 Bq/kg
Fische	0,0001 - 0,005 Bq/kg	0,2 - 8 Bq/kg
Landlebewesen (TG*):		
Flechten	5,6 Bq/kg	0,5 Bq/kg
Bäume	-	7 Bq/kg
Gemüse	0,006 - 0,02 Bq/kg	0,1 - 3 Bq/kg
Säugetiere		
Muskeln	0,006 Bq/kg	0,08 Bq/kg
Knochen	0,015 - 0,03 Bq/kg	2,7 Bq/kg
Menschliche Nahrung	0,00026 Bq/d	0,085 Bq/d

Tab. 1.4: Pu-239 + 240 und Ra-226 in in verschiedenen Materialien der Umwelt; *TG = Trockengewicht

1.5 Verhalten von Plutonium in der Umwelt

1.5.1 Plutonium im Boden

Der größte Teil des bei Kernwaffenexperimenten in die Atmosphäre freigesetzten Plutoniums ist in der Zwischenzeit auf der Erdoberfläche abgelagert worden. Untersuchungen zur Chemie des Plutoniums im Boden sind schwierig und daher nur in geringer Zahl durchgeführt worden. Wird Plutonium als Pu(IV) in löslicher Form dem Boden zugeführt, wird der größte Teil relativ rasch an Tonpartikeln adsorbiert. Eine etwas höhere Verfügbarkeit kann erwartet werden in sehr sauren oder sehr basischen Böden. Dasselbe gilt für Böden mit niedrigem Tongehalt. Ebenso hat der Gehalt an organischer Materie im Boden einen großen Einfluß auf die Verhaltensweise von Plutonium. Das Ausmaß, nach dem eine Bindung an die organische Materie im Boden stattfindet, hängt ab von der Menge und der Zusammensetzung des organischen Materials, dem pH-Wert im Boden und der chemischen Form und hier speziell vom Wertigkeitszustand des Plutoniums im Boden. Es gibt einige Hinweise darauf, daß auch Plutonium, das an Tonteilchen gebunden wurde, später nicht durch Veränderungen der Chemie im Boden oder durch die Einflüsse von Mikroorganismen wieder mobilisiert werden kann. Den Experimenten, die einen verfügbaren Anteil von einigen Prozent nahelegen, widerspricht der Verteilungskoeffizient von Plutonium zwischen Boden und Wasser mit einer typischen Größe von $5 \cdot 10^3$. Dieser Wert, der das Gleichgewichtsverhältnis der Konzentration von Plutonium im Boden zur Konzentration von Plutonium in der wäßrigen Phase darstellt, legt einen wesentlich kleineren Anteil des Plutoniums als mobil, löslich bzw. verfügbar nahe.

Plutonium vom Kernwaffenfallout besteht aus außergewöhnlich feinen Teilchen, die von verdünnten Säuren ohne weiteres gelöst werden. Das gleiche gilt für Plutonium, das mit der Abluft aus Wiederaufarbeitungsanlagen in die Umgebung gelangt ist. Schwerlöslich und daher auch oft in konzentrierten heißen Säuren nur teilweise lösbar, ist Plutonium aus Verbrennungsanlagen; Daten aus Brennstoffabriken sind wohl wegen der niedrigen Emissionen dieser Anlagen nicht publiziert worden [Ha 80, Ha 81, Li 76, Ro 72, Wa 80, Wa 81, Wi 79].

1.5.2 Die Mobilität von Plutonium im Boden

Ganz allgemein gilt, daß die Verfügbarkeit von Plutonium im Boden außergewöhnlich niedrig ist. Daher ist der Transport von Plutonium in tiefere Bodenschichten in hohem Maße behindert. Außerdem darf gesagt werden, daß wegen der starken chemischen Bindung an verschiedene Bodenkomponenten physikalische Transportmechanismen wesentlich wichtiger sind als chemische. Dies gilt für den außergewöhnlich langsamen Transport von Plutonium in tiefere Bodenschichten, aber auch für die Verfrachtung von Plutonium in der bodennahen Atmosphäre. Letztere gehört mit Sicherheit zu den wichtigsten Verteilungsmechanismen in den ariden und semiariden Gebieten, die die wichtigsten Untersuchungsbereiche für das Verhalten von Plutonium in der Umwelt darstellten [Bo 80, Da 80, Es 76, Gi 76, Ny 76, Ya 81].

Es gibt einige begrenzte und widersprüchliche Hinweise, welche nahelegen, daß das Verhalten von Pu-238 in Böden sich von solchem von Pu-239 + 240 unterscheidet. Obwohl Erklärungsansätze gemacht wurden, sind die Zusammenhänge bisher nicht ausreichend sorgfältig studiert und daher kann eine endgültige Erklärung dieser Beobachtungen nicht erfolgen.

Der Transport von Plutonium in tiefere Bodenschichten ist maximal, wenn Plutonium als PuO₂ vorhanden ist, wenn der Tongehalt des Bodens klein ist und wenn der lösliche organische Anteil besonders hoch ist. Viele Studien des Fallout-Plutoniums in einer ariden Umgebung über Zeiträume von 20 bis 30 Jahren unterbewerten zwar die Mobilität von Plutonium in Böden mit einer ausgeprägten Vegetationsdecke. Nichts desto weniger erscheint es wenig wahrscheinlich, daß die Halbwertszeit für die Verfrachtung von Plutonium aus der 0 - 5-cm-Schicht des Bodens weniger als 20 bis 30 Jahre betragen wird. Dies gilt ganz besonders, wenn die Pflanzen- und Tieraktivität ausgedehnt ist und daher lösliche organische Verbindungen in nennenswerten Konzentrationen vorhanden sind.

1.5.3 Die Resuspension

Im Bereich der Nevada Test Site wurden Resuspensionsfaktoren, definiert als die Konzentration des Plutoniums in der bodennahen Atmosphäre dividiert durch die abgelagerte Plutoniumaktivität, von $7 \cdot 10^{-5} \text{ m}^{-1}$ bestimmt. In Rocky Flats

wurden Werte von 10^{-6} bis 10^{-9} m^{-1} gemessen. Resuspensionsfaktoren in ariden, sandigen, nicht bewachsenen und gestörten Böden sind als wesentlich größer anzusehen als die in Bereichen zu erwartenden, in denen mittlere klimatische Bedingungen herrschen, eine dichte Vegetationsdecke vorliegt und landwirtschaftliche Nutzung der Bodenoberfläche im Vordergrund steht. Für solche Bereiche dürften Resuspensionsfaktoren im Bereich von 10^{-9} m^{-1} anzusetzen sein. Für realistische Betrachtungen werden allerdings jahreszeitabhängige Faktoren benötigt; eine Abhängigkeit vom Bodentyp, vom Bewuchs des Bodens, von der Ausdehnung der Pflanzendecke und von den landwirtschaftlichen Praktiken sollte berücksichtigt werden [An 74, Co 83].

1.5.4 Der Transport vom Meer ans Land

Da in der Bundesrepublik Deutschland nur geringe Mengen von Plutonium emittiert werden und die Einleitung in das Meer praktisch vollständig vermieden wird, gibt es hier keine Untersuchungen zum Transfer vom Meer ans Land. Umfangreiche Untersuchungen, die in Großbritannien und Frankreich durchgeführt wurden, bestätigen die Anreicherung einer Reihe von Radionukliden und stabilen Elementen in der Mikrooberflächenschicht des Meeres und die nachfolgende Freisetzung vom Meer in die Atmosphäre. Dieser Freisetzungsprozeß kann stattfinden am freien Ozean und wurde mit Sicherheit in den Küstenbereichen beobachtet. Die größte Bedeutung hat dieser Transportprozeß für Elemente, die an organischer Oberfläche besonders stark gebunden werden. Unter Auswertung der Aktivitätsverhältnisse Pu-238/Pu-239 + 240 konnten in Cumbria, Großbritannien, Transporte bis zu 40 km landeinwärts nachgewiesen werden [Pa 80, Pa 81, Ea 81, Ea 82].

1.5.5 Plutonium in Pflanzen

Die Kontamination von Pflanzen erfolgt primär über Ablagerung aus der Luft und erst in zweiter Linie durch Aufnahme aus dem Boden. Die geringe Bedeutung der Aufnahme aus dem Boden hängt mit der bereits erläuterten starken Bindung von Plutonium an verschiedene Komponenten des Bodens zusammen und mit der daraus resultierenden geringen Verfügbarkeit für Pflanzen. Ist

Plutonium aus der Luft einmal am Boden abgelagert, erfolgt selbstverständlich nur noch eine Aufnahme aus dem Boden. Das Fallout-Plutonium und das beim Verglühen einer Energieeinheit eines Satelliten freigesetzte Pu-238 sind heute praktisch quantitativ abgelagert.

Eine Reihe von Untersuchungen bestätigte, daß die im Freiland gewachsenen Pflanzen und landwirtschaftliche Produkte hauptsächlich eine Oberflächenkontamination mit Plutonium aufwiesen und der Plutoniumgehalt weniger auf den Transfer über die Wurzel zurückging.

Die Plutoniumkonzentrationen hängen ab von der Art der Pflanze, dem Vegetationstyp, dem Alter und dem Zustand der Pflanze. Die Erde hat Einfluß über den pH-Wert, die Kationenaustauschkapazität, die Zusammensetzung des mineralischen und organischen Anteils, und zusätzlich haben auf den Boden-Pflanzen-Transfer Einfluß die physikalische und chemische Form des Plutoniums und das Alter der Kontamination.

Boden-Pflanzen-Transferfaktoren schwanken in einem weiteren Bereich. Erfolgt die Kontamination der Pflanzen über den Boden alleine, wird ein Konzentrationsverhältnis von $5 \cdot 10^{-4}$ als angemessen angesehen. Liegen keine weiteren lokalen Informationen vor, sind die in Tabelle 1.5 wiedergegebenen Transferfaktoren für Plutonium als geeignete Werte anzusehen.

Wenn im Boden pflanzenverfügbares Plutonium vorhanden ist, so erfolgt die Aufnahme über die Wurzeln rasch. Die Verschiebung innerhalb der Pflanze zu Teilen, die über der Erdoberfläche wachsen, ist sehr begrenzt. Die Wurzeln müssen aber als wesentliche Komponente für den Transport von Plutonium in tiefere Bodenschichten angesehen werden. Die oberirdischen Teile von Nutzpflanzen beseitigen $< 0,01$ % des gesamten Plutoniums im Boden während einer Wachstumsperiode. Weniger als 1 % des Plutoniums in den oberirdischen Teilen von Getreide und Hülsenfrüchten können in den geernteten eßbaren Teilen erwartet werden [Bo 79b, Li 76, Ni 78, Ro 72].

Von den natürlichen Radioelementen bzw. -nukliden ist am ehesten Thorium mit Plutonium vergleichbar. Einen ähnlichen Boden-Pflanzen-Transfer wie Plutonium dürfte außer Thorium Radioblei aufweisen und wesentlich höhere Transferfaktoren gelten für Uran, Radium und K-40.

Natürliche Vegetation	$7 \cdot 10^{-2}$
Futter- und Weidepflanzen	$9 \cdot 10^{-3}$
Hülsenfrüchte (Blätter)	$9 \cdot 10^{-4}$
Hülsenfrüchte (Früchte)	$4 \cdot 10^{-5}$
Getreidepflanzen (Blätter)	$3 \cdot 10^{-4}$
Getreidepflanzen (Körner)	$3 \cdot 10^{-5}$
Blattgemüse	$6 \cdot 10^{-5}$
Wurzelgemüse	$1 \cdot 10^{-3}$

Tab. 1.5: Die Boden-Pflanzen-Transferfaktoren von Plutonium

Die Allgemeine Berechnungsgrundlage [BMI 79] gibt für Pu-239 und das natürliche Ra-226 Boden-Pflanzen-Transferfaktoren von $2,5 \cdot 10^{-4}$ bzw. $1,4 \cdot 10^{-3}$ an. Bei gleicher Radiotoxizität und gleicher Konzentration im Boden wäre die durch die Aufnahme von pflanzlichen Nahrungsmitteln zu erwartende Dosis für Ra-226 um den Faktor 6 höher als für Plutonium. Die Radiotoxizität, ausgedrückt durch den Dosisfaktor für Ingestion und Knochenexposition bei Erwachsenen, ist für Ra-226 aber um den Faktor 380 höher als für Pu-239, d. h., daß die Dosisexposition durch das natürliche Ra-226 bei gleicher Konzentration im Boden 2 300mal höher ist als die durch Pu-239. Da die mittlere Ra-226-Konzentration im Boden ca. 100mal größer ist als die von Pu-239, ist heute über den Boden-Pflanzen-Transfer eine um den Faktor 230 000 höhere Exposition durch Ra-226 als durch Pu-239 zu erwarten.

1.5.6 Plutonium in Haustieren

Seit über 45 Jahren werden Untersuchungen zum Verhalten von Plutonium in Säugetieren und im Menschen durchgeführt [Ba 73, ICRP 72, Ne 79, Va 73].

Ein großer Teil der Untersuchungen wurde mit kleinen Säugetieren wie Mäusen und Ratten durchgeführt. Die Extrapolation dieser Ergebnisse auf Menschen und Haustiere ist schwierig, umso mehr, als sich der Metabolismus von Aktiniden in Leber und Knochen von Nagetieren vom Metabolismus in anderen Säugetieren

wesentlich unterscheidet. Umfangreiche Untersuchungen mit Beagle-Hunden erlauben heute eine sehr sorgfältige Beschreibung des Stoffwechsels von Plutonium. Die Übertragbarkeit auf Haustiere und Menschen ist somit gerechtfertigt.

Plutonium existiert in wäßriger Lösung in vier Wertigkeitsstufen, nämlich Pu(III), Pu(IV), Pu(V) und Pu(VI). Wegen der extrem unlöslichen Hydroxide, die alle vier Ionen, ganz besonders aber Pu(IV) bilden, spielt die Hydrolyse und mit ihr verbunden die Bildung von polymeren Hydroxiden eine wichtige Rolle im chemischen Verhalten in der Umgebung und im Körper von Haustieren. Eine starke Reaktion zeigt Plutonium mit Proteinen, insbesondere die eisenhaltigen Verbindungen Transferrin, Hämosiderin und Ferritin haben große Bedeutung für den Metabolismus des Plutoniums. Die Bildung von Komplexen, speziell mit DTPA, wurde benutzt, um Plutonium aus dem menschlichen Körper zu beseitigen.

Für die Einatmung von Plutonium wird für Plutoniumoxid und für Verbindungen, für die keine spezifischen Daten zur Verfügung stehen, die Inhalationsklasse Y empfohlen. Alle anderen sollen als zur Inhalationsklasse W gehörig behandelt werden.

Es wird empfohlen, daß die Aufnahme über den Magen-Darm-Trakt für alle Verbindungen von Plutonium $5 \cdot 10^{-4}$ für den Menschen und die Haustiere betragen soll. In der Tat dürfte allerdings der Transfer des wichtigen Plutoniumoxides bei wesentlich niedrigeren Werten liegen.

Von den Körperflüssigkeiten aufgenommenes Plutonium lagert sich beim Menschen als auch größeren Haustieren zu rund 90 % in den Knochen und in der Leber ab. Die Aufnahme in Knochen ist erhöht bei jungen Tieren, und lösliche Formen des Plutoniums lagern sich bevorzugt im Skelett ab. Die Ablagerung selbst erfolgt in den Knochen an der Knochenoberfläche. Die Rückhaltung im Skelett wird mit ein bis zwei Lebenserwartungen angegeben und ist höher bei größeren Tieren. Der von der ICRP vorgeschlagene Wert von 100 Jahren biologischer Halbwertszeit im Skelett des Menschen entspricht in etwa diesem Konzept. Die Rückhaltung in der Leber variiert sehr stark für verschiedene Tierarten. Plutonium wird aus der Leber von Ratten und Mäusen rascher freigegeben, während es in der Hundeleber nennenswert zurückgehalten wird. Für die meisten Nichtnager unter den Säugetieren ist die Rückhaltung in der Leber relativ ausgeprägt. Von der ICRP werden 40 Jahre als biologische Halbwertszeit für den Menschen empfohlen. Ganz allgemein ist gültig, daß die

Aufnahme von hochpolymerisiertem Plutoniumhydroxid in die Leber höher ist und daß dieses Plutonium in der Leber länger zurückgehalten wird [ICRP 79].

Weniger als 0,4 % des absorbierten Plutoniums können in der Milch von Haustieren erwartet werden. Berücksichtigt man eine mittlere Milchleistung von 15 l/d und einen Bruchteil von $5 \cdot 10^{-4}$ als den Anteil, der vom Plutonium aus dem Futter absorbiert wird, ergibt sich ein Futter-Milch-Transfer von ca. 10^{-7} d/l. In [BMI 79] wird zur Zeit noch ein Wert von $2 \cdot 10^{-6}$ d/l benutzt. Für Fleisch wird in den gleichen Empfehlungen $1,4 \cdot 10^{-5}$ d/kg empfohlen.

Für die Dosisexposition über den Weide-Kuh-Milch-Pfad gilt für Pu-239 im Vergleich mit Ra-226, daß der Boden-Pflanzen-Transfer für Ra-226 um den Faktor 6 höher ist und der Futter-Milch-Transfer um den Faktor 4 000. Berücksichtigt man die tatsächlichen Konzentrationen der beiden Nuklide im Boden und die Dosisfaktoren für Ingestion, Ablagerung in den Knochen und Erwachsene, ist die Dosisexposition durch das natürliche Ra-226 eine Milliarde mal höher als durch Pu-239 [BMI 79].

Der Bruchteil der Aktivität von Plutonium, der beim Hausgeflügel in Eier transferiert wird, dürfte relativ hoch sein. Der bei einem 11-Tage-Experiment gefundene Transfer vom Futter in das Eigelb lag bei $8 \cdot 10^{-3}$ d/kg. Eine größere Zahl von Untersuchungen wäre in diesem Bereich wünschenswert; die verzehrte Menge von Eigelb pro Kopf und Jahr ist relativ klein, und daher dürfte auch der große Transferfaktor von untergeordneter Bedeutung sein [Mu 76].

1.5.7 Plutonium im Wasser und in Sedimenten

Plutonium im aquatischen Ökosystem stammt ähnlich wie im terrestrischen Ökosystem vom Kernwaffenfallout und von Emissionen kerntechnischer Anlagen. Als Konsequenz dieser Zufuhr zu Oberflächengewässern und Meeren findet man meßbare Plutoniummengen in praktisch allen natürlichen Wasserkörpern. Die Löslichkeit von Plutonium im Wasser ist sehr begrenzt. In der Lösung selbst ist Pu(V) und Pu(VI) primär vorhanden. Pu(III) und Pu(IV) sind die wichtigsten adsorbierten chemischen Formen. Publierte Konzentrationen von Plutonium im Wasser liegen im weiten Bereich von 10^{-2} bis 10^{-8} Bq/l. Die Konzentrationen hängen ab von der Art der Emission, dem Abstand zur Quelle, der Durch-

mischung des Wassersystems und von der Wirksamkeit der Abscheidemechanismen in den verschiedenen aquatischen Ökosystemen. Die Konzentrationen in Sedimenten streuen noch stärker, nämlich von unmeßbar klein bis zu ca. 40 Bq/g.

Der Austausch zwischen Wasser und Bodensedimenten ist in verschiedenen Bereichen sehr unterschiedlich und hängt ab von der jeweiligen Wassertiefe, den Sedimentationsarten, der Konzentration von komplexierenden Substanzen usw. Im Küstenbereich wird in kurzer Zeit ein sehr großer Teil des Plutoniums, mehr als 90 %, aus der Wassersäule entfernt und in den Sedimenten abgelagert. Weniger schnell erfolgt die Ablagerung im freien Ozean. Als wichtigste Adsorptionsmechanismen wurden die Hydrolyse und die Kolloidbildung identifiziert. Außerdem beeinflußt die Adsorption von Plutonium an Sedimenten die spezifische Oberfläche der Sedimente, die Menge der gelösten organischen Stoffe, der pH-Wert und spezielle mineralische Überzüge wie z. B. solche aus Mangan, die an der Oberfläche bestimmter Sedimente gefunden wurden [An 70, Ed 81, Ha 79, NEA 81, Pi 76, On 81, Wa 80].

Der Mechanismus der Ablagerung von Plutonium in Sedimenten ist nicht vollständig reversibel; Ursachen für dieses Verhalten sind Besonderheiten der Niederschlagsbildung, der Kolloidbildung und Veränderungen in den Oxidationszuständen. Die Möglichkeit der Remobilisierung von Plutonium aus Küstensedimenten ist ausführlich studiert worden [Ba 73, Ha 81, He 75, Ko 75, Li 79, Ne 78, On 81]. Die Küstensedimente sind abgesehen von einer dünnen oxidierten Schicht an der Oberfläche hauptsächlich anaerob, und unter diesen Umständen wird Plutonium als vollständig immobil angesehen. In der Tat gibt es starke Hinweise darauf, daß z. B. die Plutoniumablagerungen in den Küstensedimenten Großbritanniens über Jahrzehnte unverändert geblieben sind. Zur Beschreibung des Verhaltens von Plutonium werden Verteilungskoeffizienten zwischen Wasser und Sedimenten benutzt. Sinnvolle Größen für diese Verteilungskoeffizienten sind $5 \cdot 10^4$ ml/g und 10^5 ml/g für die marine und die Frischwasserumgebung. Ganz allgemein wird erwartet, daß in Küstengewässern nur wenige Prozent des Plutoniums in Lösung bleiben; der Rest wird in die Sedimente verlagert.

1.5.8 Plutonium in Lebewesen aquatischer Ökosysteme

In Süßwasserfischen ist Plutonium vor allem in der Leber, den Nieren, der Milz und den Knochen zu finden. Der Bereich des Transferfaktors Wasser - Fisch liegt zwischen 10 und 1 000. Für Seefisch ist die Streuung des Transferfaktors wesentlich kleiner, und ein sinnvoller mittlerer Transferfaktor von 100 für den Gesamtfisch kann angenommen werden. Die biologische Halbwertszeit für Plutonium dürfte bei ca. 30 d liegen und in Extremfällen 200 d betragen. Für den Transfer in Mollusken gilt für Süßwasser $1,8 \cdot 10^6$, für Brackwasser $5 \cdot 10^4$ und für Meereswasser $3 \cdot 10^2$. Plutonium ist im allgemeinen homogen über die Oberflächen der Mollusken verteilt. Die biologische Halbwertszeit liegt bei 100 bis 200 d. Lebewesen mit längeren und mit wesentlich kürzeren biologischen Halbwertszeiten wurden beobachtet.

Bei Krebsen erfolgt die Aufnahme aus Meereswasser sehr langsam. Eine Gleichgewichtseinstellung wurde bei Hummern nach 150 bis 200 d beobachtet. Wichtig ist dabei, daß ein Teil des Plutoniums vor der Häutung in das Exoskelett abgegeben wird und mit ihm vom Lebewesen ausgeschieden wird. Ein mittlerer Konzentrationsfaktor für Meereskrebse liegt um 1 000. Unterschiede zwischen verschiedenen Wertigkeitsstufen von Plutonium konnten nicht eindeutig demonstriert werden. Der wichtigste Abgabeweg direkt nach der Kontamination sind die Fäkalien mit bis zu 90 % des aufgenommenen Plutoniums. Einige Tage später werden dann auch lösliche Plutoniumformen abgegeben. Biologische Halbwertszeiten im Bereich von 2 bis 38 d wurden gemessen. Die Daten über Frischwasserkrebse sind relativ karg und ein sinnvoller Konzentrationsfaktor dürfte 10 000 sein.

Die Aufnahme von Plutonium durch Meerospflanzen erfolgt im wesentlichen durch eine Kontamination der Oberfläche. Konzentrationsfaktoren bis zu ungefähr 10^4 wurden berichtet bei Pflanzen mit sehr großer Oberfläche. Ein mittlerer Wert liegt bei $3,6 \cdot 10^3$. Die Gleichgewichtseinstellung erfolgt außergewöhnlich rasch. Gelöstes organisches Material, die Isotopenzusammensetzung und die Wertigkeit des Plutoniums haben keinen Einfluß auf die Kontamination der Pflanzen.

In Frischwasserpflanzen wurden Konzentrationsfaktoren zwischen 10^2 und 10^8 gemessen. Für Plankton konnte gezeigt werden, daß der Transferfaktor dem Aschegehalt des Planktons proportional ist. Ein Transferfaktor von 10^4 bis 10^5

dürfte mit großer Wahrscheinlichkeit in den meisten Fällen das Verhalten von Plutonium und Frischwasserpflanzen genügend genau beschreiben. Die Zahl der Daten ist allerdings auf diesem Gebiet noch relativ klein [Bl 82, Ne 79, Pe 81, Te 80].

Ganz allgemein darf gesagt werden, daß Anreicherungsmechanismen über aquatische Nahrungsketten für Plutonium in hohem Maße unwahrscheinlich sind. Im Gegenteil von Stufe zu Stufe einer Nahrungskette wird Plutonium in seiner Konzentration abgebaut. Im Vergleich mit anderen Aktiniden ist Plutonium weniger verfügbar für die Aufnahme als die dreiwertigen Aktiniden Americium und Curium, aber es ist wesentlich besser verfügbar als das Neptunium, welches hauptsächlich als Np(V) im Seewasser verbleibt. Die folgenden Gleichgewichtskonzentrationsfaktoren sind geeignet für die Anwendung auf eßbare Teile von Wasserorganismen:

Süßwasser:	Fisch	3,5
	Wirbellose	$1,0 \cdot 10^2$
	Pflanzen	$8,9 \cdot 10^2$
Meerwasser:	Fisch	$2,9 \cdot 10^1$
	Krebse	$3,5 \cdot 10^2$
	Mollusken	$1,4 \cdot 10^2$
	Seetang	$1,1 \cdot 10^3$

Tab. 1.6: Konzentrationsfaktoren für Lebewesen in aquatischen Ökosystemen, anzuwenden auf eßbare Teile

1.5.9 Plutonium in der Umgebungsluft

Die Freisetzung von Plutonium in die Umgebungsluft führt durch Inhalation der plutoniumhaltigen Aerosole und der Ablagerung dieser Aerosole in der Lunge zur einzig wesentlichen Dosisexposition. Für viele wichtige Plutoniumverbindungen gilt dann die relativ lange Verweilzeit der Inhalationsklasse Y in der Lunge. Die Plutoniumkonzentrationen in der bodennahen Luft am Hauptbeaufschlagungspunkt einer großen Wiederaufarbeitungsanlage liegen bei ca. 10^{-5} Bq/m³. Dieser Wert entspricht den höchsten Plutoniumkonzentrationen in der Umgebungsluft, die durch den Kernwaffenfallout in den mittleren nördlichen Breiten über einige Jahre gemessen wurden. Messungen der Umgebungsüberwachung des Kernforschungszentrums Karlsruhe ergeben Plutoniumkonzentrationen in der Luft von weniger als 10^{-7} Bq/m³ (Nachweisgrenze). Unterstellt man diese Plutoniumkonzentration von 10^{-7} Bq/m³ und eine fünfzigjährige Einatmung, so ergibt sich in diesen 50 Jahren eine Lungendosis von rund 6 μ Sv. Im gleichen Zeitraum bewirken das natürliche Radon und seine kurzlebigen Folgeprodukte die 80 000 mal höhere integrierte Lungendosis von 500 mSv.

1.5.10 Die Messung von Plutonium

Die für die Messung von z. B. Pu-239 in Umweltproben benötigten Nachweisgrenzen in Bq/kg lassen sich aus dem in der Strahlenschutzverordnung festgelegten Grenzwert der Jahresaktivitätszufuhr, den in der Allgemeinen Berechnungsgrundlage angegebenen Transferdaten und den jährlich verzehrten Nahrungsmittelmengen berechnen [BMI 79]. Die so errechneten Konzentrationswerte von Pu-239 in Nahrungsmitteln führen nach fünfzigjährigem Verzehr zu einer Dosisexposition, die dem Dosisgrenzwert der Strahlenschutzverordnung entspricht. Aus diesen Konzentrationswerten, dem Aschegehalt des zu messenden Materials und unter der Annahme, daß 1 g Asche zur Messung gelangt, kann die mindestens zu erreichende Nachweisgrenze der Meßanordnung errechnet werden (siehe Tabelle 1.7).

Diese Mindestempfindlichkeiten können ohne weiteres mit Geräten zur Alphaaktivitätsmessung erreicht werden. Die Nachweisgrenze solcher Meßgeräte liegt für Pu-239 bei einer Meßzeit von 100 Minuten und 1 g Probematerial üblicherweise bei 0,04 Bq.

Material	Aschegehalt in g/kg frisch	Nachweisgrenzen in Bq für Pu-239 bei 1 g Asche	
		mindestens zu erreichen	tatsächlich erreicht
Milch	7	10	0,04
Fleisch	9	12	0,04
Fisch	9	670	0,04
Pflanzen	20	1,7	0,04
Wasser	0,5	36	0,04

Tab. 1.7: Nachweisgrenzen von Pu-239 in wichtigen Nahrungsmitteln

Das gleiche gilt für Boden und Sedimente, in denen die Pu-239-Aktivitäten noch wesentlich höher sein dürfen, bis die Grenzwerte z. B. über den Boden-Pflanzen-Transfer und entsprechenden Verzehr erreicht werden.

Aus dem Grenzwert der Jahresaktivitätszufuhr für die Inhalation von Pu-239 und 20 m³/d als Atemrate errechnet man eine maximal zulässige Konzentration in der Luft von 0,13 mBq/m³. Durch Sammeln von großen Luftproben können die Pu-239-Aktivitäten zwar ausreichend angehoben werden, um eine Bruttoalphaaktivitätsmessung möglich zu machen. Wegen der hohen natürlichen Alphaaktivität der Umgebungsluft ist aber eine Messung trotzdem nicht möglich.

Für solche Proben müssen radiochemische Methoden angewandt werden, die mit einer Nachweisgrenze von 0,7 mBq/Probe die Analyse mehrerer Proben durch einen Techniker an einem Tag erlauben [Schü 81]. In der Praxis werden aber diese empfindlichen Methoden der Plutoniumbestimmung für praktisch alle Probenmaterialien der Umgebung angewandt. Grund dafür ist, daß die tatsächlichen Plutoniumkonzentrationen um viele Größenordnungen unter den Werten von Tabelle 1.7 liegen.

1.6 Literatur zu Kapitel 1

[An 70] J.B. Andelman, T.C. Rozzell; "Plutonium in water environments, 1. Characteristics of aqueous plutonium", in: Radionuclides in the Environment, Am. Chem. Soc. Advances in Chemistry Series No. 93 (1970)

- [An 74] L.R. Anspaugh, "Evaluation of the resuspension pathway towards protective guidelines for soil contamination with radioactivity", UCRL-7520, University of California, Livermore (1974)
- [Ba 73] W.J. Bair, J.E. Ballou, J.F. Park und C.L. Sanders; "Plutonium in soft tissues with emphasis on the respiratory tract", in: H.C. Hodge, J.N. Stannard und J.B. Hursh (eds.), Uranium, Plutonium, Transplutonic Elements, Springer-Verlag, Berlin (1973), 503-568
- [Bl 82] B.G. Blaylock; "Radionuclide Data Bases Available for Bioaccumulation Factors for Freshwater Biota", Nucl. Saf., Vol. 23 (1982) 427-438
- [BMI 79] "Allgemeine Berechnungsgrundlagen für die Strahlenexposition bei radioaktiven Ableitungen mit der Abluft oder in Oberflächengewässer", Gemeinsames Ministerialblatt, G 3191AX, Ausgabe A, Der Bundesminister des Inneren, Bonn (15.08.1979) 369
- [Bo 79a] H.J.M. Bowen; "Environmental Chemistry of the Elements", Academic Press, London, New York, Toronto, Sydney, San Francisco (1979)
- [Bo 79b] E.A. Bondietti, J.R. Trabalka und C.T. Garten; "Biogeochemistry of actinides: A nuclear fuel cycle perspective", in: ACS Symposium Series No. 100, American Chemical Society (1979) 241-265
- [Bo 80] E.A. Bondietti und T. Tamura; "Physicochemical associations of plutonium and other actinides in soils", in: Hanson, W.C. (ed.); Transuranic Elements in the Environment, DOE/TIC-22800, US Dept. of Energy (1980)
- [Br 86] E. Browne, R. B. Fierestone; Table of Radioactive Isotopes, V. S. Shirley (ed.), John Wiley and Sons, New York (1986)
- [Co 83] P.J. Coughtrey und M.C. Thorne; "The Distribution and Transport of Radionuclides in Terrestrial and Aquatic Ecosystems", Vol. 1, A.A. Balkema, Rotterdam (1983)
- [Da 80] R.C. Dahlman, C.T. Garten und T.E. Hakonson; "Comparative distribution of plutonium in contaminated ecosystems at Oak Ridge,

Tennessee and Los Alamos, New Mexico, in: Hanson, W.C. (ed.), Transuranic Elements in the Environment, DOE/TIC-22800, US Dept. of Energy (1980)

- [Ea 81] J.D. Eakins, N.J. Pattenden, R.S. Cambray, A.E. Lally und K. Playford; "Studies of environmental radioactivity in Cumbria, Part 2," Radionuclide deposits in soil in the coastal region of Cumbria, AERE-R9873, UK Atomic Energy Authority, Harwell (1981)
- [Ea 82] J.D. Eakins, A.E. Lally, P.J. Burton, D.R. Kilworth und F.A. Prat; "Studies of environmental radioactivity in Cumbria, Part 5," The magnitude and mechanism of enrichment of sea spray with actinides West Cumbria, AERE-R10127, UK Atomic Energy Authority, Harwell (1982)
- [Ec 83] R. Eckhardt; Los Alamos Science, (Summer 1983) 25
- [Ed 81] D.N. Edgington; "A review of the persistence of long-lived radionuclides in the marine environments-sediment/water interaction," in: Impacts of Radionuclide Releases into the Marine Environment, IAEA-SM-248/148, IAEA, Vienna (1981)
- [Es 76] E.H. Essington, E.B. Fowler, R.O. Gilbert, L.L. Eberhardt; "Plutonium, americium, and uranium concentrations in a Nevada Test Site soil profile," in: Transuranic Nuclides in the environment, IAEA-SM-199/76, IAEA, Vienna (1976)
- [Gi 76] R.O. Gilbert, L.A. Eberhardt und J.A. Merrill; "Quantitative aspects of environmental plutonium studies," in: Pacific Northwest Laboratory Annual Report for 1975 to the USERDA Division of Biomedical and Environmental Research, Part 2, Ecological Sciences, BNWL-2000, Battelle Northwest Laboratory, Washington (1976)
- [Ha 79] J.H. Harley; "Plutonium in the environment - a review," Japan Radiation Research Society, Chiba, Osaka, Japan (1979) 1-36
- [Ha 80] T.E. Hakonson und J.W. Nyhan; "Ecological relationships of plutonium in Southwest ecosystems," in: Hanson, W.C. (ed.), Transuranic Elements in the Environment, DOE/TIC-22800, US Dept. of Energy (1980)

- [Ha 81] T.E. Hakonson, R.L. Watters and W.C. Hanson; "The transport of plutonium in terrestrial ecosystems," *Health Phys.*, Vol. 40, (1981) 63-69
- [He 75] J.A. Hetherington; "The behaviour of plutonium nuclides in the Irish Sea," in: *Radioisotopes in the Aquatic Environment: Models and Mechanisms*, Ann Arbor Sci., Michigan (1975)
- [Hi 87] S. Hishita, A. Masuda; *Naturwiss.* 74 (1987) 241
- [Ho 71] D.C. Hoffmann, F.O. Lawrence, J.L. Mewherter, F. M. Rourke; *Nature* 234 (1971) 132
- [ICRP 72] ICRP Publication 19, "The Metabolism of Compounds of Plutonium and Other Actinides," Pergamon Press, Oxford (1972)
- [ICRP 79] "Limits for Intakes of Radionuclides by Workers", A report of Committee 2 of the International Commission on Radiological Protection, ICRP Publication 30, Pergamon Press, Oxford, New York, Frankfurt (1979)
- [ISH 87] Institut für Strahlenhygiene des Bundesgesundheitsamtes Neuherberg, "Überwachung der Umweltradioaktivität", 7. Fachgespräch, 16./17. Nov. 1987 (1987)
- [Ke 71] C. Keller; *The Chemistry of Transuranium Elements*, Verlag Chemie, Weinheim (1971)
- [Ke 79] C. Keller, I.B. de Alleluia; *Chemiker-Zeitung* 103 (1979) 139
- [Ke 82] C. Keller; *Die Geschichte der Radioaktivität, unter besonderer Berücksichtigung der Transurane*, Wiss. Verlagsgesellschaft, Stuttgart (1982)
- [Ke 85] C. Keller; *GIT-Fachzeitschrift für das Laboratorium* 29 (1985) 704
- [Ke 86] C. Keller; *GIT-Fachzeitschrift für das Laboratorium* 30 (1986) 423 und 581

- [Ko 75] M. Koide, J.J. Griffin und E.D. Goldberg; "Records of plutonium fall-out in marine and terrestrial samples," J. Geophys. Res., Vol. 80 (1975) 4153-4162
- [Kr 76] P.W. Krey, E.P. Hardy, C. Pachucki, F. Rourke, J. Coluzza, W.K. Benson; STI/PUB/410, IAEA, Vienna (1976) 671
- [Li 76] C.A. Little; "Plutonium in a grassland ecosystem," COO-11156-83, Colorado State University (1976)
- [Li 79] H.D. Livingston, V.T. Bowen; "Plutonium and Cs-137 in coastal sediments," Earth Planet. Sci. Lett., Vol. 43 (1979) 29-45
- [Lu 78] F. Luykx, G. Frazer; "Radioactive Effluents from Nuclear Power Stations and Nuclear Fuel Reprocessing Plants in the European Community," Discharge Data 1972-76, Radiological Aspects, EUR 6088, EN, FR (April 1978)
- [Mu 76] A.A. Mullen, S.R. Lloyd und R.E. Mosley; "Distribution of ingested transuranium nuclides in chickens and subsequent transport to eggs," in: Transuranium Nuclides in the Environment, IAEA-SM-199/68, IAEA, Vienna (1976) 423 - 433
- [NEA 81] NEA/OECD, "The Environmental and Biological Behaviour of Plutonium and Some Other Transuranium Elements", OECD, Paris (1981)
- [Ne 78] D.M. Nelson und M.B. Lovett; "Measurements of the oxidation state and concentration of plutonium in interstitial waters of the Irish Sea," in: Impacts of Radionuclide Releases into the Marine Environment, IAEA-SM-248/145, IAEA, Vienna (1978)
- [Ne 79] J.C. Nenot und J.W. Stather; "The Toxicity of Plutonium, Americium and Curium," Pergamon Press, Oxford (1979)
- [Ni 78] H. Nishita, A. Wallace und E.M. Romney; "Radionuclide uptake by plants," NUREG.CR-0336 (PB-287431), National Technical Information Service (1978)

- [Ny 76] J.W. Nyhan, F.R. Miera, Neher; "Distribution of plutonium in Trinity soils after 28 years," J. Environ. Qual., Vol. 5 (1976) 431-437
- [On 81] Y. Onishi, R.J. Serne, E.M. Arnold, C.E. Cowen, F.L. Thompson; "Critical review: Radionuclide transport, sediment transport, and water quality mathematical modelling and radionuclide adsorption/desorption mechanisms", NUREG/CR-1322, PNL/USNRC (1981)
- [Pa 80] N.J. Pattenden, R.S. Cambray, K. Playford, J.D. Eakins, E.M.R. Fisher; "Studies of environmental radioactivity in Cumbria, Part 3", Measurements of radionuclides in airborne and deposited material, AERE-R9857, UK Atomic Energy Authority, Harwell (1980)
- [Pa 81] N.J. Pattenden, R.S. Cambray, K. Playford, J.D. Eakins, E.M.R. Fisher; "Atmospheric measurements on radionuclides previously discharged to sea," in: Impacts of Radionuclides Releases into the Marine Environment, STI/PUB/565, IAEA, Vienna (1981) 201-221
- [Pe 51] D.F. Peppard, M.H. Studier, M.V. Gergel, G.W. Mason, J.C. Sullivan, J.F. Mech; J. Am. Chem. Soc. 73 (1951) 2529
- [Pe 81] R.J. Pentreath; "The biological availability to marine organism of transuranium and the other long-lived nuclides," in: Proceedings of an International Symposium on the Impacts of Radionuclide Releases into the Marine Environment, Vienna, October 1980; IAEA-SM-248/102, IAEA, Vienna (1981) 241-272
- [Pi 76] K.C. Pillai, E. Matthew; "Plutonium in the aquatic environment: its behaviour, distribution and significance," in: Transuranic Nuclides in the Environment, IAEA-SM-199/27, IAEA, Vienna (1976) 25-45
- [Ro 72] E.M. Romney, J.J. Davis; "Ecological aspects of plutonium dissemination in terrestrial environments", Health Phys., Vol. 22 (1972) 551-557
- [Schü 81] H. Schüttelkopf; "Entwicklung einer Analysenmethode für Plutonium im Femtogramm/Gramm-Bereich und ihre Anwendung auf Umweltproben, KfK-3035 (September 1981)

- [Se 46] G.T. Seaborg, E.M. McMillan, J.W. Kennedy, A.C. Wahl; Phys. Rev. 69 (1946) 366
- [Se 48] G.T. Seaborg, M.L. Perlman; J. Am. Chem. 70 (1948) 3453
- [SSK 87] "Auswirkungen des Reaktorunfalls von Tschernobyl auf die Bundesrepublik Deutschland", Veröffentlichung der Strahlenschutzkommission, Band 7, Gustav-Fischer-Verlag, Stuttgart (1987)
- [Te 80] W.L. Templeton; "Ecological effects of transuranics in the marine environment," in: International Symposium on Radiation Effects on Aquatic Organisms, Kanagawa, Japan (1980) 3-12
- [UN 77] "Sources and Effects of Ionizing Radiation," United Nations Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation, 1977 Report to the General Assembly, United Nations, New York (1977)
- [Va 73] J. Vaughan, B.B. Bleaney, D.M. Taylor; "Distribution, excretion and effects of plutonium as a bone-seeker," in: H.C. Hodge, J.N. Stannard, J.B. Hursh (eds.), Handbook of Experimental Pharmacology, Vol. 36, Uranium, Plutonium, Transplutonic Elements, Springer-Verlag, Berlin (1973) 349-502
- [Wa 80] R.L. Walters, D.N. Edgington, T.E. Hakonson, W.C. Hanson, M.H. Smith, F.W. Whicker, R.E. Wildung; "Synthesis of the research literature," in: W.C. Hanson (eds.), Transuranic Elements in the Environment, Technical Information Centre, US Dept. of Energy (1980)
- [Wa 81] R.L. Watters; "Ecological transport," in: Wrenn, M.E. (ed.), Actinides in Man and Animals, R.D. Press, Ohio (1981) 503-507
- [We 86] F. Weigel, J.J. Katz, G.T. Seaborg; Plutonium in: "The Chemistry of the Actinide Elements," Vol. 1, J.J. Katz, G.T. Seaborg, L.R. Morris (eds.), Chapman and Hall, London, 2nd edition (1986)

- [Wi 74] M. Wilhelmi; "Literaturstudie über die Verbreitungsmechanismen von freigesetztem Plutonium", Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK 1974 (1974)
- [Wi 79] R.E. Wildung, T.R. Garland, D.A. Cataldo; "Environmental processes leading to the presence of organically bound plutonium in plant tissues consumed by animals", PNL-SA-7257, Battelle Pacific Northwest Laboratory, Richland (1979)
- [Wi 86] J. Winkelmann et al.; Ergebnis von Radioaktivitätsmessungen nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl, Institut für Strahlenhygiene des Bundesgesundheitsamtes Neuherberg, ISH-Heft 99 (1986)
- [Wi 88] I. Winkelmann, P. Gesewsky, S. Schmerbeck; Water Chemistry in Nuclear Power Plants, IAEA Interregional Training Course, Karlsruhe (1988)
- [Ya 81] M. Yamamoto, T. Tanii und M. Sakanoue; "Characteristics of fallout plutonium in soil," J. Radiat. Res., Vol. 22 (1981) 134-142

2 Plutonium-Handhabung im Brennstoffkreislauf

D. Faude, G. Keßler, H. Krause, R. Kroebele, G. Mühling, H.W. Wiese

2.1 Einleitung

Plutonium entsteht in der Kerntechnik im laufenden Betrieb von Kernkraftwerken durch Kernreaktionen im Brennstoff: Einfangreaktionen von Neutronen in Uran-238 mit anschließendem β -Zerfall führen über das Neptunium-Isotop Np-239 zum Plutonium-Isotop Pu-239; durch weitere Einfangreaktionen von Neutronen können daraus die Isotope Pu-240, Pu-241, Pu-242 entstehen. Plutonium wird im Kernbrennstoff gleichzeitig von Neutronen wieder gespalten und trägt somit, neben dem natürlich vorkommenden und im Kernbrennstoff eingesetzten U-235-Isotop, beträchtlich zur Energieerzeugung bei. Weiter entstehen durch Einfangreaktionen und β - bzw. α -Zerfallsreaktionen aus den verschiedenen, künstlich erzeugten Pu-Isotopen Isotope der Transplutonium-Elemente Americium und Curium sowie aus Uran-Isotopen weitere Neptunium-Isotope (Einzelheiten siehe Kapitel 1, insbesondere Tabelle 1.1). Neptunium, Plutonium, Americium und Curium zusammen werden im folgenden als Transurane bezeichnet.

Die jeweilige Menge der in den Brennelementen erzeugten Transurane-Isotope ist abhängig von der Geschwindigkeitsverteilung der Neutronen (Neutronenspektrum) im Reaktorkern und von der Betriebszeit, die die Brennelemente während der Leistungserzeugung im Reaktorkern stehen. Bei Kernkraftwerken vom Typ Leichtwasserreaktor (LWR), wie sie heute nahezu ausschließlich in der Bundesrepublik Deutschland betrieben werden, beträgt die Einsatzdauer von Brennelementen etwa 3 Jahre (entsprechend ca. 1000 Vollast-Tagen). Am Ende dieser Einsatzdauer erreicht das Isotopengemisch von Plutonium eine Zusammensetzung, wie sie in Abschnitt 2.2.2 in Tabelle 2.2 beispielhaft angegeben ist. Ein solches Gemisch aller Plutonium-Isotope von Pu-238 bis Pu-242 wird als "Reaktorplutonium" bezeichnet, im Gegensatz zu "Waffenplutonium", das aus nahezu reinem Pu-239 besteht (über die Befürchtung einer möglichen Waffentauglichkeit von Reaktorplutonium siehe [Wa 89]).

Nach dem Abschalten und anschließenden Ausladen der Brennelemente aus dem Reaktorkern verändert sich die Menge der einzelnen Isotope nur noch durch Kernzerfallsreaktionen. Tabelle 2.1 zeigt beispielhaft die zeitliche Änderung der

Konzentration der einzelnen Transurane-Isotope im abgebrannten Brennstoff eines Druckwasserreaktors.

	beim Abschalten		nach 7 Jahren	
	(g)	(Bq)	(g)	(Bq)
Np-236	1.771E - 05	3.868E + 11	0.000E + 00	0.000E + 00
Np-237	4.261E + 02	1.112E + 10	4.376E + 02	1.142E + 10
Np-238	1.206E + 00	1.157E + 16	7.239E - 08	6.945E + 08
Np-239	8.389E + 01	7.203E + 17	7.201E - 05	6.183E + 11
Pu-236	1.565E - 03	3.078E + 10	2.870E - 04	5.646E + 09
Pu-238	1.318E + 02	8.352E + 13	1.376E + 02	8.717E + 13
Pu-239	5.387E + 03	1.239E + 13	5.470E + 03	1.259E + 13
Pu-240	2.228E + 03	1.880E + 13	2.232E + 03	1.883E + 13
Pu-241	1.216E + 03	4.636E + 15	8.681E + 02	3.310E + 15
Pu-242	4.859E + 02	6.867E + 10	4.859E + 02	6.867E + 10
Pu-243	1.166E - 01	1.123E + 16	1.301E - 13	1.253E + 04
Am-241	3.703E + 01	4.705E + 12	3.823E + 02	4.857E + 13
Am-242m	3.986E - 01	1.434E + 11	3.861E - 01	1.389E + 11
Am-242	9.469E - 02	2.833E + 15	4.618E - 06	1.382E + 11
Am-243	8.373E + 01	6.178E + 11	8.379E + 01	6.183E + 11
Cm-242	1.243E + 01	1.521E + 15	1.177E - 03	1.440E + 11
Cm-243	3.241E - 01	6.193E + 11	2.734E - 01	5.224E + 11
Cm-244	2.393E + 01	7.167E + 13	1.837E + 01	5.500E + 13
Cm-245	8.043E - 01	5.112E + 09	8.038E - 01	5.109E + 09
Cm-246	7.316E - 01	8.318E + 09	7.308E - 01	8.310E + 09
TOTAL	1.012E + 04	7.523E + 17	1.012E + 04	3.535E + 15

Tab. 2.1: Konzentration von Transuranen im abgebrannten Brennstoff (Druckwasserreaktor, 33 000 MWd/t Abbrand, alle Angaben bezogen auf 1 t Schwermetall frischen Brennstoff)

2.2 Brennstoff-Kreislauf-Varianten von Kernreaktoren

2.2.1 Der offene Brennstoff-Kreislauf

Die einfachste Form eines Brennstoff-Kreislaufes ist der sogenannte "offene Kreislauf" (Abbildung 2.1), wie er im wesentlichen für heutige Kernkraftwerke vom Typ Leichtwasserreaktor (LWR) als erste Stufe der Kernenergienutzung weltweit verfolgt wird. Dabei wird das Natururan (0,71% U-235, 99,29% U-238) nach seiner Gewinnung in Uranerzgruben und nach seiner Reinigung (Konversion) in gasförmiges Uran-Hexafluorid (UF₆) umgewandelt, um dann in Isotopen-Anreicherungsanlagen (Gasdiffusions- oder Ultrazentrifugen-Anlagen) auf etwa 3 % U-235 für LWR-Brennstoff angereichert zu werden. Das angereicherte UF₆

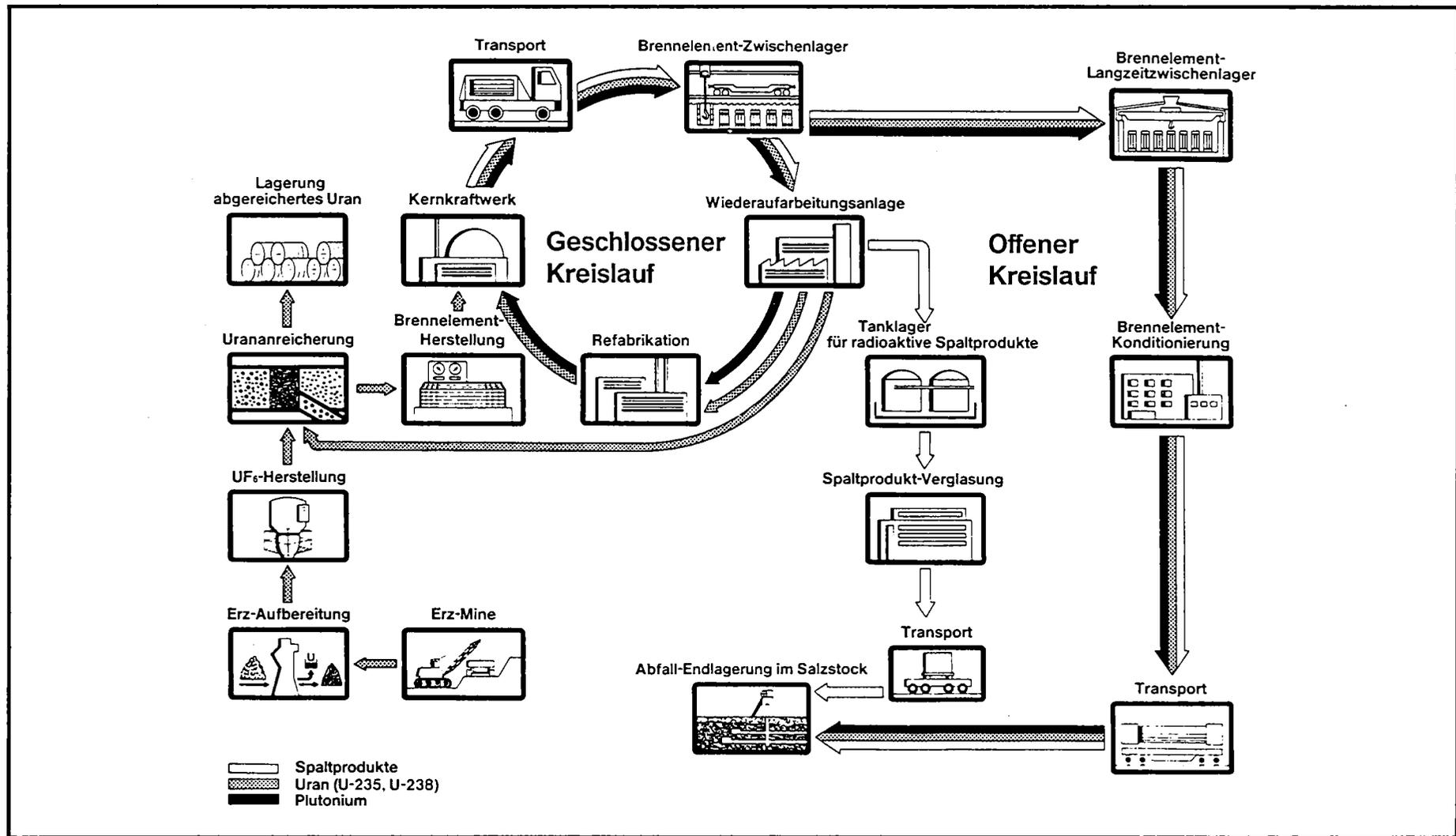


Abb. 2.1: Offener und geschlossener Brennstoff-Kreislauf bei Leichtwasserreaktoren

wird von dort in die Brennstoff-Fabrikationsanlage transportiert, von UF_6 in Urandioxid UO_2 umgewandelt und schließlich zu Brennstofftabletten gepreßt und gesintert. Diese Brennstoff-Tabletten werden beim LWR in Brennstabhülsen aus Zircaloy gefüllt und dicht verschweißt. Die Brennstabhülsen werden zu Brennelementen zusammenmontiert und in Transport-Behältern (siehe Abschnitt 2.6.1) zum Kernkraftwerk transportiert.

Nach Einsetzen in den Reaktorkern und Beginn des Leistungsbetriebes erzeugen die Brennelemente Energie über eine Betriebszeit von etwa 3 Jahren (LWR) und erreichen dabei einen Abbrand (Leistungs-Zeit-Integral bezogen auf die Brennstoffmenge) von derzeit 30 000 bis 35 000 MWd/ t_{SM} (angestrebt wird ein Zielabbrand von 45 000 MWd/t beim Druckwasserreaktor und von 40 000 MWd/t beim Siedewasserreaktor). Hierbei geht die U-235-Anreicherung von etwa 3,3 % auf etwa 0,8 % zurück, und über den Einfang von Neutronen in U-238 werden während der gesamten Betriebszeit gleichzeitig etwa 2,3 % Plutonium und sonstige Transurane erzeugt. Von diesen 2,3 % werden ca. 1,3 % im laufenden Betrieb wieder gespalten und tragen somit zur Energieerzeugung bei; etwa 1 % verbleibt im abgebrannten Brennstoff mit einem Anteil von 94 % als Pu-Isotope, der Rest als Neptunium, Americium, Curium. Die durch den Kernspaltungsprozeß entstehenden Spaltprodukte (ca. 3 bis 3,5 %) bleiben im dicht verschweißten Brennstab eingeschlossen. Nach etwa dreijähriger Betriebszeit werden die abgebrannten Brennelemente aus dem Reaktorkern entladen und in ein Abklingbecken (Brennelementlager) innerhalb des Reaktorgebäudes gestellt. Nach ein bis einigen weiteren Jahren werden die abgebrannten Brennelemente mit Transportbehältern in ein Zwischenlager (siehe Abschnitt 2.6.2) transportiert. Es ist beabsichtigt, sie nach weiteren etwa zehn bis zwanzig Jahren in eine Konditionierungsanlage für abgebrannte Brennelemente zu bringen, sie dort in Spezialbehälter zu verpacken und mitsamt den Behältern in ein geologisches Endlager (z. B. Salzdom) etwa 700 bis 1000 m tief unter der Erdoberfläche zu bringen und sie damit der Endlagerung zuzuführen (direkte Endlagerung) [KfK 87a, KfK 87b]. Da diese Art der direkten Endlagerung noch nirgends in der Welt demonstriert wurde, ist in der Bundesrepublik Deutschland der Bau einer Pilot-Konditionierungsanlage in Gorleben geplant.

Der offene Brennstoffkreislauf ist als Wegwerfkonzept zu bezeichnen, bei dem - technisch gesehen - die Konditionierung von abgebrannten Brennelementen an die Stelle der chemischen Wiederaufarbeitung tritt. Damit entfällt auch die Handhabung von abgetrenntem Plutonium zur Rezyklierung. Aus der Sicht der

Schonung von Energieressourcen ergibt sich dabei die Tatsache, daß das im Reaktorbetrieb erzeugte Plutonium ebenso wie das nicht gespaltene Uran-235 nicht weiter zur Energieerzeugung genutzt werden kann. Ebenso ist aus der Sicht der Spaltstoffüberwachung die laufende Akkumulierung von Spaltstoffen im Endlager als Nachteil zu erwähnen. International anerkannte Sicherungskonzepte zur Spaltmaterialüberwachung fehlen bisher für den offenen Brennstoffkreislauf. Wie in Abschnitt 2.3 in Abbildung 2.2 gezeigt wird, werden im offenen Brennstoffkreislauf pro 1000 MWe jährlich etwa 230 kg Transurane (davon 205 kg Plutonium) ins Endlager eingelagert.

2.2.2 Der geschlossene Brennstoff-Kreislauf von Leichtwasserreaktoren (Plutonium-Rezyklierung)

Der geschlossene Brennstoff-Kreislauf für die heutigen Kernkraftwerke vom Typ Leichtwasserreaktor ist in seinem Verlauf bis zum Einsatz der Brennelemente im Reaktor zur Energieerzeugung und der anschließenden Lagerung der abgebrannten Brennelemente in einem Zwischenlager mit dem offenen Brennstoff-Kreislauf identisch (Abbildung 2.1). Anschließend jedoch werden die abgebrannten Brennelemente nach etwa drei bis sieben Jahren Abklingzeit in eine Wiederaufarbeitungsanlage gebracht und dort chemisch aufgearbeitet. Dabei werden die einzelnen Brennstäbe zerschnitten, der abgebrannte Brennstoff in Salpetersäure aufgelöst und Uran und Plutonium von den Spaltprodukten und den Transplutonen durch Extraktion mittels des bekannten PUREX-Prozesses abgetrennt. Als Endprodukte erhält man Plutonium-Oxid, Uran-Oxid sowie hochaktive Abfallstoffe (Nitratlösungen von Spaltprodukten und Transplutonium-Isotopen sowie die Hülsen und Strukturteile der Brennelemente). Daneben entstehen in der Wiederaufarbeitungsanlage mittel- und schwachaktive Abfälle [Bau 84, KfK 87a, KfK 87b].

Im geschlossenen Brennstoff-Kreislauf werden nur die radioaktiven Abfälle sowie die unvermeidlichen und nicht rückgewinnbaren im Prozentbereich liegenden Verluste von Uran und Plutonium (Einzelheiten siehe Abbildung 2.2 in Abschnitt 2.3) aus dem Brennstoffkreislauf, nicht jedoch die gesamten Brennelemente für die Endlagerung konditioniert und nach weiterer Abklingzeit ins geologische Endlager verbracht. Es kommt nicht zu einer vergleichbaren Akkumulierung der Spaltstoffe im Endlager wie beim offenen Brennstoff-Kreislauf, viel-

mehr verbleibt Plutonium ebenso wie Uran-235 im Brennstoffkreislauf und wird zur Energieerzeugung genutzt.

Das chemisch abgetrennte Plutonium wird mit Uran zu neuen Plutonium/Uran-Mischoxid (PuO₂-UO₂)-Brennelementen - kurz: MOX-BE - verarbeitet. Diese Brennelemente werden zur Leistungserzeugung im Reaktor wieder eingesetzt (Plutonium-Rezyklierung) und können damit herkömmliche Brennelemente mit Uran-235 als Spaltstoff ersetzen. Im Gleichgewichtszustand können etwa 30 % solcher Pu-Rezyklier-Brennelemente in einem Leichtwasserreaktor eingesetzt werden. Die Anreicherung an spaltbarem Plutonium ist dabei annähernd gleich groß wie die der Uran-235-Brennelemente.

Auf diese Weise wird das in der Kerntechnik erzeugte und über die Wiederaufarbeitung rezyklierbare Plutonium zu einem wesentlichen Teil wieder gespalten (vernichtet). Es wird jedoch sowohl in Pu/U-Mischoxid-Brennelementen als auch in den U-235 angereicherten Brennelementen neues Plutonium erzeugt. Bei der erneuten Wiederaufarbeitung der abgebrannten Pu/U-Mischoxid-Brennelemente wird dieses Plutonium mit dem Plutonium aus den mit U-235 angereicherten Brennelementen vermischt. Dabei durchläuft das Plutonium in den MOX-Brennelementen mehrfach den Reaktor und den übrigen Brennstoff-Kreislauf. Über viele solcher Zyklen verändert sich die Zusammensetzung der Pu-Isotope, wie aus Tabelle 2.2 zu ersehen ist.

(in %)	aus U-235-BE *) = vor Beginn des 1. Zyklus	aus MOX-BE	
		nach dem 1. Zyklus	nach dem 5. Zyklus**)
Pu-238	1,5	2,0	2,5
Pu-239	59,5	44,2	37,7
Pu-240	24,3	29,8	28,7
Pu-241	9,4	12,7	11,0
Pu-242	5,3	11,3	20,1

*) Druckwasserreaktor, 33 000 MWd/t Abbrand

***) annähernd Gleichgewichtszustand

Tab. 2.2: Plutonium-Zusammensetzung nach verschiedenen Rezyklierstufen

Aus der Sicht der Neutronenbilanz bedeutet dies eine Verschlechterung, d. h. die Anreicherung an spaltbarem Plutonium muß mit zunehmender Zykluszahl angehoben werden [BMFT 81, Fi 83, Fi 86]. Bei drei Jahren Verbleib im Reaktor, sieben Jahren Kühlzeit vor Wiederaufarbeitung sowie ein bis zwei Jahren für die Wiederaufarbeitung und Verarbeitung zu MOX-Brennelementen dauert ein Zyklus mindestens zwölf Jahre.

2.2.3 Der geschlossene Brennstoffkreislauf von Schnellen Brutreaktoren

Eine weitere Möglichkeit zur Wiederverwendung des bei der Wiederaufarbeitung von abgebrannten LWR-Brennelementen gewonnenen Plutoniums ist der Einsatz als Erstinventar von Schnellen Brutreaktoren. Schnelle Brutreaktoren sind aufgrund ihrer neutronenphysikalischen Eigenschaften (Kernspaltung mit schnellen Neutronen, deshalb kein Moderator zur Abbremsung der Spaltneutronen im Kern) in der Lage, im laufenden Betrieb mehr Plutonium aus Uran-238 zu erzeugen, als sie gleichzeitig für die Energieerzeugung verbrauchen; sie erreichen damit - im Gegensatz zum Leichtwasserreaktor - eine positive Spaltstoffmengen-Bilanz. Bei einer optimalen Ausnutzung dieses Prozesses kann ein Schneller Brutreaktor etwa 80 bis 100 kg Plutonium pro 1000 MWe und Jahr (etwa die Hälfte von Leichtwasserreaktoren) als Überschuß erzeugen.

Die Brennelemente eines Schnellen Brütters bestehen aus Mischoxid-Brennstoff mit einer Anreicherung des gesamten Plutoniums von 15 bis 20 % (Pu-spaltbar: 11-15 %). Auch im Schnellen Brüter werden die abgebrannten Brennelemente nach etwa drei Jahren Leistungsbetrieb ausgeladen und in ein Brennelementlager gestellt, wo ihre Radioaktivität ähnlich abklingt wie bei LWR-Brennelementen. Nach einer gewissen Zwischenlagerzeit (ein bis einige Jahre) werden die Brennelemente dann nach dem gleichen chemischen Verfahren wie bei LWR-Brennelementen aufgearbeitet und das wiedergewonnene Plutonium und Uran zu neuen Brennelementen verarbeitet. Im Normalfall jedoch ist, im Gegensatz zu den heutigen Kernkraftwerken (z. B. vom Typ Leichtwasserreaktor), die Wiederaufarbeitung und das Rezyklieren des Brennstoffes bei Schnellen Brütern unabdingbar, will man das im Betrieb neu erzeugte Plutonium wiederverwenden und damit den Betrieb dieser Reaktoren von einer äußeren Spaltstoffzufuhr unabhängig machen.

2.3 Mengenbilanzen für Transurane im Brennstoffkreislauf

In den Abbildungen 2.2 und 2.3 sind Mengenbilanzen für Plutonium und die übrigen Transurane für die verschiedenen, in Abschnitt 2.2 beschriebenen Brennstoffkreislauf-Varianten angegeben. Die Zahlenangaben gelten beispielhaft für den Betrieb eines 1000-MWe-Kernkraftwerks; sie sollen eine Vorstellung vermitteln, welche Mengen an Transuranen in den einzelnen Stellen des Kreislaufs jeweils auftreten.

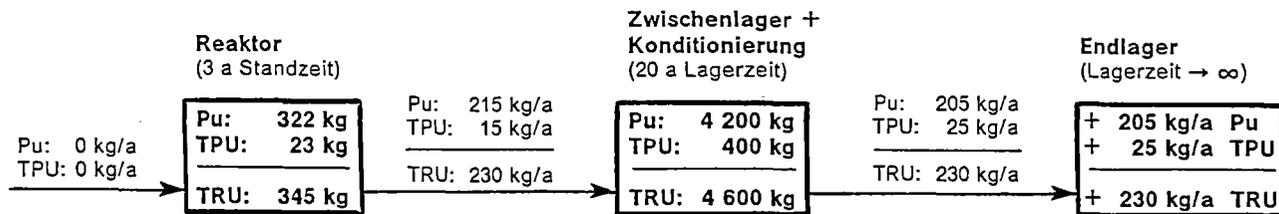
Im offenen Kreislauf (Abbildung 2.2) werden dem Kernkraftwerk mit den frischen Brennelementen keine Transurane zugeführt, sie entstehen erst im laufenden Reaktorbetrieb. Im Mittel über die Betriebszeit beträgt das gesamte Inventar an Transuranen im Reaktorkern 345 kg (davon Plutonium: 322 kg); jährlich werden insgesamt 230 kg (Plutonium: 215 kg) aus dem Reaktorkern entladen und über (mehrere) Zwischenlager bzw. die Konditionierungsanlage (Annahme: 20 a Lagerzeit, ergibt ein Gesamtinventar von 4600 kg) in das Endlager gebracht. Während der Lagerzeit nimmt die Plutoniummenge durch radioaktive Umwandlung z. B. von Pu-241 in Am-241 leicht ab und damit die der Transplutone zu.

Für den geschlossenen Kreislauf mit Plutonium-Rezyklierung (Abbildung 2.2) wird ein Gleichgewichtszustand mit 70 % Uran- und 30 % MOX-Brennelementen angenommen. In diesem Fall werden aus beiden Brennelementgruppen jährlich 474 kg Transurane (440 kg Plutonium, Einzelheiten siehe Tabelle 2.3) entladen. Auch hier nimmt während der siebenjährigen Lagerzeit (Gesamtinventar an Transuranen: 3318 kg) die Plutoniummenge zugunsten der übrigen Transurane geringfügig ab. Bei der anschließenden gemeinsamen Wiederaufarbeitung von U-235- und MOX-Brennelementen wird das Plutonium aus den abgebrannten Brennelementen vom Uran und den Spaltprodukten abgetrennt - die übrigen Transurane gehen ebenfalls in den hochaktiven Abfallstrom - und anschließend als Spaltmaterial in neuen MOX-Brennelementen verarbeitet. Bei beiden Prozessschritten - Wiederaufarbeitung und MOX-Fabrikation - werden rechnerisch insgesamt 2 % Verluste angenommen, d. h. neben den übrigen Transuranen gelangen jährlich 9 kg Plutonium mit dem Abfall ins Endlager. Dies führt zu einer jährlichen Plutonium-Beladung von 417 kg und einem mittleren Plutonium-Inventar von 1278 kg im Reaktorkern. In großen Anlagen lassen sich diese Verluste jedoch gegenüber den bisher betriebenen Anlagen mit geringem Durchsatz deutlich absenken; Zahlenwerte liegen aber noch nicht vor.

Annahmen: Druckwasserreaktor, 1000 MWe Leistung, Lastfaktor = 0,7, Wirkungsgrad = 34 %,
 Abbrand = 33 000 MWd/to, 3 Beladungszyklen, Standzeit = 3 a

Pu = Plutonium, TPU = Transplutone, TRU = Transurane (= Pu + TPU)

OFFENER KREISLAUF



GESCHLOSSENER KREISLAUF

Zusätzliche Annahme: Gleichgewichtszustand mit 70 % U-235-BE und 30 % MOX-BE

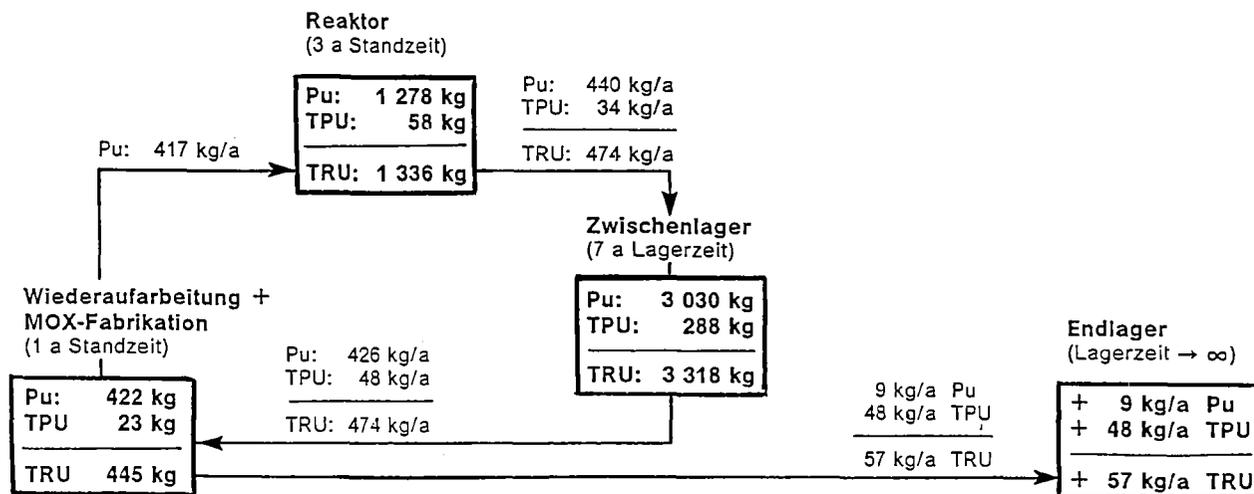


Abb. 2.2: Mengenbilanzen von Plutonium und sonstigen Transuranen im offenen und geschlossenen Kreislauf bei Leichtwasserreaktoren

Annahmen: 1000 MWe Leistung, Lastfaktor = 0,7, Wirkungsgrad = 40 %, Abbrand = 77 000 MWd/to,
 3 Beladungszyklen, Standzeit = 3,5 a
 Pu-Belademenge: 1700 kg/Zyklus, Pu-Entlademenge: 1860 kg/Zyklus,
 Pu = 98 % der gesamten Transurane

Pu = Plutonium, TPU = Transplutone, TRU = Transurane (= Pu + TPU)

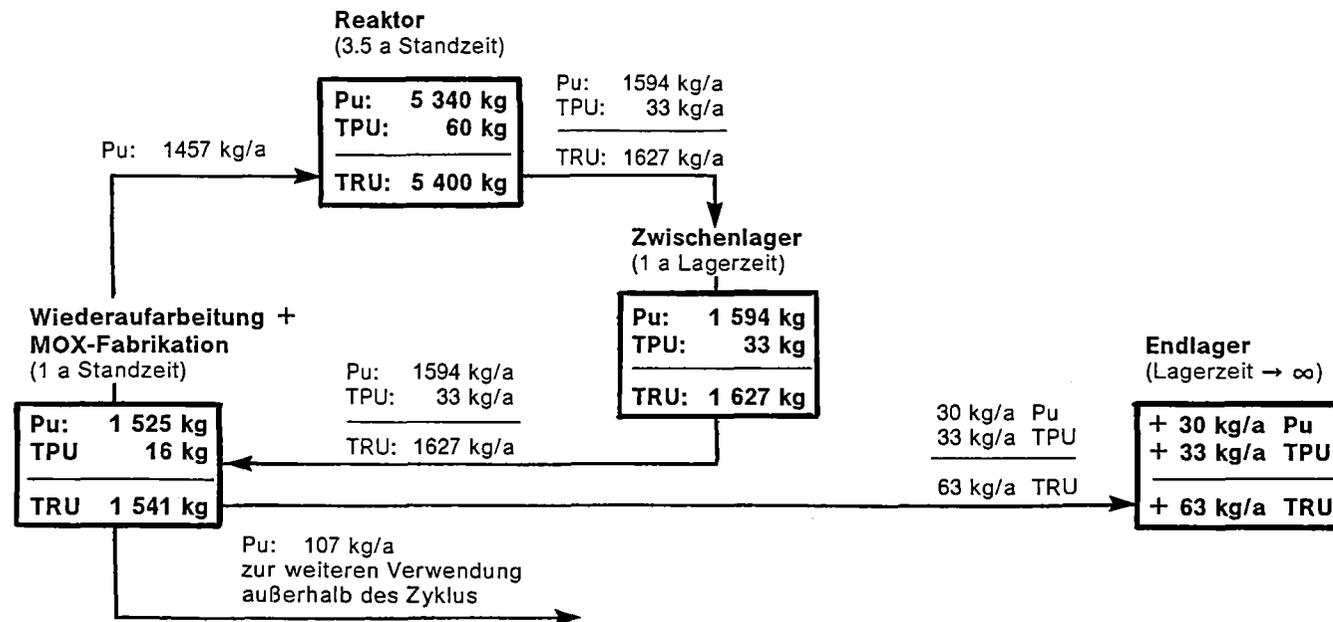


Abb. 2.3: Mengenbilanzen von Plutonium und sonstigen Transuranen im Kreislauf bei Schnellen Brutreaktoren

(kg/a)	Beladen			Entladen		
	U-BE	MOX-BE	Σ	U-BE	MOX-BE	Σ
Pu-238	0	8,9	8,9	2,1	6,6	8,7
Pu-239	0	188,7	188,7	86,0	104,7	190,7
Pu-240	0	113,6	113,6	35,5	78,9	114,4
Pu-241	0	43,7	43,7	19,4	43,0	62,4
Pu-242	0	62,6	62,6	7,8	56,2	64,0
Pu-spaltbar	0	232,4	232,4	105,4	147,7	253,1
Pu-gesamt	0	417	417*)	150,8	289,4	440*

(Angaben in kg/a, alle weiteren Einzelheiten siehe Abb. 2.2)

*) Die Differenz zwischen 440 und 417 ergibt sich durch Umwandlungen während der Lagerzeit bzw. Verluste bei der Wiederaufarbeitung und MOX-Fabrikation.

Tab. 2.3: Plutonium-Mengen beim Be- und Entladen eines Druckwasserreaktors mit 30 % MOX-Brennstoff im Gleichgewichtszustand

Die Mengenzustände von Plutonium und den übrigen Transuranen im geschlossenen Zyklus von Schnellen Brutreaktoren sind beispielhaft in Abbildung 2.3 dargestellt. Die Zahlenangaben basieren auf Be- und Entlademengen eines großen Schnellen Brutreaktors vom Typ SUPERPHENIX.

Bezogen auf 1000 MWe Leistungsgröße wird der Reaktor pro Zyklus mit 1700 kg Plutonium beladen, was einer Menge von 1457 kg/a entspricht. Über die dreieinhalbjährige Standzeit nimmt der Plutoniumgehalt im Reaktor zu, am Ende werden 1594 kg/a Plutonium entladen. Das Plutonium ist dabei teilweise im axialen und radialen Brutmantel entstanden; die Elemente aus dem radialen Brutmantel werden zusammen mit den MOX-Brennelementen (Reaktorkern + axiales Blanket) entladen und sollen später gemeinsam weiterverarbeitet werden, wenn dazu eigene Wiederaufarbeitungsanlagen für Brüterbrennstoffe errichtet und betrieben werden.

Die Prozesse bei der Wiederaufarbeitung und der Fabrikation von MOX-BE laufen in ähnlicher Weise ab wie bereits im vorigen Absatz bei der Plutonium-Rezyklierung im LWR beschrieben, die Mengen sind aus Abbildung 2.3 im einzelnen ersichtlich. Neu gegenüber der Plutonium-Rezyklierung im LWR ist, daß hier jährlich 107 kg Plutonium zur weiteren Verwendung außerhalb des Zyklus anfallen. Sofern diese Überschussmenge allerdings nicht anderweitig gebraucht wird, kann der Brutprozeß im Reaktor auch so gesteuert werden, daß kein Überschuß an Plutonium auftritt.

2.4 Grundsätzliches zur Freisetzung von Transuranen aus kerntechnischen Anlagen

Wie in Abschnitt 2.1 bereits beschrieben, entstehen Plutonium und die übrigen Transurane beim Reaktorbetrieb im Brennstoff durch Kernreaktionen. Da der Kernbrennstoff in Form von keramischen UO_2 -Brennstofftabletten eingesetzt wird, binden auch neuentstehende Transuran-Atome sofort im Brennstoff vorhandene Sauerstoffatome und liegen dann in oxidischer (keramischer) und damit in schwer wasserlöslicher Form vor.

Auf der anderen Seite stellen Transurane dann eine Gefahr für die Umgebung dar, wenn sie entweder in Form von unlöslichen Oxiden als Staubpartikel, sogenannte Aerosole, oder in löslichen Verbindungen (z. B. Nitrate) vorhanden sind und in diesen Formen freigesetzt und von Mensch, Tier oder Pflanze aufgenommen werden. Dies führt auf die Fragen, unter welchen Randbedingungen die oben genannten Zustandsformen von Transuranen überhaupt gebildet werden können, und welches die grundsätzlichen Mechanismen zu ihrer Freisetzung sind.

Hierzu ist es wichtig zu wissen, unter welchen physikalischen Bedingungen Transurane an den einzelnen Stellen im Brennstoffkreislauf vorkommen (Einzelheiten dazu siehe Tabelle 2.4), bzw. welche technischen Maßnahmen in den einzelnen Anlagen des Brennstoffkreislaufes getroffen werden, um eine Freisetzung als Staub, Aerosol oder lösliche Verbindung zu verhindern.

Die Bildung von feinen Staub-Partikeln und Aerosolen ist im wesentlichen nur möglich bei mechanischer Bearbeitung oder thermischer Behandlung der Oxidkeramiken bzw. beim Verdampfen von Lösungen (z. B. Nitrate) von Transuranen, und auch dann nur oberhalb der jeweiligen Schmelz- oder Verdampfungstemperaturen. Diese liegen z. B. für PuO_2 bei etwa $2600\text{ }^\circ\text{C}$ (Schmelzpunkt) bzw. $3500\text{ }^\circ\text{C}$ (Verdampfungspunkt). Die Zahlenangaben in Tabelle 2.4 zeigen, daß ein Verdampfen mit Aerosolbildung der Oxide von Plutonium und den übrigen Transuranen nicht im Normalbetrieb sondern - wenn überhaupt - nur in gewissen Unfallsituationen möglich ist.

Im folgenden soll für jede Anlage des Brennstoffkreislaufes im einzelnen dargestellt werden, welche prinzipiellen Freisetzungsmöglichkeiten für Transurane bestehen.

	Kernkraftwerk 1300 MWe LWR	Transport- bzw. Lager- Behälter	Zwischenlager	Wiederaufarbeitung MOX-Fabrikation	Abfallkonditionierung	
Leistungsgröße	193 BE DWR 748 BE SWR	19 BE DWR 64 BE SWR	bis zu 4000 t Uran	WAA: La Hague 1600 t/a Sellafield 1200 t/a Wackersdorf max. 500 t/a MOX-Fabr. ALKEM 100 t/a Marcoule 100 t/a Belgien 70 t/a		
<u>Normalbetrieb</u>						
Brennstoff- Leistungsdichte Maximale Betriebs- temperatur	50-100 kW/l im Reaktorkern ≈ 2000 °C	≈ 1 kW/BE 2-5 W/kg BE 390 °C max.	< 1 kW/BE Brennstoff: < 300 °C, Wasser: 40 °C	WAA: 4-5 W/l 25-125 °C	MOX-Fabr.: sehr gering 150-1700 °C	2,5 kW pro 150 l HAWC Glaskokille Verglasung: 1150 °C Verbrennung: 850-1200 °C Pyrolyse: 800 °C
<u>Zu betrachtende Unfälle</u>	Kern- Niederschmelzen Äußere Einwirkungen	- Äußere Einwirkungen	- Äußere Einwirkungen	Kritikalitätsstörfall, Brand Verdampfer-Explosion Äußere Einwirkungen	---- Äußere Einwirkungen	

Tab. 2.4: Wichtige Auslegungsparameter für einzelne Anlagen des Brennstoffkreislaufes

2.5 Freisetzungsmöglichkeiten von Transuranen in Kernkraftwerken

2.5.1 Das Barrierenkonzept

Der Brennstoff ist im Reaktorkern durch mehrere Barrieren von der Umwelt getrennt (siehe Abbildung 2.4). Wie schon erwähnt, liegen Plutonium und die übrigen Transurane zusammen mit Uran als Mischoxid in keramischen Tabletten vor. Diese Brennstoffmatrix hält ebenso die festen Spaltprodukte zurück. Die keramischen Brennstofftabletten sind in gasdicht verschweißte Brennstabhüllrohren eingefüllt (Zirkaloy, Stahl). Die Brennstäbe bleiben während des Reaktorbetriebes gasdicht. Sollten Brennstäbe während des Reaktorbetriebes durch lokale Überbeanspruchung oder Materialfehler leck werden, so kann dies über die dann austretenden gasförmigen radioaktiven Spaltprodukte durch eingebaute Meßinstrumente detektiert werden. Das fest in die Brennstoffmatrix eingefügte Plutonium und die übrigen Transurane verbleiben dabei jedoch im Brennstab und gelangen - wenn überhaupt - höchstens in Spurenkonzentrationen ins Kühlmittel. Da diese Spuren in Reinigungskreisläufen entfernt werden, können schadhafte Brennelemente üblicherweise erst im Rahmen des jährlichen Brennstoffwechsels entladen und anschliessend entweder repariert oder besonders gehandhabt, z. B. eingebüchst werden.

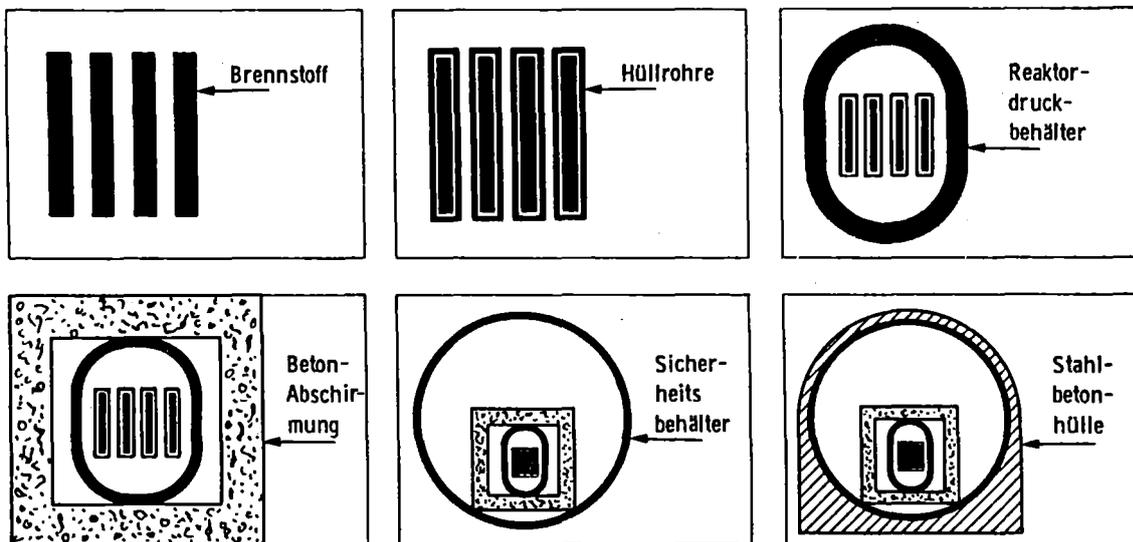


Abb. 2.4: Barrierenkonzept bei modernen Leichtwasserreaktoren

Bei natriumgekühlten Reaktoren werden Brennelemente - falls ein Schaden über austretende Spaltprodukte detektiert wird - gegebenenfalls schnellstmöglich aus dem Kernverband herausgenommen, sofern eine Weiterentwicklung des Schadens zu befürchten ist.

Als nächste Barriere nach dem Brennstoffgitter und der Brennstabhülle folgen das aus Reaktortank und primärem - geschlossenem - Kühlkreislauf bestehende Primärsystem und die Betonabschirmung. Natriumgekühlte Brutreaktoren haben darüber hinaus zwischen primärem Kühlsystem und dem Dampfkreislauf noch einen nichtradioaktiven Natrium-Zwischenkreislauf sowie eine innere Umhüllung (inner containment) als Zusatzbarriere, die mit Stickstoff gefüllt ist, um u. a. Brände von radioaktivem Natrium zu verhindern.

Die primären Kühlkreisläufe bzw. die innere Umhüllung bei Schnellen Brüttern werden dann von dem äußeren Sicherheitsbehälter umgeben. Dieser äußere Sicherheitsbehälter besteht bei heute gebauten Kernkraftwerken aus einer Stahlhülle und einem Stahlbetonbehälter. Dadurch wird eine hohe Dichtheit gegen Lecks nach außen gewährleistet und das Innere gegen äußere Einwirkungen wie Erdbeben, Flugzeugabsturz, chemische Explosionen und sonstige äußere Einwirkungen geschützt.

Dieses Barrierenkonzept stellt einen in der Tiefe gestaffelten Schutz gegen das Austreten von radioaktiven Nukliden in die Atmosphäre sowohl für Normalbetrieb als auch für Störfallsituationen dar, der auch beim Versagen einzelner Barrieren die Schutzfunktion nach außen weiterhin gewährleistet.

2.5.2 Freisetzungen durch Brennelementschäden

Uran, Plutonium und die übrigen Transurane können nach dem oben beschriebenen Barrierenkonzept in Kernkraftwerken nur durch defekte (leckgewordene) Brennelemente in den primären Kühlkreislauf gelangen. Von dort gelangen sie über die Kühlmittel-Reinigungskreisläufe in Abfalltanks oder in Kühlfallen (bei natriumgekühlten Brutreaktoren) und werden dort zusammen mit Korrosions- und Spaltprodukten gespeichert. In den flüssigen Abfallprodukten vorhandene Radioaktivität wird analysiert. Flüssige Abfallprodukte werden eingedampft oder durch Ionentauscher gereinigt und dann als schwachaktiver oder mittel-

aktiver Abfall der Endlagerung zugeführt. Die gasförmigen Spaltprodukte (Edelgase) werden nach einer Zeitverzögerung zum Abklingen der kurzlebigen radioaktiven Spaltprodukte über Filterstrecken geleitet und über den Kamin in die Umgebung abgegeben, die Aerosole über Filterstrecken mit hohem Abscheidegrad zurückgehalten [Ke 83].

Eine Analyse und Wertung der Betriebserfahrungen mit Kernkraftwerken zeigt, daß im wesentlichen nur die Freisetzung von Spalt- und Korrosionsprodukten eine Rolle spielt [BMU 85]. Uran, Neptunium, Plutonium, Americium, Curium sind demgegenüber vernachlässigbar und werden - wenn überhaupt - hauptsächlich in Siedewasserreaktoren und auch dann nur in Spurenkonzentrationen von 10^3 - 10^4 Bq/GWe·a freigesetzt. Tabelle 2.5 [BMU 85] zeigt beispielhaft Freisetzungen von deutschen Druck- und Siedewasserreaktoren. Freisetzungen von Plutonium und anderen Transuranen spielen hierbei praktisch keine Rolle.

Das gleiche gilt auch für die Belastung des Betriebspersonals von Kernkraftwerken. Die radioaktive Belastung des Betriebspersonals wird bei Inspektions- und Reparaturarbeiten im wesentlichen durch Direktstrahlung von neutronenaktivierten Strukturmaterialien sowie durch Korrosions- und Spaltprodukte verursacht.

Soweit natriumgekühlte Brutreaktoren heute schon betrieben werden, gelten hier ähnliche Betriebserfahrungen, wobei durch die chemische Affinität des Natriums gegenüber z. B. Tritium und radioaktivem Iod sogar geringere Strahlenexpositionen des Betriebspersonals wie auch der Umwelt berichtet werden [IAEA 85, Bro 88].

Auch für Leichtwasserreaktoren, die später bei der Rezyklierung von Plutonium bis zu 30 % MOX-Brennelemente im Reaktorkern enthalten können, sollten sich die obigen Erfahrungen nicht grundsätzlich ändern [Sche 88] Diese MOX-Brennelemente haben eine Plutonium-Anreicherung (Pu-gesamt) von etwa 4 bis maximal 7 % und liegen damit im Mittel etwa um den Faktor 5 über dem Wert von 0,9 % Plutonium-Anreicherung von Uran-Brennelementen am Ende ihrer Lebensdauer. Außerdem wird ihr Gehalt an Americium und Curium je nach Rezyklierungsstufe um den Faktor 10 bis 20 bzw. 15 bis 30 in abgebranntem Zustand größer sein als der von U-235 angereicherten Brennelementen. Auch wenn man annehmen würde, daß die Brennelementschäden statt in Uran-Brennelementen ausschließlich in MOX-Brennelementen auftreten würden und die in Tabelle 2.5

Radio-nuklid	KWO (DWR)	KKS (DWR)	KWW (SWR)	Biblis A (DWR)	Biblis B (DWR)	GKN-1 (DWR)	KKB (SWR)	KKI-1 (SWR)	KKU (DWR)	KKP (SWR)	KKG (DWR)	KKK (SWR)
Cr-51	6,2E + 05	1,1E + 06				2,8E + 05	1,4E + 06	2,2E + 07		1,0E + 08	1,2E + 05	1,7E + 07
Mn-54	6,2E + 05	5,4E + 05	1,7E + 06			1,0E + 05	1,6E + 05	2,4E + 07		7,6E + 05	2,1E + 04	6,7E + 06
Fe-59							1,9E + 04	2,9E + 06		6,0E + 04		8,0E + 05
Co-58	2,5E + 06	1,9E + 06	9,0E + 05			4,6E + 05	9,0E + 04	2,0E + 06		1,1E + 06	1,6E + 05	2,6E + 06
Co-60	1,9E + 07	1,8E + 07	7,6E + 07	3,0E + 07	5,4E + 06	1,1E + 07	1,7E + 06	6,3E + 07	7,8E + 06	5,5E + 06	1,8E + 06	1,3E + 07
Zn-65	3,0E + 04		4,5E + 06				1,5E + 06	3,5E + 06		1,7E + 06		1,1E + 07
Sr-89	1,0E + 05		4,6E + 07				7,1E + 05	3,6E + 04		8,0E + 04		2,4E + 05
Sr-90	1,9E + 04	9,4E + 03	2,3E + 06				2,2E + 03					8,1E + 03
Zr-95		1,0E + 05	1,0E + 05						1,5E + 05			
Nb-95			3,2E + 06			1,2E + 05				8,0E + 04		
Ru-103		6,4E + 05	2,6E + 06							1,5E + 05		
Ru-106		1,1E + 05	1,5E + 06									
Ag-110m	4,8E + 05	2,0E + 06				2,4E + 05	7,2E + 03	2,9E + 07	7,4E + 04	4,4E + 05		
Sb-124	2,6E + 04	8,3E + 05		3,0E + 07		5,7E + 05		1,5E + 06	1,3E + 05			3,7E + 05
Sb-125						5,0E + 04						
Te-123m				1,9E + 08	5,5E + 07	6,5E + 05	3,1E + 06				4,2E + 04	
Cs-134	3,3E + 04	2,2E + 05	1,2E + 07			2,0E + 04	2,2E + 06			2,8E + 05		
Cs-137	1,4E + 06	3,5E + 06	6,4E + 07		7,8E + 05	4,4E + 05	8,5E + 06		4,6E + 04	5,9E + 05		
Ba-140			2,9E + 07				1,2E + 06					
La-140		4,3E + 04	1,8E + 07				7,6E + 05	9,1E + 04				
Ce-141	4,1E + 04		4,8E + 06				3,4E + 04					
Ce-144		5,4E + 04	2,0E + 06									
Pu-238/ Am-241	6,2E + 03		1,5E + 04									
Pu-239/ Pu-240			5,0E + 03									
Cm-242			4,9E + 04									
Cm-244			2,0E + 04									

DWR = Druckwasserreaktor
SWR = Siedewasserreaktor

KWO = Kernkraftwerk Obrigheim
KKS = Kernkraftwerk Stade
KWW = Kernkraftwerk Würgassen
GKN = Gemeinschaftskernkraftwerk
Neckarwestheim
KKB = Kernkraftwerk Brunsbüttel

KKI = Kernkraftwerk Isar
KKU = Kernkraftwerk Unterweser
KKP = Kernkraftwerk Philippsburg
KKG = Kernkraftwerk Grafenrheinfeld
KKK = Kernkraftwerk Krümmel

Tab. 2.5: Abgabe radioaktiver Aerosole mit der Abluft aus Kernkraftwerken im Jahre 1985 (in Bq)

genannten Freisetzungsraten proportional mit der Plutonium-Anreicherung bzw. der erhöhten Konzentration der übrigen Transurane gingen, so bliebe man immer noch im Bereich von Spurenkonzentrationen, die bei einer Freisetzung von den radiologischen Auswirkungen der Edelgase, der Spalt- und Korrosionsprodukte deutlich überlagert würden. Bisherige Erfahrungen an deutschen Druckwasserreaktoren, die MOX-Brennelemente geladen hatten, zeigen, daß die radiologische Belastung des Betriebspersonals durch Plutonium und die übrigen Transurane praktisch vernachlässigbar gewesen sind [Sche 88].

2.5.3 Abschätzung der Freisetzungen im Falle von Kernschmelz-Unfällen

Die radiologischen Auswirkungen von schweren hypothetischen Unfällen jenseits der Anlagenauslegung werden in sogenannten Risiko-Analysen abgeschätzt, hierbei wird sowohl die Eintrittswahrscheinlichkeit als auch das Schadensausmaß von entsprechenden Unfallabläufen ermittelt.

Der schwerstmögliche Unfallablauf tritt dann auf, wenn Versagensmechanismen in der Anlage zum Schmelzen des Reaktorkerns führen; die Eintrittswahrscheinlichkeit für solche Fälle ist jedoch sehr gering - etwa 10^{-5} /Reaktorbetriebsjahr [GRS 80]. Entsprechende Experimente, mit denen einzelne Phasen eines solchen Unfallablaufs simuliert worden sind [Alb 87], zeigen, daß die radioaktiven Edelgase Kr, Xe sowie die leicht flüchtigen radioaktiven Spaltprodukte Br, I, Rb, Cs (mit relativ niedrigem Siedepunkt) zu 100 % im Reaktor-Druckbehälter bzw. nach dessen Durchschmelzen in den äußeren Sicherheitsbehälter freigesetzt werden, während diejenigen Spaltprodukte mit hohem Schmelzpunkt wie z. B. Zr, Nb, La, Ce und vor allem der oxidische Kernbrennstoff aus Uran, Plutonium, Neptunium, Americium und Curium nur zu etwa 0,02 % als Aerosole freigesetzt werden (siehe Tabelle 2.6). Dies erklärt sich aus den während des Niederschmelzens im Kernbrennstoff auftretenden Temperaturen und den physikalischen Eigenschaften (wie z. B. Schmelz- und Siedepunkt) der Spaltprodukte bzw. von Uran, Plutonium sowie der übrigen Transurane.

Nach dem Niederschmelzen und der Freisetzung als Aerosole unterliegen diese innerhalb der dichten Stahlhülle im Wasserdampf-, Luft-, Aerosol-Gemisch den aerosolphysikalischen Effekten wie Agglomeration, Diffusiophorese und Sedimentation, so daß die Aerosolkonzentration innerhalb von etwa 100 Stunden

um etwa vier Größenordnungen abfällt [Schö 87]. Wenn nach etwa vier Tagen der Druck im Sicherheitsbehälter durch Verdampfen von Wasser und Wasserstoffbildung auf etwa 6 bar ansteigt, wird der Behälter über ein besonderes Abgasfilter (ein sogenannter Exventing-Filter) druckentlastet. Da das Druckentlastungsfilter mit einem Filterwirkungsgrad von 99,9 % arbeitet, werden in diesem Unfall-Szenario letztlich insgesamt nur etwa $2 \cdot 10^{-11}$ der ursprünglich im Reaktorkern vorhandenen Menge an Uran, Plutonium und der übrigen Transurane in die Umgebung freigesetzt. Diese Freisetzung ist gegenüber der Freisetzung an Spalt- und Aktivierungsprodukten wie z. B. Iod, Cäsium und gegenüber den Spaltedelgasen und den dadurch verursachten radiologischen Konsequenzen praktisch vernachlässigbar.

Inventar		Freisetzung		Im Reaktorsicherheitsbehälter nach 4 Tagen		Exventing Filter-Austritt
Elemente	Aktivität (Bq)	rel. (%)	abs. (Bq)	rel. (%)	Aktivität Beginn Exventing (Bq)	0.1% (Kr, Xe: 100%) (Br, I: 10%) (Bq)
Kr, Xe	1.47E + 19	100	1.47E + 19	100	1.47E + 19	1.47E + 19
Br, I	2.58E + 19	100	2.58E + 19	0.01	2.58E + 15	2.58E + 14
Rb, Cs	3.61E + 18	100	3.61E + 18	0.01	3.61E + 14	3.61E + 14
Te	9.40E + 18	80	7.52E + 18	0.01	7.52E + 14	7.52E + 11
Sb	1.63E + 18	53	8.64E + 17	0.01	8.64E + 13	8.64E + 10
Sr, Ba	2.07E + 19	0.2	4.14E + 16	0.01	4.14E + 12	4.14E + 09
Mo, Tc	1.27E + 19	0.2	2.54E + 16	0.01	2.54E + 12	2.54E + 09
Ru, Rh, Pd	2.02E + 19	0.002	4.04E + 14	0.01	4.04E + 10	4.04E + 07
Y, Zr, Bn	4.74E + 19	0.02	9.48E + 15	0.01	9.48E + 11	9.48E + 08
La, Ca, Pr, ...	5.18E + 19	0.02	1.04E + 16	0.01	1.04E + 12	1.04E + 09
U, Np, Pu, Am	7.70E + 19	0.02	1.54E + 16	0.01	1.54E + 12	1.54E + 09

Tab. 2.6: Aktivitäts-Freisetzung aus den Brennelementen bei Kern-Niederschmelzen und Versagen des Reaktordruck-Behälters (Niederdruckpfad)

Bei Druckwasserreaktoren mit 30 % MOX-Brennstoff ist das radioaktive Inventar an Transuranen zwar etwas höher, die vorstehende Schlußfolgerung bleibt jedoch ebenso gültig.

Bei Siedewasserreaktoren verläuft zwar der Druckaufbau im Reaktor-Sicherheitsbehälter schneller, so daß Exventing über Druckentlastungsfilter bereits nach

etwa vier Stunden einsetzen muß. Dadurch beträgt die Abnahme der in der Sicherheitsbehälter-Atmosphäre vorhandenen nicht-gasförmigen Spaltprodukte und Aerosolmasse nur etwa zwei Größenordnungen. Die Reaktorsicherheitsbehälter-Atmosphäre wird jedoch bei der Druckentlastung durch eine wassergefüllte Kondensationskammer und eine Wasservorlage im anschließenden Filter mit Venturidüse und nachgeschaltetem Stahlfaserfilter geführt, so daß letztlich etwa die gleichen Zahlenwerte für die Freisetzung von Plutonium bzw. übrigen Transurane gelten wie im Falle des DWR.

2.6 Freisetzungsmöglichkeiten von Transuranen bei Transport und Lagerung abgebrannter Brennelemente

2.6.1 Brennelement-Transport

Nach ein- bis mehrjähriger Lagerung der abgebrannten, aus dem Reaktorkern entladenen Brennelemente im Brennelementlager des Kernkraftwerks werden die Brennelemente entweder zu einem externen Zwischenlager wie z. B. Gorleben oder Ahaus oder zum Eingangslager einer Wiederaufarbeitungsanlage transportiert. Dazu werden Transport- und Lagerbehälter verwendet (z. B. CASTOR), die zur Zeit maximal bis 19 DWR-Brennelemente bzw. bis zu 61 SWR-Brennelemente, d. h. ca. 10 t Kernbrennstoff pro Behälter, aufnehmen können [DWK 85]. Ein solcher Stahlbehälter ist ca. 6 m lang, hat 2,4 m Durchmesser und eine Wandstärke von etwa 40 cm (siehe Abbildung 2.5). Die Brennelemente werden in einen neutronenabsorbierenden Einsatzkorb gestellt. Die Dichtigkeit des Behälters wird durch zwei übereinanderliegende Deckel mit metallischen Dichtungen und einen mit Helium gefüllten Sperrgasraum gewährleistet. Die Dichtigkeit wird durch Druckmessung und Überprüfung auf austretendes Helium überwacht. Die Wärmeleistung von etwa 1 kW pro DWR-Brennelement führt zu maximalen Temperaturen im Brennstoff, die unterhalb 390 °C liegen. Die Wärmeleistung wird über Wärmeleitung durch das Heliumgas an die Behälterwand und an der Behälter-Außenwand durch Naturkonvektion von den auf der Oberfläche angeordneten Rippen an die Luft abgegeben.

Durch die geometrischen Abmessungen und die verwendeten Materialien im Transportbehälter ist die Unterkritikalität der Brennelemente im Transportbehälter auch im gefluteten Zustand, in dem die Behälter im Lagerbecken des Kernkraftwerks beladen werden, gewährleistet.

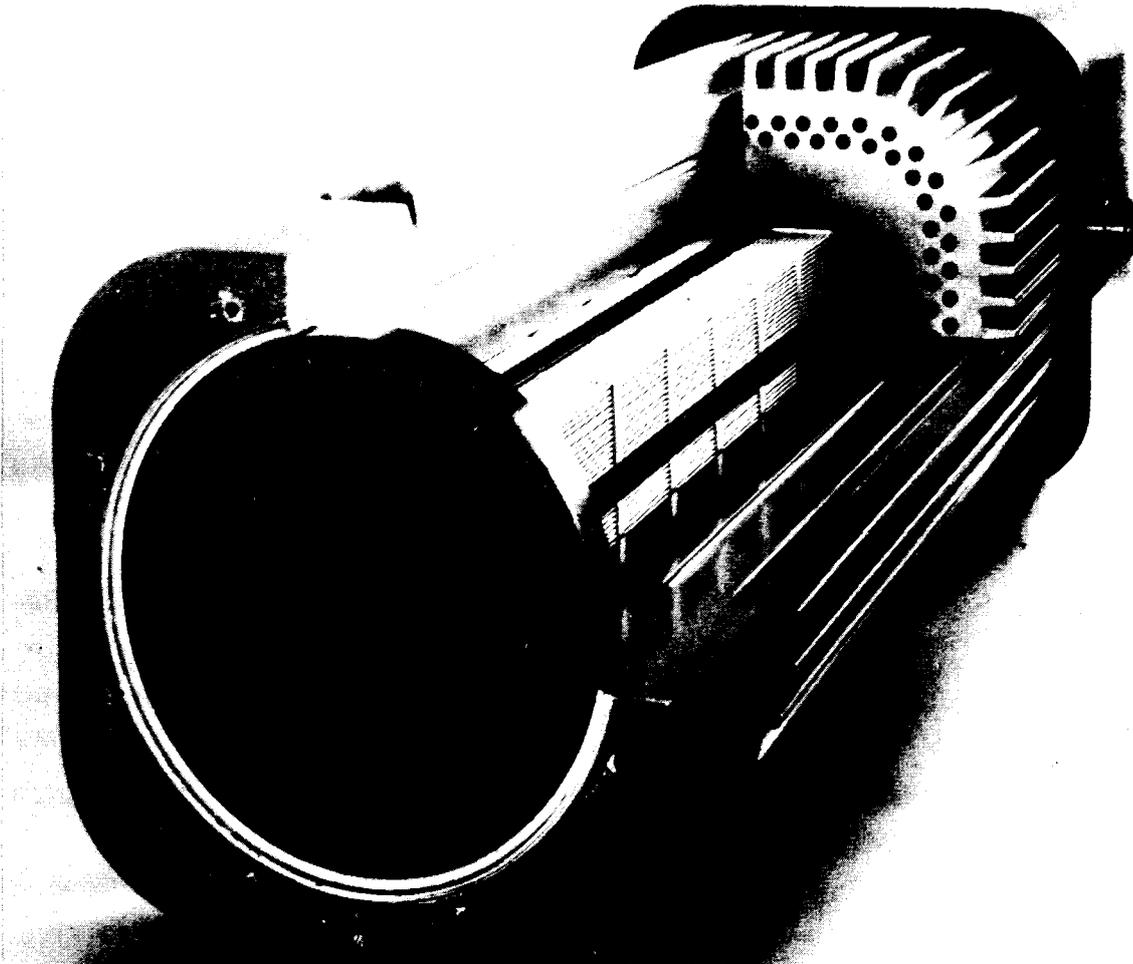


Abb. 2.5: Transport- und Lagerbehälter CASTOR

Für die verkehrsrechtliche Zulassung und die Genehmigung nach dem Atomgesetz müssen die Behälter Tests unter extremen Unfallbedingungen (z. B. einen Falltest, gefolgt von einem Feuertest bzw. einem Test unter Wasser) bestehen. Die Behälter müssen danach noch dicht bleiben [DWK 85, An 86]. Diese Tests garantieren, daß die Behälter allen denkbaren Transportgefahren gewachsen sind, was durch viele Versuche in USA, Großbritannien und der Bundesrepublik Deutschland nachgewiesen werden konnte.

Da der Brennstoff in den dichten Brennstabhüllen durch seine eigene Wärmeleistung eine maximale Temperatur von 390 °C nicht überschreitet, ist eine Bildung von Plutonium-, Americium-, Curium-Aerosolen oder Staub unmöglich. Ein Entweichen von Spaltprodukten und vor allem aber von Plutonium oder den übrigen Transuranen aus den Transportbehältern ist aufgrund der Doppeldichtungen des Behälters und der Druck- bzw. Dichtigkeitsüberwachung sowohl unter Normalbedingungen als auch unter Unfallbedingungen nach menschlichem Ermessen unmöglich.

2.6.2 Zwischenlager für abgebrannte Brennelemente

Die Zwischenlagerung von abgebrannten Brennelementen erfolgt in trockenen oder nassen Zwischenlagern. Hierbei hat sich die Entwicklung in der Bundesrepublik Deutschland in Richtung auf trockene Behälterlagerung, die Entwicklung in Frankreich und Großbritannien auf nasse Zwischenlagerung konzentriert.

2.6.2.1 Trockene Zwischenlager

In trockenen Zwischenlagern werden die Brennelement-Behälter (CASTOR-Behälter) in einer großen Halle aufgestellt [DWK 81]. Die Halle wird durch Naturkonvektion mit Umgebungsluft gekühlt. Da Naturkonvektion zur Kühlung der Behälter ausreicht, erspart diese passive Art der Kühlung die Notwendigkeit von Redundanzen, wie sie für aktive Kühlmaßnahmen (z. B. Zwangskühlung durch Gebläse) notwendig wäre (siehe Abbildung 2.6).

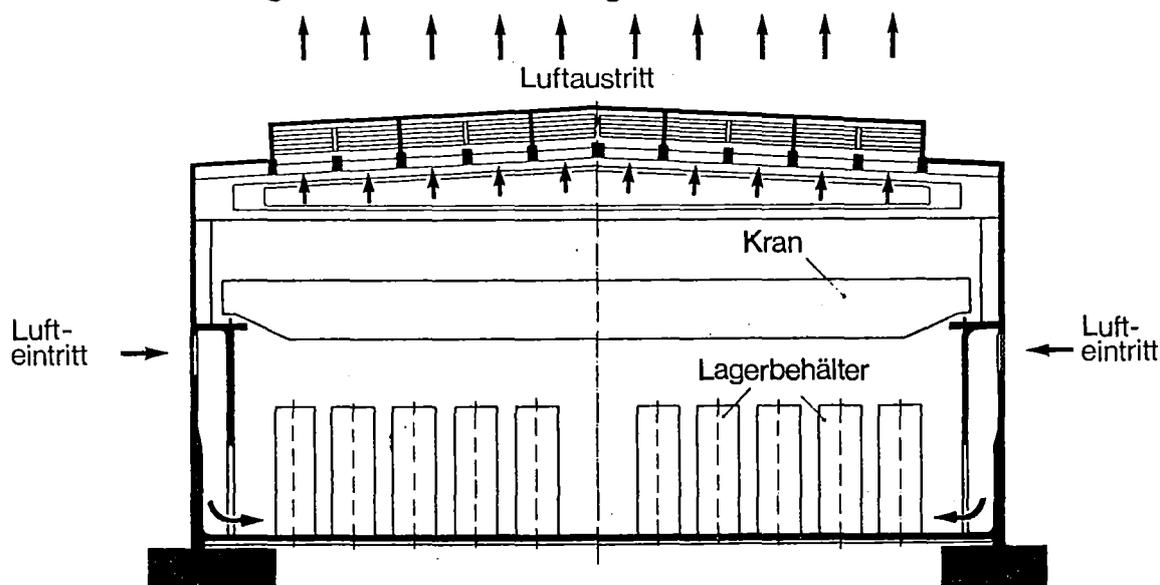


Abb. 2.6: Querschnitt durch ein trockenes Zwischenlager für abgebrannte Brennelemente

Die Behälter erreichen an der Rippen-Oberfläche maximale Temperaturen von etwa 50 bis 70 °C (zulässig sind derzeit 83 °C). Der Brennstoff in den Brennelementen überschreitet dabei Temperaturen von 390 °C nicht. Das Zwischenlager wird auf Freisetzung von Radioaktivität, alle Lagerbehälter werden laufend auf Dichtigkeit überwacht (Anzeige bei Absinken des Sperrgasdruckes im Deckel des Lagerbehälters). Sollte Undichtigkeit eines Deckels auftreten, so wird z. B. ein

weiterer Deckel aufgesetzt und mit dem Behälterkörper dicht verschweißt, oder die Deckeldichtung erneuert. Dadurch sind immer zwei Barrieren gegenüber dem Brennstoff gewährleistet [DWK 85, An 86]. Gegen äußere Einwirkungen (Flugzeugabsturz usw.) ist jeder einzelne Transport-/Lagerbehälter bereits ausgelegt.

Zusammenfassend kann daher festgestellt werden: Die Unterkritikalität der Brennelemente im Lagerbehälter bzw. im Zwischenlager bleibt immer gesichert. Eine radioaktive Freisetzung von Plutonium-, Americium, Curium-Aerosolen ist weder im Normalbetrieb noch in Unfallsituationen möglich. Selbst bei Erdbeben oder Zusammenstürzen der Zwischenlagerhalle, bei Hochwasser mit Unterswassersetzen der Lagerbehälter oder bei Flugzeugabsturz auf die Halle wird der Lagerbehälter nicht zerstört.

2.6.2.2 Nasse Zwischenlager

In nassen Zwischenlagern werden die abgebrannten Brennelemente in tiefe Wasserbecken gestellt. Nasse Zwischenlager enthalten 2000 bis 4000 t Brennstoff pro Wasserbecken. Alle Wasserbecken sind mit Kühlsystemen und Wasserreinigungssystemen so ausgestattet, daß die Wassertemperatur bei etwa 40 °C bleibt. Verunreinigungen des Beckenwassers z. B. durch Korrosions- oder Spaltprodukte werden durch das Wasserreinigungssystem dem Beckenwasser entzogen.

Nasse Zwischenlager enthalten Hebe- und Handhabungseinrichtungen und Be- bzw. Entladebecken, um die Brennelemente aus den Transportbehältern unter Wasser zu be- oder entladen und im Wasserbecken in Stahlgestelle zu stecken, oder auch trocken in Heißzellentechnik entladene Brennelemente in die Wasserbecken zu überführen. Aus dem Transportbehälter entladene Brennelemente werden durch physikalische, chemische und optische Methoden auf Hüllrohrdefekte untersucht. Defekte Brennelemente werden in Büchsen im Wasserbecken gelagert (Aufrechterhaltung des Barrieren-Prinzips).

Entweder sichern die geometrischen Abmessungen der Gestelle die Unterkritikalität oder es werden heterogene Neutronengifte in die Gestelle integriert. Das Wasser dient zur Abschirmung der Strahlung und zur Abfuhr der Nachzerfallswärmeleistung der ausgebrannten Brennelemente.

Nasse Zwischenlager lassen sich gegen Erdbeben, Flugzeugabsturz, Druckwellen aus chemischen Explosionen und gegen sonstige Einwirkungen von außen genau wie Kernkraftwerke auslegen. Die dreifach redundant ausgelegten Kühlsysteme führen die Nachzerfallsleistung der Brennelemente vom Beckenwasser über geschlossene Zwischenkühlwassersysteme an Kühltürme oder fließendes Wasser ab. Notstromdiesel sichern die Energieversorgung bei Ausfall der Stromversorgung. Die lufttechnischen Anlagen sorgen für eine Druckstaffelung (Unterdruck in zentralen Gebäudebereichen, wo die abgebrannten Brennelemente stehen) und Filterung der Gebäudeabluft.

Bei unterstellten Störfällen, wie z. B. der Beschädigung eines Brennelementes, wird die zusätzlich auftretende radioaktive Belastung in der Umgebung der Anlage unter 0,05 mSv bleiben. Selbst bei unterstelltem Versagen aller drei Kühlkreisläufe werden die Wassertemperaturen der Brennelementbecken erst nach zwölf Stunden etwa 60 °C erreichen. Es wird davon ausgegangen, daß in dieser Zeit die Stromversorgung wieder zur Verfügung steht und notwendige Reparaturen an den Kreisläufen möglich sind. Eine Freisetzung von Aerosolen des Plutoniums und der übrigen Transurane ist damit nach menschlichem Ermessen auszuschließen [DWK 88].

2.7 Freisetzungsmöglichkeiten von Transuranen bei der Wiederaufarbeitung

2.7.1 Prozeßverläufe

Die Eingangsstufe einer Wiederaufarbeitungsanlage ist das Brennelementlagerbecken (siehe Abschnitt 2.6), das die abgebrannten Brennelemente aufnimmt. Von dort werden die aufzuarbeitenden Brennelemente in die Zerlegezelle transportiert und dort zunächst in Strukturteile und Brennstäbe zerlegt. Brennstäbe werden in kleine Stücke zerschnitten, welche in den Auflöser mit Salpetersäure fallen. Der Brennstoff mit Spaltprodukten wird dabei durch die Salpetersäure aufgelöst, die gasförmigen Spaltprodukte werden frei, die Hülsen bleiben ungelöst zurück [DWK 88]. Neben gasförmigen Spaltprodukten (Edelgase, Iod) gelangen auch partikelförmige Spaltprodukte und Spurenkonzentrationen (Anteile: 10^{-4} bis 10^{-6}) von Uran, Plutonium und übrigen Transuranen in das Abgas. Die Abgase durchlaufen eine nasse Abgasstrecke, wo bereits 99 % der Aerosole zurückgehalten werden [Ke 83]. Die verbleibenden 10^{-6} bis 10^{-8} Anteile werden

dann durch eine trockene Abgasstrecke mit u. a. HEPA- (high efficiency particulate air) Filter geleitet, die eine weitere Verringerung der Transurane-Spurenkonzentrationen um einen Faktor 10^3 bewirken. Auf die weitere Abgasreinigung der übrigen Spaltprodukte (Tritium, Krypton, Xenon, Iod, Ruthenium) soll hier nicht näher eingegangen werden; insgesamt ergibt sich, daß weniger als 10^{-9} Anteile des Inventars an Brennstoff (Uran, Plutonium, Transplutone) über das Abgas in die Umgebung gelangen können (vgl. hierzu Tabelle 2.8 in Abschnitt 2.7.4).

Die Brennstofflösung wird nachfolgend in einer Zentrifuge und mit Feinfiltern geklärt. Abgetrennte leere Hüllrohrabschnitte, BE-Strukturteile, Klärschlamm und Filtereinsätze werden zu endlagerfähigen Gebinden verarbeitet. Die geklärte und auf die notwendigen chemischen Bedingungen eingestellte Brennstofflösung wird im Hauptprozeßgebäude innerhalb des zentralen, gegen Brand geschützten Zellenbereichs durch Anwendung des PUREX-Prozesses in einen hochaktiven Abfallstrom (Spaltprodukte und Transplutone) und eine U/Pu-Lösung getrennt. Die U/Pu-Lösung wird durch Reduktion von Pu-IV in Pu-III in einen Uran- und einen Plutoniumstrom getrennt, die jeder für sich in zwei weiteren Extraktionszyklen voneinander und von Spaltprodukten gereinigt werden [Bau 84, KfK 87a, DWK 88].

Der hochradioaktive Abfallstrom (HAW) mit Spaltprodukten und Aktiniden wird zur Volumenreduzierung in einem Verdampfer aufkonzentriert und in der HAC-Verglasungsanlage weiter verarbeitet (siehe Abschnitt 2.9). Plutonium wird in der MOX-Refabrikationsanlage zusammen mit Uran entweder zu MOX-Brennelementen (Plutonium-Rezyklierung) oder zu Schnellbrüter-Brennelementen verarbeitet (siehe Abschnitt 2.8).

2.7.2 Sicherheitsauslegung

Bei den Wiederaufarbeitungsanlagen - im Gegensatz zu Kernkraftwerken -

- wird eine kritische Geometrie durch geeignete technische Auslegung vermieden (keine Kettenreaktion),
- geschieht die Verarbeitung des Brennstoffs bei geringer Leistung (nur Nachzerfallsleistung) und in der Regel bei Normaldruck,

- ist die Aktivität der Spaltprodukte und Aktiniden bereits um mindestens den Faktor 100 abgeklungen.

Auch bei einer Wiederaufarbeitungsanlage wird das Mehrfachbarrieren-Prinzip (z. B. Behälterwände, Gebäudewände, Druckstaffelung in Richtung auf Radioaktivität enthaltende zentrale Gebäudeteile) zum Einschluß der radioaktiven Stoffe angewandt. Die Wirksamkeit der Barrieren wird durch laufende Überwachung der Schutzmaßnahmen und von möglicherweise luftgetragenen oder im Abwasser enthaltenen radioaktiven Stoffen überprüft (siehe Abbildung 2.7). Abgase oder Abwasser werden zurückgehalten, auf ihren Reinheitsgrad überwacht und nur abgeleitet, wenn die genehmigten Grenzwerte eingehalten werden können.

Kernbrennstoff befindet sich während des chemischen Aufarbeitungsprozesses in mit rostfreiem Stahl ausgekleideten Betonzellen, die nicht vom Betriebspersonal begangen werden müssen, und in denen Handhabungs-, Wartungs- und Reparatur-Arbeiten mit Hilfe der FEMO-Technik (fernbedienungsgerechte Modulbauweise) ablaufen. Die dicken Beton-Zellenwände schirmen die Neutronen- und γ -Strahlung ab. Diese inneren Zellen werden durch Druckstaffelung auf geringerem Druck als die umgebenden Gebäudeteile gehalten, so daß alle Leckagen nach innen gerichtet sind.

Die gefüllten Behälter sind innerhalb der Betonzellen in den Anlagengebäuden in Bodenwannen aufgestellt, deren Fassungsvermögen so bemessen ist, daß sie den Inhalt des Behälters bei Leckagen auffangen können. Pumpen und andere Entleerungseinrichtungen sorgen im Falle einer Leckage für eine sichere Übernahme in andere Auffang- oder Reservebehälter. Bei einer Leckage oder einem anderen Störfall möglicherweise entstehende radioaktive Aerosole werden durch intakt bleibende Filtersysteme bis auf Spurenkonzentrationen zurückgehalten [DWK 88].

Die Kritikalitätssicherheit der radioaktiven Spaltstofflösungen in den einzelnen Anlagenbereichen wird durch Festlegung und Überwachung (Messung) der Spaltstoff-Anreicherung, durch die geometrischen Abmessungen der Komponenten (Durchmesser, Volumen) und durch zusätzlich eingebaute Neutronenabsorber (z. B. Hafnium-Bleche) eingehalten. Trotz dieser Vorsorge wird eine Wiederaufarbeitungsanlage gegen

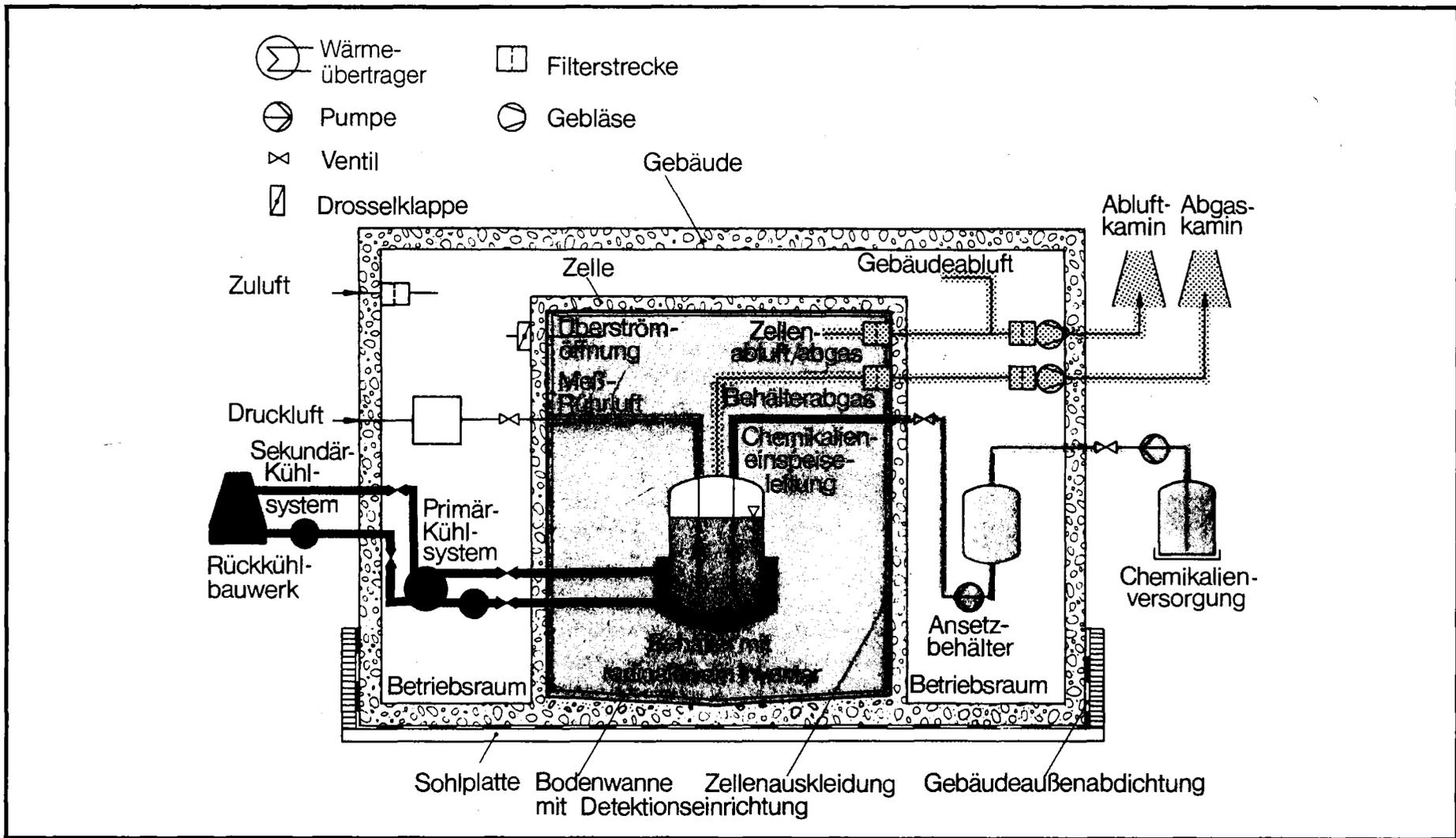


Abb. 2.7: Schematische Darstellung von Mehrfachbarrieren in einer Wiederaufarbeitungsanlage

- einen Kritikalitätsstörfall in einem der Spaltstofflösung enthaltenden Behälter,
- die Explosion (Red-oil-Reaktion) eines Verdampfers zur Aufkonzentration von HAW

ausgelegt. Letzteres geschieht durch geeignete Abgaseinrichtungen für Zellen oder Gebäude, in denen sich die Hauptaktivität befindet, z. B. das Hauptprozeßgebäude.

Schließlich werden die Prozess-Anlagengebäude, ähnlich wie bei Kernkraftwerken, gegen Erdbeben, Flugzeugabsturz, chemische Explosionen und Einwirkungen Dritter ausgelegt.

2.7.3 Betriebserfahrungen in der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe

In der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) werden grundsätzlich alle begehbaren Räume des Prozeßgebäudes auf Raumluftaktivität überwacht. Im Normalbetrieb wird dabei die nachweisbare Aktivitätskonzentration in der Raumluft von 10^{-3} Bq/m³ bei 24-stündiger Sammelzeit nicht erreicht. Diese Räume werden daher ohne Atemschutz betreten.

Bei Arbeiten, die zu Staubentwicklung oder Aufwirbelung führen können, wird grundsätzlich sicherheitshalber Atemschutz getragen.

Zur Kontrolle einer eventuellen Plutonium-Inkorporation beim Betriebspersonal wird kontinuierlich eine indirekte Inkorporationsüberwachung durch Messung der Raumluftaktivitätskonzentration wie beim Normalbetrieb und unter Berücksichtigung der Aufenthaltszeit durchgeführt. Mit dieser Methode ist sichergestellt, daß Inkorporationen in der Größenordnung von mehr als 5 % des Grenzwertes der Jahresaktivitätszufuhr entdeckt werden.

Wenn die in dieser Weise festzulegenden Luftkonzentrationswerte erreicht oder überschritten werden, setzen individuelle Kontrollen der betroffenen Personen ein. Sie bestehen darin, daß diese Personen sofort Urin- und Stuhlanalysen in den folgenden drei Tagen zwecks Analyse sammeln. Mit diesen Meßergebnissen ist eine Abschätzung der individuellen Dosis ausreichend genau möglich. Zusätzlich

können Ganzkörper- und Teilkörper-Messungen vorgenommen werden (siehe Kapitel 3).

2.7.4 Freisetzung von radioaktiven Stoffen

Daten über die Abgabe von radioaktiven Isotopen aus Wiederaufarbeitungsanlagen in die Atmosphäre und in Abwasser werden seit Jahren gesammelt und in nationalen und internationalen Berichten [BMU 85, Lu 83] veröffentlicht. In Europa sind neben der WAK Daten verfügbar für die französische Wiederaufarbeitungsanlage La Hague und die englische Wiederaufarbeitungsanlage Sellafield. Tabelle 2.7 gibt die Abgabewerte dieser drei Anlagen beispielhaft für das Jahr 1980 an. In Klammern sind die jeweils genehmigten Abgabewerte eingetragen.

Für die geplante Wiederaufarbeitungsanlage Wackersdorf sind die in Tabelle 2.8 angegebenen Mengen an Radionukliden beantragt [DWK 88]. Die dort angegebenen Mengen beziehen sich auf das Brennelement-Eingangslager, die chemische Wiederaufarbeitung, die MOX-Fabrikation, die HAW-Verglasung sowie auf die Behandlung von mittelaktivem (MAW) und leichtaktivem (LAW) Abfall.

2.8 Freisetzungsmöglichkeiten von Transuranen bei der MOX-Brennstoff-Refabrikation

Bei der geplanten Wiederaufarbeitungsanlage Wackersdorf sind die Prozeßgebäude für die MOX-Brennstoffverarbeitung mit den Prozeßgebäuden der chemischen Wiederaufarbeitung gekoppelt. Während die UranylNitratlösung mit Transportbehältern zur MOX-Brennstoffverarbeitung gebracht werden kann (nur ein Teil des aufgearbeiteten Urans wird für die MOX-Verarbeitung gebraucht), gelangt die Pu-Nitratlösung über eine Förderleitung direkt dorthin. (Zwischen der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe und ALKEM (Hanau) wird von Zeit zu Zeit Plutonium-Nitrat in speziellen sicherheitsgeprüften Transportbehältern befördert.)

	WAK Karlsruhe BR Deutschland (35 t/a LWR)		La Hague Frankreich (200 t/a GGR + 250 t/a LWR)		Sellafield Großbritannien (2000 t/a GGR)	
	A	B	A	B	A	B
<u>Abluft</u>						
Tritium	3,0E + 12	3,7E + 13	9,2E + 12	2,2E + 14	2,5E + 14	k.A.
Krypton	1,2E + 15	1,3E + 16	3,0E + 16	4,8E + 17	3,1E + 16	k.A.
α-Aerosole	1,6E + 07	3,7E + 08	k.A	7,4E + 10	5,6E + 08	k.A.
β-Aerosole	9,3E + 08	7,4E + 10	1,2E + 08	7,4E + 10	5,2E + 11	k.A.
<u>Abwasser</u>						
Tritium	6,7E + 12*	**	5,6E + 14	3,7E + 16	1,3E + 15	k.A.
α-Aktivität	6,7E + 07*	**	5,2E + 11	1,7E + 12	3,7E + 13	2,2E + 14
β-Aktivität (außer Tritium)	8,1E + 08*	**	9,3E + 14	1,7E + 15	4,4E + 15	1,1E + 16

A = tatsächliche radioaktive Ableitungen
 B = genehmigte radioaktive Ableitungen
 k.A. = keine Angaben
 LWR = Leichtwasserreaktor-Brennstoff
 GGR = Brennstoff aus Gas-Graphit-Reaktoren

* Ableitungswerte einschließl. aller Anlagen des Kernforschungszentrums Karlsruhe (Reaktoren und wissenschaftlich-technische Einrichtungen)
 ** Keine Angaben möglich, da nur die Gesamtableitung des Kernforschungszentrums begrenzt ist

Tab. 2.7: Radioaktive Ableitungen in Bq/a aus europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen im Jahre 1980

(Bq/a)	Abwasser	Fortluft/Abgas
Tritium	3,7E + 13	1,5E + 15
C-14		1,3E + 13
Kr-85		1,6E + 17
I-129	1,0E + 08	1,8E + 09
Sr, Ru, Cs	5,2E + 09	2,6E + 10
Pu-238 (α)	1,3E + 08	2,5E + 08
Pu-239 (α)	8,5E + 06	1,5E + 07
Pu-240 (α)	1,5E + 07	3,3E + 07
Pu-241 (β)	2,9E + 09	6,4E + 09
Am-241 (α)	4,2E + 07	1,6E + 08
Cm-244 (α)	2,0E + 08	8,0E + 08

Tab. 2.8: Beantragte obere Grenzen der radioaktiven Ableitungen mit dem Abwasser und der Fortluft/Abgas der Wiederaufarbeitungsanlage Wackersdorf

Plutonium-Nitrat und Uranylinitrat werden in der MOX-Fabrikationsanlage gemischt und mit Hilfe des Ammonium-Uranyl-Plutonyl-Karbonat-(AUPuC)-Verfahrens zu Mischoxid-Pulver (MOX) verarbeitet. Dieses Pulver wird zu Tabletten gepreßt und in einem Sinterofen bei 1700 °C gesintert. Die Brennstofftabletten werden anschließend auf Maß geschliffen, dann in die Hüllrohre gefüllt, die wiederum nach Füllung mit einem Edelgas automatisch dicht verschweißt werden. Dies geschieht so, daß die Brennstäbe dabei an der äußeren Oberfläche nicht mit Plutonium kontaminiert werden.

Auch MOX-Brennstoff-Fabrikationsanlagen werden - ebenso wie Kernkraftwerke - durch dicke Betonwände gegen äußere Einwirkungen geschützt. Die Unterkritikalität muß durch die geometrischen Abmessungen der einzelnen Komponenten für die Brennstoffverarbeitung gesichert sein. Die Anlage muß gegen

- einen Kritikalitätsunfall im Bereich der Vermischung von PuO_2 und UO_2 -Pulver,
- eine explosionsartige Ammoniumnitrat-Reaktion im Wirbelschichtverdampfer der Brennstoffverarbeitung

ausgelegt sein.

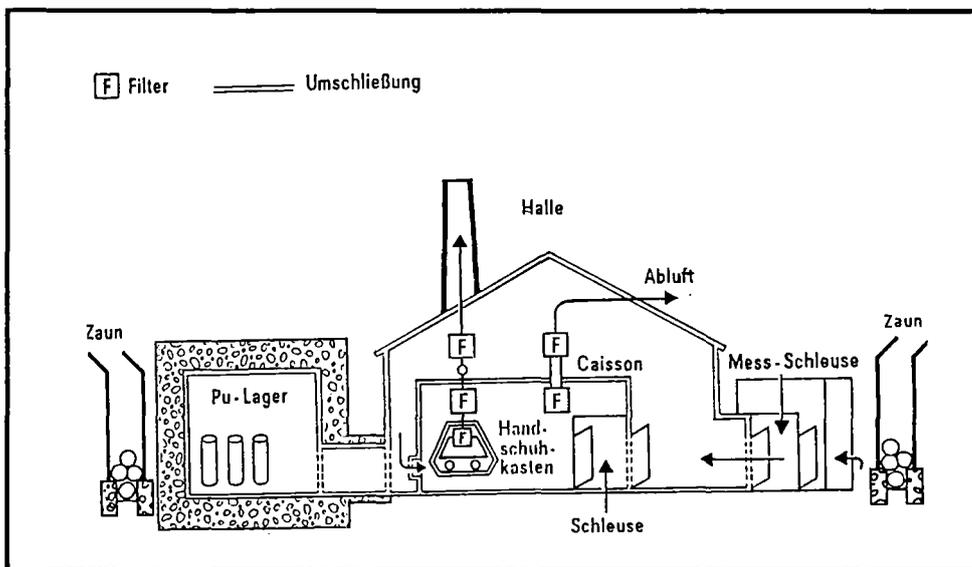


Abb. 2.8: Das Barrierensystem einer MOX-Fabrikationsanlage

In der Anlage wird das Mehrfachbarrieren-Prinzip angewandt (siehe Abbildung 2.8). MOX-Pulver, gesinterte Tabletten und Brennstäbe in unverschweißter Form

werden in Handschuhboxen gehandhabt, die mit Unterdruck arbeiten und damit dicht für α -Aerosole sind. Die Unterdruckstaffelung in den einzelnen Räumen wird von außen nach innen aufrechterhalten. Die Abgase aus den Handschuhboxen und den dicht gekapselten Sinteröfen werden über HEPA-Filter kontinuierlich gereinigt. Da der Brennstoff weit unterhalb des Siedepunktes gehandhabt wird, ist die Staub- und Aerosolbildung sehr gering. Die Rückhaltung durch Filter ermöglicht daher zwischen dem gehandhabten Brennstoff-Inventar und den über Kamin abgegebenen Pu-Aerosolmengen einen Faktor von größer 10^9 .

Luftgetragene Aerosolkonzentrationen in Handschuhkästen oder in Sinteröfen sind nach den Gesetzen der Aerosolphysik nur in geringen Spurenkonzentrationen bezogen auf das vorhandene Inventar möglich ($\mu\text{g}/\text{cm}^3$). Etwa bei der MOX-Pulver-Handhabung gebildete Aerosole schlagen sich durch Agglomeration und Sedimentationsvorgänge in kurzer Zeit wieder auf den inneren Oberflächen der Handschuhboxen nieder [EUR 87]. Durch die Unterdruckhaltung der Handschuhboxen und Sinteröfen sowie durch Absaugen über Filter mit hoher Rückhaltung wird für die Gesamtanlage und für die begehbaren Räume des Personals eine so hohe Luftreinheit erreicht, daß der eventuell mögliche Pu-Aerosolgehalt unterhalb der Meßgrenze von $10^{-3} \text{ Bq}/\text{m}^3$ liegt.

Erfahrungen im Europäischen Institut für Transurane [Bui 87] und bei ALKEM zeigen ebenfalls, daß die Forderung nach Messung von 1/20 des Grenzwertes der Jahresaktivitätszufuhr für beliebige (unbekannte) Zusammensetzung an Plutonium und höheren Aktiniden für die Arbeitsräume des Personals gewährleistet werden kann. Eine Überschreitung der zulässigen Werte würde zur Unterbrechung der Arbeiten mit nachfolgender Untersuchung des betreffenden Betriebspersonals und Behebung des Störfalles führen.

2.9 Behandlung radioaktiver Abfälle

In allen Bereichen des Kernbrennstoffkreislaufs entstehen radioaktiv kontaminierte Abfälle unterschiedlicher Menge, Beschaffenheit und Aktivität. Bei der Uran-Gewinnung, Reinigung, Konversion und Anreicherung, bei der Herstellung von UO_2 -Brennelementen und beim Reaktorbetrieb entstehen nur Abfälle, die höchstens äußerst geringe Mengen an Transuranelementen enthalten. Dagegen finden sich in den Abfällen aus der Wiederaufarbeitung der bestrahlten Brenn-

elemente und der Fertigung von UO₂/PuO₂-Mischoxidbrennstoffen ca. zwei bis drei Prozent des durchgesetzten Plutoniums und praktisch die Gesamtmenge der Transplutoniumelemente. Gegenwärtige Forschungs- und Entwicklungsarbeiten lassen erwarten, daß die Plutoniumverluste in die Abfälle künftig auf weniger als die Hälfte der derzeitigen Werte gesenkt werden können. Die derzeitige Verteilung der Plutoniumverluste auf diese Abfälle zeigt Tabelle 2.9.

Wiederaufarbeitung		UO ₂ /PuO ₂ -Brennelementfertigung	
Hochaktive Spaltproduktlösung ¹⁾	0,2	Flüssige Abfälle ²⁾	1,0
Auflöserrückstand	0,6	Brennbare Festabfälle ²⁾	1,0
Brennelementhülsen und Strukturteile	0,3		
Schwach- und mittelaktive Abfälle	0,1		
Summe	1,2	Summe	2,0

1) Diese Abfalllösung enthält >99 % aller Transplutoniumelemente

2) Die Abfälle enthalten, je nach Alter des Brennstoffs zum Zeitpunkt der Aufbereitung, unterschiedliche Mengen an Americium

Tab. 2.9: Plutoniumverlust im Brennstoffkreislauf (in Prozent der durchgesetzten Menge)

Die radioaktiven Abfälle werden soweit möglich in ihrem Volumen eingeeengt und danach durch eine sogenannte Konditionierung in ein festes Produkt überführt. Es bindet die Radionuklide fest, ist selbst nicht ohne weiteres dispersibel und erfüllt auch die weiteren Anforderungen für eine sichere Endlagerung. Die Endlagerung ist in tiefen, vom Biozyklus isolierten geologischen Formationen vorgesehen. Dabei wird ein Entweichen unzulässiger Mengen an Radionukliden in den Biozyklus durch ein Multibarrierensystem sicher verhindert. Dieses besteht aus dem verfestigten Abfall selbst, den Verpackungen, den gegebenenfalls eingebrachten Verfüllmaterialien für die Resthohlräume in den Lagerkammern des Endlagers, den Kammer- bzw. Bohrlochverschlüssen, der Endlagerformation (z. B. Salzstock) sowie den darüberliegenden Deckschichten. Die Transuranelemente liegen in den konditionierten Abfällen als sehr schwer lösliche Verbindungen (Oxide, Silikate) vor. Sie werden in den Deckschichten des Endlagers - mit einer gewissen Ausnahme für das Neptunium - nur außerordentlich langsam transportiert, so daß sie in tiefen geologischen Formationen nur ein vergleichsweise niedriges Gefährdungspotential darstellen.

Zur Abfallbehandlung werden derzeit im wesentlichen folgende Verfahren eingesetzt, an die sich stets eine Verpackung in Behältern anschließt:

- hochaktive Abfalllösung: Verglasung,
- Filtrückstände der hochaktiven Brennstofflösung: Zementierung,
- ausgelaugte Brennelementhülsen: Zementierung,
- schwach- und mittelaktive flüssige Abfälle: Konzentrierung durch Verdampfung und Vermischen des Konzentrats mit Zement,
- brennbare radioaktive Abfälle: Verbrennung oder direkte Einbindung in Zementstein nach Schreddern,
- nicht brennbare feste Abfälle: Pressen.

Die technischen Maßnahmen zur Verhinderung eines unkontrollierten Entweichens von Radionukliden bei der Abfallbehandlung sind sinngemäß bereits in Abschnitt 2.7.1 beschrieben.

2.9.1 Verglasung hochradioaktiver Abfälle

Das Volumen der hochradioaktiven Spaltproduktlösung aus dem PUREX-Prozeß wird in einem Verdampfer um etwa den Faktor 10 reduziert. Diese konzentrierte Lösung wird in doppelwandigen gekühlten Edelstahltanks zwischengelagert, wie sie in Abschnitt 2.7.2 beschrieben sind. Ihre Temperatur wird durch Kühlung auf $<65^{\circ}\text{C}$ gehalten.

Die Konditionierung der konzentrierten, hochaktiven Abfalllösung wird in der Bundesrepublik künftig durch Verglasung nach dem im Kernforschungszentrum Karlsruhe entwickelten PAMELA-Verfahren erfolgen (Abbildung 2.9) [DWK 86]. Dabei wird die konzentrierte Abfalllösung zusammen mit einer Glasfritte in einem Schmelzofen dosiert, wobei die Lösung verdampft und der radioaktive Rückstand in Glas eingeschmolzen wird. Hierzu wird ein chemisch sehr beständiges Borosilikatglas eingesetzt, das auch die Abfallbestandteile fest bindet. Die Glasschmelze wird in Edelstahlbehälter (Kokillen) abgefüllt, die nach kontrollierter Abkühlung dicht verschweißt werden. Die Abgase werden gekühlt, über Naßwäscher und Filterstrecken gereinigt und kontrolliert abgeleitet. Ihre α -Aktivität liegt nach den Erfahrungen beim Betrieb der Verglasungsanlage PAMELA um mehr als den Faktor 10^{12} niedriger als in den eingehenden Abfallströmen

und damit weit unter den behördlich zugelassenen Werten. Die flüssigen Sekundärabfälle werden den entsprechenden schwach- bzw. mittelaktiven Abfallösungen zugeschlagen und mit diesen gemeinsam behandelt.

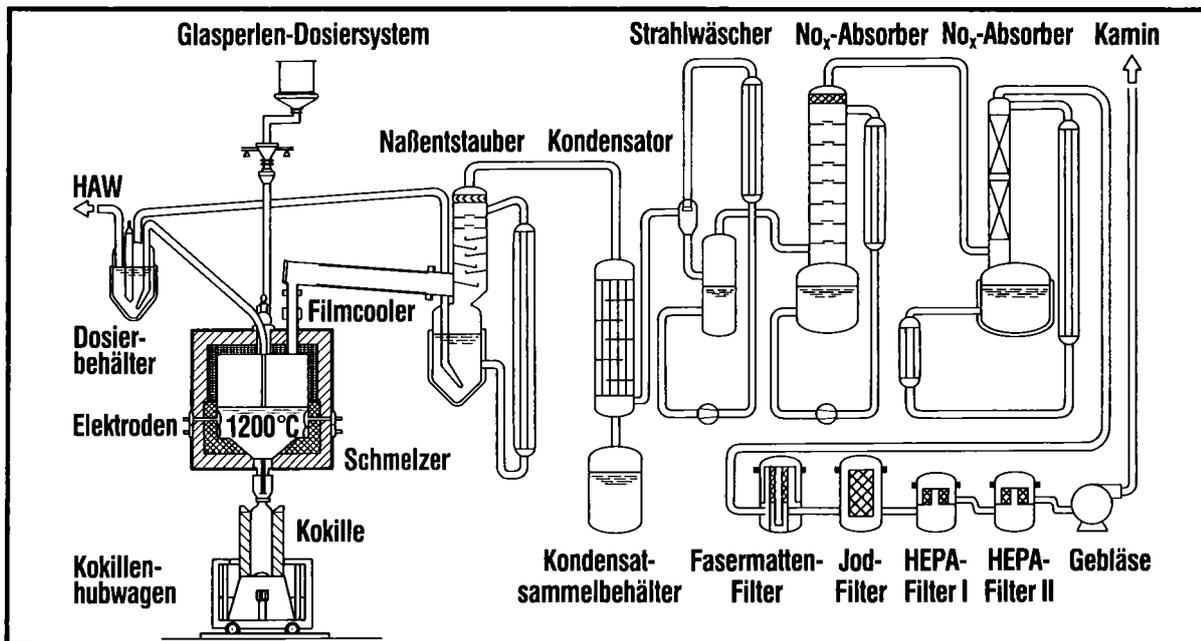


Abb. 2.9: Anlage zur Verglasung hochaktiver Spaltproduktlösungen

2.9.2 Verdampfung schwach- und mittelaktiver Abfallösungen

Mittelaktive Abfallösungen werden in geschlossenen Verdampferapparaturen durch Eindampfen bis zu einem Salzgehalt von etwa 200 bis 300 g/l in ihrem Volumen eingengt. Das dabei entstehende Kondensat, das nur noch ca. 1/1000 der ursprünglichen Aktivität enthält, wird den schwachaktiven Abwässern zugeschlagen und zusammen mit diesen nochmals verdampft. Dieses Kondensat wird gegebenenfalls noch chemisch behandelt und, wenn es die behördlich festgelegten Werte unterschreitet, in die Vorfluter abgeleitet. Die langjährige Erfahrung im Kernforschungszentrum Karlsruhe zeigt, daß auf diese Weise die Ableitungsanforderungen stets erfüllt werden konnten; im Mittel werden nur insgesamt $8 \cdot 10^8$ Bq/Jahr an β/γ -Aktivität und $4 \cdot 10^7$ Bq/Jahr an α -Aktivität mit dem Abwasser in den Vorfluter abgeleitet. Die Aktivität der Abluft aus der Verdampferanlage liegt bei $7 \cdot 10^6$ Bq/Jahr für β/γ - und $2 \cdot 10^4$ Bq/Jahr für α -Strahler.

2.9.3 Einbindung in Zement

Die Verdampferkonzentrate der mittel- und schwachaktiven Abfallströme werden mit Zement verfestigt, ebenso wie der überwiegende Teil der sonstigen nicht hochaktiven wasserhaltigen Abfälle. Sofern die Vermischung nicht direkt im Transportbehälter erfolgt, gießt man den zunächst entstehenden Zementmörtel in die zur Endlagerung vorgesehenen Transportbehälter, in denen sich fester Zementstein bildet. Feste radioaktive Abfälle werden in Behältern durch Übergießen mit Zementmörtel fixiert. Dadurch werden auch die Radionuklide gebunden.

2.9.4 Verbrennung

Das Volumen der brennbaren Abfälle wird durch Verbrennung erheblich eingengt. Die Radionuklide verbleiben weitestgehend in der Asche. Diese wird mancherorts durch Vermischen mit einem Zementmörtel, an anderen Stellen durch Pressen in einem Faß und Verpacken der Preßlinge in 200-l-Fässern konditioniert. Die Verbrennungsabgase werden durch mehrere hintereinander geschaltete Waschstufen und Filter soweit gereinigt, daß sie den Ableitungsnormen entsprechen. Nach den Erfahrungen des Kernforschungszentrums Karlsruhe beträgt dabei die Ableitung von Radionukliden mit der Abluft ca. $4 \cdot 10^9$ Bq/Jahr für β/γ - und $4 \cdot 10^6$ Bq/Jahr für α -Strahler.

2.9.5 Pressen

Nicht brennbare Abfälle werden durch Pressen unter hohem Druck im Verhältnis 1:3 bis 1:7 in ihrem Volumen eingengt. Die Preßlinge werden in Behälter eingebracht und der Hohlraum gegebenenfalls mit Zementmörtel ausgegossen. Die Erfahrungen aus mehr als zwei Jahrzehnten zeigen, daß die radioaktiven Abfälle aus der Kerntechnik sicher verarbeitet werden können. Dabei liegt die Ableitung von Radionukliden in die Umwelt immer weit unter den zulässigen Mengen, so daß selbst über lange Zeiträume eine Gefährdung durch Akkumulation nicht zu befürchten ist.

2.10 Literatur zu Kapitel 2

- [Alb 87] H. Albrecht; Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim LWR-Kernschmelzen. Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK-4264 (Juni 1987)
- [An 86] P. Anderson, D. Rittscher; Spent Fuel Storage Casks - A Commercial Reality in 1986. Proc. Waste Management Conference, Tucson, Arizona, March 2-6, 1986. University of Arizona, Tucson, Vol. 2, p. 543
- [Bau 84] G. Baumgärtel et al.; Brennstoff aus der Asche - Die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen; Verlag W. Girardet, Essen (1984)
- [BMFT 81] Mehrfachzyklisierung von Plutonium und Uran in thermischen Reaktoren, Ergebnisse eines Statusseminars im BMFT am 14. Oktober 1981. Bundesministerium für Forschung und Technologie, Bonn (1981)
- [BMU 85] Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung - Jahresbericht 1985. Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Bonn.
- [Bro 88] A.M. Broomfield et al.; Operating Experience from European Fast Reactors. Jahrestagung Kerntechnik '88, 17.-19. Mai 1988, Lübeck-Travemünde. Deutsches Atomforum, Bonn (1988)
- [Bui 87] K. Buijs et al.; Some Applications of Information Techniques to Radiation Protection at Handling of Transuranium Elements. IAEA-Seminar on the Application of Computer Technology to Radiation Protection, 22.-26. Juni 1987, Bled, Yugoslavia. IAEA-SR-136/16
- [DWK 81] Beschreibung des geplanten Brennelement-Zwischenlagers Ahaus. Deutsche Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen (DWK), Hannover (Mai 1981)
- [DWK 85] CASTOR - Der Transport- und Lagerbehälter. Deutsche Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen (DWK), Hannover (1985)

- [DWK 86] Verglasungsanlage PAMELA in Mol/Belgien. Deutsche Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen (DWK), Hannover (1986)
- [DWK 88] Kurzbeschreibung für die Wiederaufarbeitungsanlage Wackersdorf. DWK-Wiederaufarbeitungsanlage Wackersdorf (DWW) (Januar 1988)
- [EUR 87] Safe Handling of Nuclear Fuels (SHAPE); in: European Institute for Transuranium Elements - Annual Report 1987, Commission of the European Communities, Luxemburg, TUAR-87, EUR 11783 EN (1988)
- [Fi 87] U. Fischer, H.W. Wiese; Verbesserte konsistente Berechnung des nuklearen Inventars abgebrannter DWR-Brennstoffe auf der Basis von Zell-Abbrand-Verfahren mit KORIGEN. Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK-3014 (1983)
- [Fi 86] U. Fischer; Mehrfache Rückführung von Plutonium in thermischen Reaktoren. Atomwirtschaft/Atomtechnik Jg. 31, Nr. 11 (November 1986), S. 548-553
- [GRS 80] Deutsche Risikostudie Kernkraftwerke - Eine Untersuchung zu dem durch Störfälle in Kernkraftwerken verursachten Risiko. Eine Studie der Gesellschaft für Reaktorsicherheit im Auftrage des BMFT; Verlag TÜV Rheinland (1980)
- [IAEA 85] Status of Liquid Metal Cooled Fast Breeder Reactors; International Atomic Energy Agency, Wien, Technical Reports Series No. 246, 1985; siehe insbesondere Kapitel 3: LMFBR Operating Experience
- [Ke 83] G. Kessler; Nuclear Fission Reactors; Springer-Verlag, Wien-New York (1983); siehe insbesondere Kapitel 7: Technical Aspects of Nuclear Fuel Cycles und Kapitel 8: Environmental Impacts and Risks of Nuclear Fission Energy
- [KfK 87a] Wie sicher ist die Entsorgung? Kernforschungszentrum Karlsruhe (1987), 3. Auflage
- [KfK 87b] Entsorgung und Stilllegung; in: Perspektiven der Energieversorgung, Gutachten im Auftrag der Landesregierung von Baden-Württemberg.

Materialienband VI: Kernenergie, Teil 2, Kapitel 3. Herausgeber: A. Voss, Institut für Kernenergetik und Energiesysteme, Universität Stuttgart (1987)

- [Lu 83] F. Luykx, G. Fraser; Radioactive Effluents from Nuclear Power Stations and Nuclear Fuel Reprocessing Plants in the European Community - Discharge Data 1976-1980, Radiological Aspects; Commission of the European Communities, Directorate-General Employment, Social Affairs and Education, Luxemburg (March 1983)
- [Sche 88] H. Schenk; Kernkraftwerk Philippsburg; private Mitteilung (Dez. 1988)
- [Schö 87] W. Schöck (Hrsg.); DEMONA - Jahresbericht 1986; Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK-4285 (Juli 1987)
- [Wa 89] H. Wagner; Verfassungswidrige Plutoniumnutzung? Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK-4515 (Januar 1989) (siehe insbesondere S. 13 ff)

3 Strahlenschutzüberwachung beim Umgang mit Plutonium

3.1 Strahlenschutzüberwachung am Arbeitsplatz

H. Dilger

3.1.1 Allgemeines

Da die Plutoniumisotope beim Zerfall vor allem α -Teilchen und niederenergetische Röntgenstrahlen oder bei Pu-241 niederenergetische β -Teilchen aussenden, kann keine signifikante äußere Strahlenexposition auftreten. Nur nach einer Inkorporation kann es zu einer inneren Strahlenexposition kommen. Plutonium wird im Verarbeitungsprozeß in Boxen mit Unterdruckhaltung gehandhabt. Eine Freisetzung in Arbeitsräume kann daher nur durch zwischenfallsbedingte Leckagen oder bei Wartungsarbeiten und Schleusvorgänge erfolgen.

Bei der Dekontamination und Abfallbehandlung werden mit Plutonium kontaminierte Gegenstände in begehbaren Caissons und mit Plutonium kontaminierte Flüssigkeiten in während des Betriebs unzugänglichen Prozeßanlagen behandelt. Gegenstände, deren Kontamination unterhalb der Werte der Anlage IX der Strahlenschutzverordnung liegt, können offen gehandhabt werden. Die Strahlenschutzüberwachung auf Plutonium beinhaltet die Dichtheitskontrolle von Barrieren wie Boxen, Caissons, Behältern, Leitungen und Verpackungen. Das Versagen von Barrieren zeigt sich in lokalen Oberflächen-, Raumluft- oder Personenkontaminationen.

3.1.2 Überwachungsverfahren

3.1.2.1 Bestimmung der Oberflächenaktivität

Zur Bestimmung der Oberflächenaktivität stehen prinzipiell zwei Verfahren zur Verfügung (DIN 88): die Direktmessung mit Kontaminationsmeßgeräten und die indirekte Messung mittels Wischprobenahme und anschließender Auswertung an einem zentralen Meßplatz. Mit den Meßverfahren wird die gesamte α -Aktivität erfaßt. Der Anteil der Plutoniumisotope muß durch α - und β -Spektrometrie an abwischbarem Material gesondert bestimmt werden.

3.1.2.1.1 Direktmessung

Für die Direktmessungen stehen tragbare Proportionalzähler mit einer Meßfläche von mehr als 100 cm², mit einer Massenbelegung der Fensterfolie des Detektors von 0,3 bis 0,9 mg/cm² und mit Propan/Butan oder Argon/Methan als Füllgase zu Verfügung. Die Geräte haben für α -Teilchen ein Oberflächenansprechvermögen von ca. 25 s⁻¹ Bq⁻¹ cm², es besteht keine signifikante Abhängigkeit von der Energie. Dieses Oberflächenansprechvermögen gilt für alle Plutoniumisotope mit Ausnahme von Pu-241. Die Anforderungen an die Meßgeräte ergeben sich aus [DIN 84]. Die β -Teilchen von Pu-241 lassen sich mit den beschriebenen Geräten nicht messen. Sie können nur durch die indirekte Methode nachgewiesen werden.

Bei der Durchführung der Messung ist auf möglichst geringen Abstand zwischen Meßobjekt und Detektor zu achten. Die Nachweisgrenze ist vom Nulleffekt und der Ansprechzeit bei Ratemetern oder der Meßzeit bei Digitalzählern abhängig und liegt in der Praxis für die α -Aktivität bei etwa 1·10⁻² Bq/cm².

3.1.2.1.2 Wischprobenahme

Die Wischprobenahme wird mit Filterpapier an mit einem Meßgerät nicht zugänglichen Oberflächen an den für die Anlagen repräsentativen Stellen vorgenommen. Hierbei wird in der Regel über eine Fläche von 100 cm² gewischt. Der Abnahmefaktor für die radioaktiven Stoffe (Wischfaktor) wird konservativerweise mit 0,1 angenommen. Bei der Auswertung der Wischproben ergibt sich bei einer Minute Meßzeit eine Nachweisgrenze von etwa 2·10⁻² Bq/cm². Durch Verlängerung der Meßzeit kann die Nachweisgrenze abgesenkt werden.

Zur Bestimmung von Pu-241 erfolgt die Wischprobenahme mit Styropor. Zur Messung wird ein Flüssigszintillationsmeßgerät eingesetzt. Das Styropor löst sich dabei vollständig im verwendeten Gemisch aus Lösungsmittel und Szintillatormaterial auf. Hierbei wird in der Praxis eine Nachweisgrenze von etwa 1·10⁻² Bq/cm² erreicht, sofern kein Tritium gleichzeitig vorhanden ist.

3.1.2.2 Messung der Raumluftaktivität

Für die Überwachung der Raumluftaktivität stehen prinzipiell zwei Verfahren zur Verfügung: für die Langzeitüberwachung werden Aerosolsammelgeräte mit diskontinuierlicher Auswertung eingesetzt und für eine Sofortanzeige bei höheren Freisetzungen von Plutonium in die Raumluft stehen sammelnde und anzeigende Geräte mit Alarmgebern zur Verfügung.

3.1.2.2.1 Aerosolsammler

Der Aufstellungsort der Aerosolsammler muß repräsentativ für die zu überwachenden Arbeitsplätze sein. Wichtige Einflußfaktoren sind der Abstand des Sammlers vom Arbeitsplatz und von der Abluftöffnung des Raums, die Luftdurchsatzrate des Sammlers und die Abluftrate aus dem Raum. Außerdem spielen die Aerosolgröße und die Geometrie der Anlageninstallation eine Rolle. Es sind drei Überwachungsstrategien denkbar: Aufstellungsort unmittelbar vor der Abluftöffnung, Aufstellungsort auf der der Abluftöffnung zugewandten Seite möglichst nahe am Arbeitsplatz oder bei tragbaren Geräten Anbringung der Filterhalterung unmittelbar in Gesichtsnähe der zu überwachenden Person.

Bei einem mittleren aktivitätsbezogenen aerodynamischen Durchmesser (AMAD) der Aerosole von einigen Mikrometern erfolgt schon im Umkreis von wenigen Metern eine merkliche Sedimentation der Aerosole. Da die Abluftöffnungen üblicherweise weiter als ein paar Meter von den Arbeitsplätzen entfernt sind, tritt bei einer Messung vor den Abluftöffnungen sowohl durch die Sedimentation als auch durch die Vermischung mit der übrigen Raumluft eine Erniedrigung der gesammelten Aktivität ein.

Bei der zweiten Methode werden Sammler mit Luftdurchsatzraten von 20 bis 50 m³/h benutzt, die so in der Nähe der Arbeitsplätze angeordnet werden, daß keine nennenswerte Beeinträchtigung der arbeitenden Personen eintritt. Die Raumluftaktivität wird bei dieser Methode auf Glasfaserfiltern von 20 cm Durchmesser gesammelt und arbeitstäglich ausgewertet. Dazu stehen Großflächenproportionalzählrohre zur Verfügung, die nach dem Pseudokoinzidenzverfahren eine meßtechnische Reduzierung der natürlichen Radioaktivität ermöglichen. Die Nachweisgrenze dieses Verfahrens ist von den Schwankungen der natürli-

chen Radioaktivität, der Durchsatzrate und der Meßzeit abhängig. Nach einer Zerfallszeit von einigen Stunden ist bei einer Meßzeit von wenigen Minuten eine Nachweisgrenze für die gesamte α -Aktivität von 60 mBq/m³ erreichbar, bei längerer Abklingzeit Werte von 1 mBq/m³ und weniger. Eine Langzeitstudie, in der die mittleren Aktivitätskonzentrationen in der Raumluft mit Ausscheidungsmeßwerten verglichen wurden, ergab für die berechnete Inkorporation einen Unterschied von etwa 30 % zwischen den beiden Verfahren [Di 86].

Die Sammlung der Aktivität im Gesichtsbereich erfolgt mit Geräten, die einen Luftdurchsatz von wenigen hundert Litern pro Stunde haben. Die mittlere Atemrate beträgt dagegen 1,25 m³/h. Bedingt durch den geringen Durchsatz, muß bei den üblichen Aktivitätskonzentrationen in der Raumluft über mehrere Tage hinweg gesammelt werden, um eine ausreichend tiefe Nachweisgrenze zu erhalten. Nach [Br 79] ergeben die Auswertungen bei Sammlern im Gesichtsbereich im Mittel etwa zehnmal höhere Aktivitätskonzentrationen als bei Sammelgeräten am Arbeitsplatz. Diese Ergebnisse wurden aber mit Arbeitsplatzsammlern gewonnen, die ca. 20 mal kleinere Luftdurchsätze hatten, als die Geräte, die im KfK verwendet werden. Ein Vergleich mit Ausscheidungsdaten wurde nicht durchgeführt.

Im Kernforschungszentrum Karlsruhe wird die zweite Methode angewandt, da sie aufgrund des hohen Luftdurchsatzes eine tägliche Auswertung der Filter mit ausreichend niedriger Nachweisgrenze erlaubt. Es ist dadurch möglich, den täglichen Interventionswert für die Ergreifung weiterer Maßnahmen auf 4 ‰ der Jahresaktivitätszufuhr festzulegen. Unter Abwägung von Genauigkeit, meßtechnischem Aufwand und Akzeptanz des Personals, stellt diese Methode den günstigsten Kompromiß dar.

3.1.2.2.2 Aerosolmonitoren

Sofern in einem Raum Freisetzung nicht auszuschließen sind, werden direkt anzeigende Monitoren in der Nähe von Arbeitsplätzen eingesetzt. Diese Geräte arbeiten mit Luftdurchsatzraten von 40 bis 60 m³/h und sammeln die Aktivität ebenfalls auf einem Glasfaserfilter von 20 cm Durchmesser. Über dem Filter sind Großflächenproportionalzählrohre angeordnet, die nach dem Pseudokoinzidenzverfahren eine meßtechnische Reduzierung der natürlichen Radioaktivität

ermöglichen. In Räumen mit gefilterter Zuluft läßt sich eine α -Aktivitätskonzentration von etwa 1 Bq/m^3 innerhalb von zehn Minuten nachweisen. Die Geräte geben optischen und akustischen Alarm beim Überschreiten von einstellbaren Schwellen.

3.1.2.3 Messung der Personenkontamination

Zur Kontrolle von Kleidung und Haut auf α -Strahler werden Hand-Fuß-Kleider-Monitoren mit Proportionalzählern benutzt. Bei diesen Geräten sind Kontaminationen mit α -Strahlern an den Händen und an den Schuhsohlen sowie bei Verdacht an sonstigen Körperteilen meßbar. Die Monitoren dienen als Alarmgeber beim Überschreiten von eingestellten Schwellen. Eine Überschreitung des Grenzwertes für Schutzmaßnahmen im außerbetrieblichen Überwachungsbereich von $0,037 \text{ Bq/cm}^2$ läßt sich bei einer Meßzeit von fünf bis zehn Sekunden mit großer statistischer Sicherheit ausschließen.

Beim Übergang vom Anlagenbereich in den Wartungsbereich werden vor Ablegen der Schutzkleidung Hände und Schuhsohlen sowie mit der beweglichen Kleidersonde die Kleideroberfläche an einem Hand-Fuß-Kleider-Monitor ausgemessen. Der Alarmwert ist dabei auf $0,37 \text{ Bq/cm}^2$ eingestellt. Eine eventuelle Personenkontamination läßt auf eine Freisetzung von Radioaktivität aus der Anlage und dadurch bedingter Kontamination von handhabbaren Teilen der Apparatur oder des Bodens schließen.

Beim Verlassen der Gebäude erfolgt eine nochmalige Kontaminationsprüfung der Hände und der Sohlen von Privatschuhen an einem weiteren Monitor. Der Monitor zeigt Kontaminationsfreiheit oder gegebenenfalls kontaminierte Hände oder Schuhsohlen an.

3.1.3 Strahlenschutzmaßnahmen

Die Aufgabe der Arbeitsplatzüberwachung ist es, die Dichtheit von Barrieren und das Nichtauftreten von Inkorporationen nachzuweisen. Sie beruht auf dem Zusammenspiel der oben dargestellten drei Verfahren.

Beim Überschreiten von Schwellwerten werden Sperrungen von Arbeitsplätzen oder Räumen angeordnet, die Ursache für die Kontaminationen ermittelt und anschließend eine Dekontamination durchgeführt. Der Schwellwert der Oberflächenkontamination beträgt $3,7 \text{ Bq/cm}^2$, für die Raumluftaktivitätskonzentration $6 \cdot 10^{-2} \text{ Bq/m}^3$.

Die Oberflächen- und Raumluftüberwachung ergänzen sich. Nach [Kö 70] nimmt im stationären Fall das Verhältnis zwischen der Raumluft- und Oberflächenaktivität Werte zwischen 10^{-6} und 10^{-8} cm^{-1} . Eigene Messungen lieferten Werte bei 10^{-7} cm^{-1} [Di 80].

Eine Personen- und Kleiderkontamination löst ebenfalls eine Ursachenermittlung aus. Die Personendekontamination wird in der Medizinischen Abteilung durchgeführt. Falls aufgrund der Meßwerte und der Ursachenerforschung der Verdacht auf Inkorporation besteht, wird eine Überwachung aus besonderem Anlaß durchgeführt. Dieser Verdacht besteht, wenn die betroffene Person einem Aktivitätskonzentrations-Zeitintegral von mehr als $0,6 \text{ Bq m}^{-3} \text{ h}$ ausgesetzt oder eine Gesichtskontamination eingetreten war.

3.2 In-vivo-Messung von Plutonium

H. R. Doerfel

3.2.1 Direkte in-vivo-Messung

3.2.1.1 Grundlagen

Die direkte in-vivo-Messung von Plutonium basiert auf dem Nachweis der den α -Zerfall begleitenden charakteristischen Röntgen-Strahlung. Die Röntgen-Strahlung geht auf Rekombinationsprozesse in der L-Schale der Tochteratome zurück und wird daher kurz als L-Strahlung bezeichnet. Die L-Strahlung hat eine sehr geringe Energie und außerdem auch eine sehr geringe Häufigkeit (Tabelle 3.2.1). Bedingt dadurch können auch bei Inkorporationen in Höhe der Grenzwerte im allgemeinen nur sehr geringe L-Strahlungsintensitäten außerhalb des Körpers nachgewiesen werden. Man benötigt daher spezielle Detektorsysteme, die im Energiebereich der L-Strahlung eine möglichst hohe Empfindlichkeit und gleichzeitig einen möglichst niedrigen Nulleffekt haben.

Isotop	Häufigkeit der L-Strahlungskomponenten in %		
	L_{α} (13,6 keV)	L_{β} (17,2 keV)	L_{γ} (20,2 keV)
Pu-236	4,49	6,39	1,48
Pu-238	3,97	5,57	1,28
Pu-239	1,48	2,09	0,49
Pu-240	3,77	5,32	1,22
Pu-242	3,13	4,41	1,02
Pu-244	2,68	3,76	0,86
	L_{α} (13,9 keV)	L_{β} (17,8 keV)	L_{γ} (20,8 keV)
Am-241	13,2	19,3	4,9

Tab. 3.2.1: L-Strahlungsqualitäten der wichtigsten Plutonium-Isotope und von Am-241

3.2.1.2 Detektorsysteme

Von den vielen verschiedenen Detektorsystemen, die in den letzten 30 Jahren zur in-vivo-Messung von Plutonium entwickelt wurden, haben sich die in der Tabelle 3.2.2 aufgeführten Systeme besonders gut bewährt.

Großflächenproportionalzähler mit Vollraum-Antikoinzidenz:	
- Mäßiger Wirkungsgrad für L-Strahlung	(+)
- Sehr niedriger Wirkungsgrad für höherenergetische Strahlung	(- -)
- Niedriger Nulleffekt	(+)
- Hohes Energieauflösungsvermögen	(+)
Phoswichdetektoren mit Impulsformdiskriminierung:	
- Sehr hoher Wirkungsgrad für L-Strahlung	(+ +)
- Hoher Wirkungsgrad für höherenergetische Strahlung	(+)
- Niedriger Nulleffekt	(+)
- Sehr geringes Energieauflösungsvermögen	(- -)
Planare Germaniumdetektoren in Feldanordnung:	
- Sehr hoher Wirkungsgrad für L-Strahlung	(+ +)
- Niedriger Wirkungsgrad für höherenergetische Strahlung	(-)
- Hoher Nulleffekt	(-)
- Sehr hohes Energieauflösungsvermögen	(+ +)

Tab. 3.2.2: Detektorsysteme zur in-vivo-Messung von Plutonium mit einer groben Wertung der wichtigsten Meßeigenschaften

Bei den frühesten Entwicklungen handelte es sich um Großflächenproportionalzähler mit verschiedenen Antikoinzidenztechniken. Im Kernforschungszentrum Karlsruhe wurden die ersten derartigen Zähler bereits im Jahre 1961 entwickelt [Fe 61]. Ein Jahr später wurde mit Hilfe dieser Zähler erstmalig ein Verfahren zur in-vivo-Messung von Plutonium im Skelett [Ki 62] und ein weiteres Jahr später ein Verfahren zur in-vivo-Messung von Plutonium in der Lunge [Eh 64] bereitgestellt. Aufgrund der sehr guten Eignung der Proportionalzähler zum Nachweis von reinem Plutonium wurden in den folgenden Jahren weitere Versionen mit Vollraumantikoinzidenz und mit Impulsformdiskriminierung gebaut. Die Praxis zeigte dann allerdings, daß der Nachweis von Plutonium in Gegenwart von anderen Radionukliden wie z. B. Am-241 wegen der geringen Ansprechwahrscheinlichkeit der Proportionalzähler für höherenergetische Strahler schwierig ist.

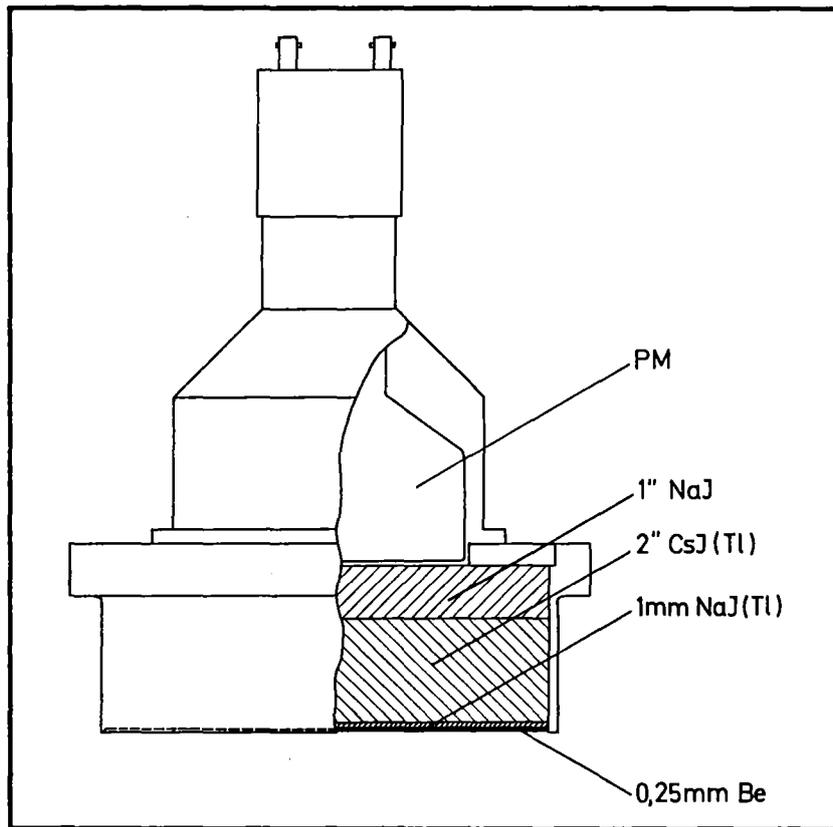


Abb. 3.2.1: Phoswich-Detektor des KfK-Teilkörperzählers zur in-vivo-Messung von Plutonium (Harshaw Type 32MBSH 1M/5B-X)

Aus diesem Grund wurden die Proportionalzähler in vielen Laboratorien in den siebziger Jahren durch die neu auf den Markt gekommenen Phoswich-Detektoren ersetzt. Die Phoswich-Detektoren bestehen im wesentlichen aus einem dünnen NaI(Tl)-Kristall zum Nachweis der L-Strahlung und einem vergleichsweise dicken CsI(Tl)-Kristall zum Nachweis der höherenergetischen Strahlung (Abbildung 3.2.1). Durch Impulsformdiskriminierung können die reinen Strahlenabsorptionsereignisse im NaI(Tl)-Kristall von den übrigen Absorptionsereignissen separiert werden. Auf diese Weise erhält man ein Spektrum mit stark reduziertem Compton-Untergrund im niederenergetischen Bereich zwischen etwa 10 keV und 250 keV. In einer zweiten Diskriminierungsstufe werden die Absorptionsereignisse im CsI(Tl)-Kristall separiert, wobei ein Spektrum für den Energiebereich zwischen etwa 100 keV und 2500 keV resultiert. Dieses Spektrum ist zur Korrektur der höherenergetischen Störstrahlungseinflüsse im Energiebereich der L-Strahlung außerordentlich wichtig.

Mit den Phoswich-Detektoren wurden im Kernforschungszentrum sehr gute Erfahrungen gemacht. Sie zeichnen sich gegenüber den Proportionalzählern insbesondere durch ihren hohen Wirkungsgrad und ihren niedrigen Nulleffekt aus. Einziger Nachteil der Phoswich-Detektoren ist das schlechte Energieauflösungsvermögen, das insbesondere in Gegenwart höherenergetischer Störstrahler zu erheblichen Schwierigkeiten bei der Spektrumsauswertung führen kann.

Seit etwa zehn Jahren werden zur in-vivo-Messung von Plutonium zunehmend Germaniumdetektoren verwendet. Bedingt durch das sehr gute Energieauflösungsvermögen ist bei diesen Detektoren die Separierung der Störstrahlungskomponenten wesentlich einfacher und zuverlässiger durchzuführen als bei den Phoswich-Detektoren und den Proportionalzählern. Darüber hinaus ermöglichen die Germaniumdetektoren bis zu einem gewissen Grad auch eine spektroskopische Trennung der L-Strahlungskomponenten von Plutonium und Americium. Durch einen Intensitätsvergleich der drei Röntgen-Strahlungslinien von Plutonium und/oder Am-241 kann die effektive Absorption der Strahlung im Körper abgeschätzt werden. Dadurch können äußere Kontaminationen leichter erkannt werden als durch den bisher praktizierten Intensitätsvergleich der Röntgen-Strahlung mit der Gamma-Strahlung von Am-241. Außerdem kann durch die Abschätzung der effektiven Absorption die Kalibrierung verifiziert werden. Somit sind die Germaniumdetektoren in vielerlei Hinsicht den Phoswichdetektoren und den Proportionalzählern überlegen.

3.2.1.3 Kalibrierung

Zur Bestimmung des Wirkungsgrades der Detektorsysteme werden heute im allgemeinen Phantomkalibrierungen durchgeführt. Hierbei wird zunächst der Wirkungsgrad für eine definierte Plutonium-Deposition in einem anthropomorphen Standard-Phantom bestimmt und danach mit Hilfe von speziellen Korrekturformeln auf die jeweiligen Körperproportionen des Probanden umgerechnet. Seit 1982 gibt es kommerzielle Phantome, bei denen sowohl die Körperproportionen als auch das Muskel-Fett-Verhältnis in einem weiten Bereich variiert werden kann. Mit diesen Phantomen kann der individuelle Wirkungsgrad unmittelbar aus den Kalibriermessungen gewonnen werden. Wenn kein geeignetes Phantom zur Verfügung steht, kann auch eine rechnerische Kalibrierung durchgeführt werden. Hierbei werden zunächst mit einem geeigneten Ultraschall-

gerät die Gewebestrukturen im Bereich des zu untersuchenden Organs ausgemessen. Anhand dieser Strukturen wird dann mit Hilfe spezieller Transportrechnungen die mittlere Absorption der L-Strahlung im Gewebe und damit der individuelle Wirkungsgrad bestimmt. Vereinzelt wurden zur Wirkungsgradbestimmung auch in-vivo-Kalibrierungen durchgeführt, bei denen Referenzpersonen ein Aerosol mit einem ungefährlichen Plutoniumsimulator und einer Markierungssubstanz inhalierten. Dieses Verfahren, das zu einer Lungendosis in der Größenordnung von etwa 0,2 mSv führt, wird heute allerdings nicht mehr angewandt.

3.2.1.4 Untere Nachweisgrenze

Die untere Nachweisgrenze der Detektorsysteme wird in erster Linie durch den Wirkungsgrad sowie durch die zählstatistische Streuung und die personenbezogene Schwankung des Nulleffekts im Energiebereich der L-Strahlung bestimmt. Die Abbildung 3.2.2 zeigt als Beispiel die anhand von Phantomkalibrierungen für verschiedene Brustwandstärken und verschiedene Fett-Muskel-Verhältnisse ermittelte untere Nachweisgrenze der beiden Phoswichdetektoren des KfK-Lungenzählers. Die Nachweisgrenze bezieht sich hierbei auf ideale Meßbedingungen, d. h. (a) das Plutonium ist homogen in der Lunge verteilt, (b) außer Plutonium und der natürlichen Radioaktivität sind keine weiteren Nuklide im Körper vorhanden, (c) zur Spektrumsauswertung steht ein geeignetes Vergleichsspektrum zur Verfügung und (d) die Meßgeometrie der Vergleichsmessung wird genau reproduziert. Sind diese Voraussetzungen erfüllt, so kann ein Plutonium-Lungendepot in Höhe des Grenzwertes (Lung burden) mit mindestens 95 %iger Sicherheit nachgewiesen werden. Wenn die beiden letztgenannten Voraussetzungen nicht erfüllt sind, erhöht sich die Nachweisgrenze etwa um den Faktor 2. Bei Inkorporation höherenergetischer Störstrahler richtet sich die Erhöhung der Nachweisgrenze nach der Aktivität und der räumlichen Verteilung der Störstrahler sowie nach den Methoden zur Korrektur der Störstrahlungseinflüsse.

Zur Orientierung ist in Abbildung 3.2.2 auch der Grenzwert der jährlichen Aktivitätszufuhr (Grenzwert der Jahresaktivitätszufuhr: 0,16 kBq Pu-239 für beruflich strahlenexponierte Personen der Kategorie A nach der Strahlenschutzverordnung) angegeben. Eine Lungenaktivität in dieser Höhe ist bei schlanken Perso-

nen noch nachweisbar. Hierbei ist allerdings zu berücksichtigen, daß je nach Korngröße der inhalierten Aerosole bis zu etwa 30 % der zugeführten Aktivität sofort wieder ausgeatmet werden. Demnach befinden sich nach Zufuhr einer Aktivität in Höhe des Grenzwertes der Jahresaktivitätszufuhr nur etwa 0,11 bis 0,16 kBq Pu-239 im Atemtrakt. Weiter ist zu berücksichtigen, daß ein großer Teil dieser Aktivität innerhalb weniger Tage über den Stuhl ausgeschieden wird. Somit ist eine Zufuhr in Höhe des Grenzwertes der Jahresaktivitätszufuhr bei sehr schlanken Personen allenfalls am ersten Tag nach der Zufuhr noch nachweisbar. Im allgemeinen muß man davon ausgehen, daß eine Zufuhr in Höhe des Grenzwertes der Jahresaktivitätszufuhr mit den Methoden der direkten in-vivo-Messung nicht erkannt wird.

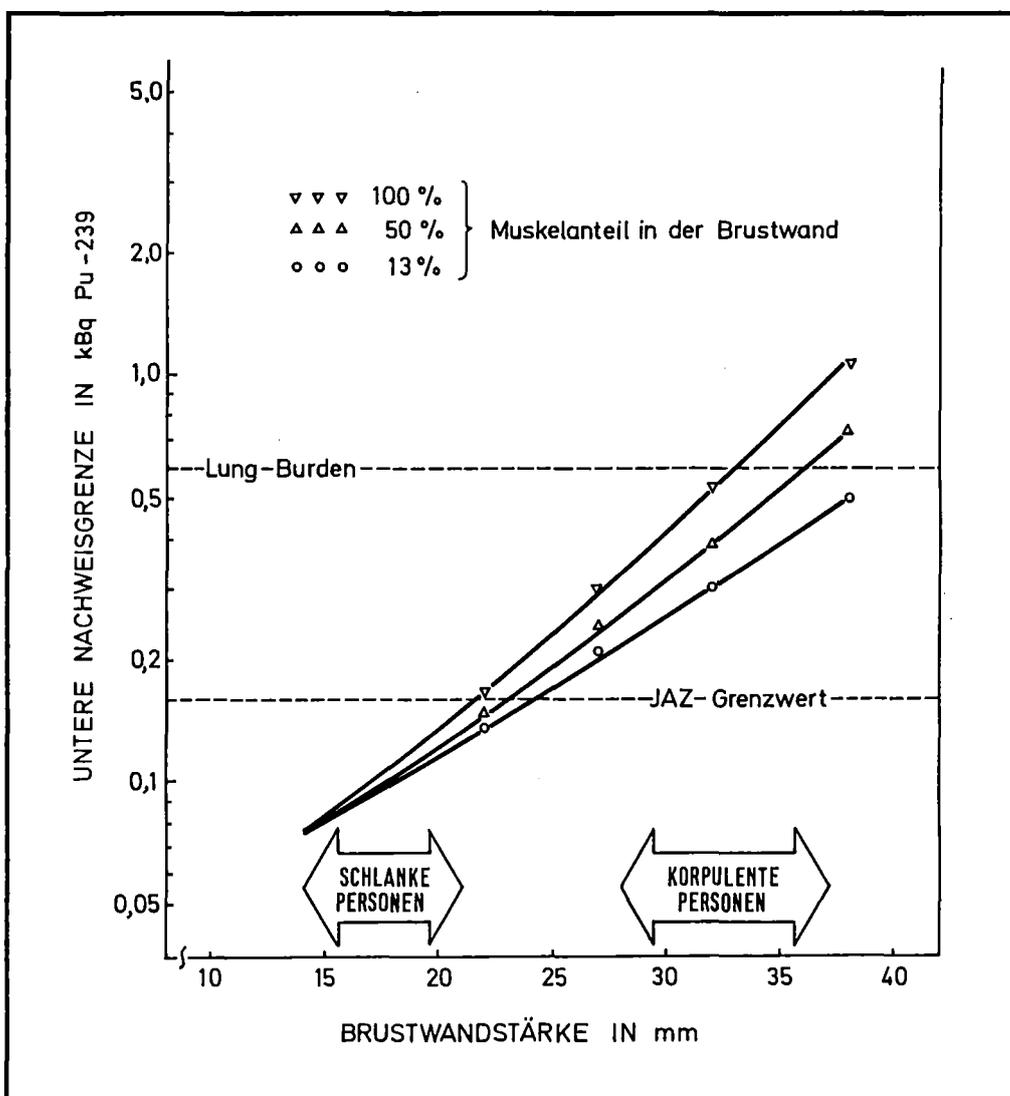


Abb. 3.2.2: Untere Nachweisgrenze des KfK-Lungenzählers für homogene Pu-239-Lungendepositionen nach Kalibrierung mit dem Lawrence-Livermore-Phantom

3.2.2 Leitnuklidmessung

Da in vielen Arbeitsbereichen Plutonium stets zusammen mit Spaltprodukten auftritt, wurde im Kernforschungszentrum Karlsruhe für die routinemäßige Inkorporationsüberwachung in diesen Bereichen ein indirektes Verfahren entwickelt, das auf dem Nachweis des zusammen mit dem Plutonium inkorporierten Cs-137 beruht. Bei diesem Verfahren wird zunächst mit Hilfe der ICRP-Modelle [ICRP 79] aus der Cs-137-Körperaktivität die Cs-137-Zufuhr abgeschätzt und danach anhand der vorliegenden Aktivitätsverhältnisse die Plutonium-Zufuhr ermittelt. Die Bestimmung der Cs-137-Körperaktivität erfolgt mit dem KfK-Ganzkörperzähler, mit dem bei einer Meßzeit von 30 Minuten eine untere Nachweisgrenze von etwa 7 Bq Cs-137 erzielt werden kann. Bei der Bestimmung der expositionsbedingten Cs-137-Körperaktivität muß allerdings berücksichtigt werden, daß dieses Nuklid - insbesondere jetzt nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl - auch über die Nahrung aufgenommen wird. Man muß daher die durch die Nahrungsaufnahme bedingte Komponente der Cs-137-Körperaktivität separat bestimmen und von der Cs-137-Körperaktivität des exponierten Personals subtrahieren.

Die kleinste nachweisbare Plutoniumzufuhr wird bei diesem Verfahren in erster Linie durch die Schwankungsbreite des ernährungsspezifischen Grundpegels der Cs-137-Körperaktivität und in zweiter Linie durch die untere Nachweisgrenze der Cs-137-Körperaktivität bestimmt. Vor dem Unfall von Tschernobyl lag die Schwankungsbreite der ernährungsspezifischen Cs-137-Körperaktivität in einer zehn Personen umfassenden Referenzgruppe bei etwa 10 Bq. Hieraus ergeben sich für die kleinsten bei stationären Expositionsbedingungen in den betrachteten Bereichen des Kernforschungszentrums Karlsruhe noch nachweisbaren Plutonium-Zufuhren Werte von weniger als 5 Bq pro Jahr. Nach dem Unfall von Tschernobyl ist die mittlere Schwankungsbreite der ernährungsspezifischen Cs-137-Körperaktivität und damit auch die Nachweisgrenze für Plutonium allerdings auf mehr als das Zwanzigfache angestiegen.

3.2.3 Praktische Erfahrungen

Im Kernforschungszentrum Karlsruhe konnte bisher nur in einem einzigen Fall eine Plutoniuminkorporation direkt nachgewiesen werden. Und zwar wurde im

Jahr 1983 nach einem Zwischenfall im Ausland ein Proband mehrmals im Lungenzähler des Kernforschungszentrums Karlsruhe auf Plutonium und Americium untersucht. Die Inkorporation lag zum Zeitpunkt der ersten Messung bereits einen Monat zurück, so daß von einer Aktivitätsdeposition in der Lunge, in den pulmonalen Lymphknoten, in der Leber und im Skelett auszugehen war. Aus diesem Grund wurden außer den normalen Lungenmessungen auch spezielle Leber- und Skelettmessungen durchgeführt. Bei den Lebermessungen wurden die Detektoren in maximalem Körperkontakt über der Leber des Probanden angeordnet, bei den Skelettmessungen über dem Schädel. Obwohl der Rumpf des Probanden bei der Schädelmessung mit einer Bleischürze abgedeckt war, wurde die aus dem Schädel stammende Strahlungskomponente merklich von einer aus der Lunge stammenden Strahlungskomponente überlagert. Da die aus der Lunge stammende Strahlungskomponente in dieser Meßgeometrie mit dem Phantom nicht reproduziert werden konnte, war eine Separierung der aus dem Schädel stammenden Strahlungskomponente nicht möglich.

Organ	Organaktivität in kBq			
	Am-241		Plutonium*	
	01.07.1983	04.11.1983	01.07.1983	04.11.1983
Lunge**	0,26 ± 0,02	0,23 ± 0,04	2,4 ± 0,9	3,2 ± 1,1
Leber	0,01 ± 0,01	0,03 ± 0,01	-	-

Tab. 3.2.3: Meßergebnisse nach einer zwischenfallsbedingten Plutonium-Americium-Inkorporation

*) bezogen auf 5,3 % Pu-238, 63,1 % Pu-239, 31,1 % Pu-240

***) inklusive pulmonale Lymphknoten

Zur Bestimmung der Aktivitätsverteilung auf Lunge und Leber wurde zunächst mit Hilfe eines Ultraschall-Scanners die Brustwandstärke des Probanden im Bereich der Detektoren ermittelt. Danach wurden mit dem Phantom für vergleichbare Brustwandstärken die Kalibrierfaktoren für alle involvierten Organe bestimmt. Nach logarithmischer Interpolation dieser Kalibrierfaktoren auf die Brustwandstärke des Probanden konnten die in den verschiedenen Meßpositionen ermittelten Spektren in die organspezifischen Komponenten zerlegt werden. Dabei ergaben sich zunächst die im linken Teil von Tabelle 3.2.3 angegebenen Am-241-Aktivitäten.

Bei der Bestimmung der Plutoniumaktivität kann man im vorliegenden Fall von einem reinen Lungendepot ausgehen. Die Abbildung 3.2.3 zeigt als Beispiel das bei der zweiten Untersuchung über der Lunge gemessene Nettospektrum des Probanden im Vergleich zu dem auf die gleiche Brustwandstärke und auf eine äquivalente Am-241-Lungenaktivität bezogene Spektrum des Lungenphantoms.

Die Differenz zwischen diesen beiden Spektren (Abb. 3.2.4) ist im niederenergetischen Bereich positiv, im Bereich zwischen etwa 30 keV und etwa 60 keV negativ und im höherenergetischen Bereich innerhalb der zählstatistischen Schwankungsbreite gleich Null. Als Ursache für die negative Komponente stellte sich nach umfangreichen Untersuchungen heraus, daß der bei etwa 48 keV liegende Rückstreupeak der Gammastrahlung von Am-241 bei der Phantommessung größer als bei der Probandenmessung war. Dies hat allerdings auf die Bestimmung der Plutoniumaktivität keinen nennenswerten Einfluß. Auch das Rauschkontinuum im niederenergetischen Bereich, das sich durch logarithmische Extrapolation leicht von der Plutonium-Komponente separieren läßt, führt im vorliegenden Fall zu keinem nennenswerten Fehler.

Die Plutoniumkomponente, die in der gleichen Weise wie die Americium-Komponente durch Messungen mit dem Lungenphantom approximiert wurde, entspricht einem Lungendepot von 4,6 kBq Pu-239. Aufgrund der Ergebnisse der Ausscheidungsmessungen wurde kein reines Pu-239, sondern ein Gemisch von 5,3 % Pu-238, 63,1 % Pu-239 und 31,1 % Pu-240 inkorporiert. Bei Berücksichtigung der unterschiedlichen Emissionswahrscheinlichkeiten für die L-Strahlung der verschiedenen Plutoniumisotope ergibt sich hieraus für das Lungendepot eine Gesamtaktivität von 3,2 kBq mit einem Gesamtfehler von etwa 1,1 kBq. Der relativ große Fehler ist in erster Linie auf Unsicherheiten bei der Bestimmung der Brustwandstärke bzw. der darauf basierenden Separierung der Americium-Komponente zurückzuführen. Trotz des relativ großen Fehlers liegt das Verhältnis der Lungenaktivitäten von Plutonium und Americium mit etwa 11:1 sehr nahe am Verhältnis der in den Ausscheidungen nachgewiesenen Aktivitäten (12:1).

Dieser Fall macht deutlich, mit welchen Schwierigkeiten die direkte in-vivo-Messung von Plutonium in Gegenwart von Am-241 verbunden sein kann. Im vorliegenden Fall wurde die untere Nachweisgrenze von Plutonium durch die Störstrahlungseinflüsse von Am-241 um etwa den Faktor 10 erhöht. Man kann

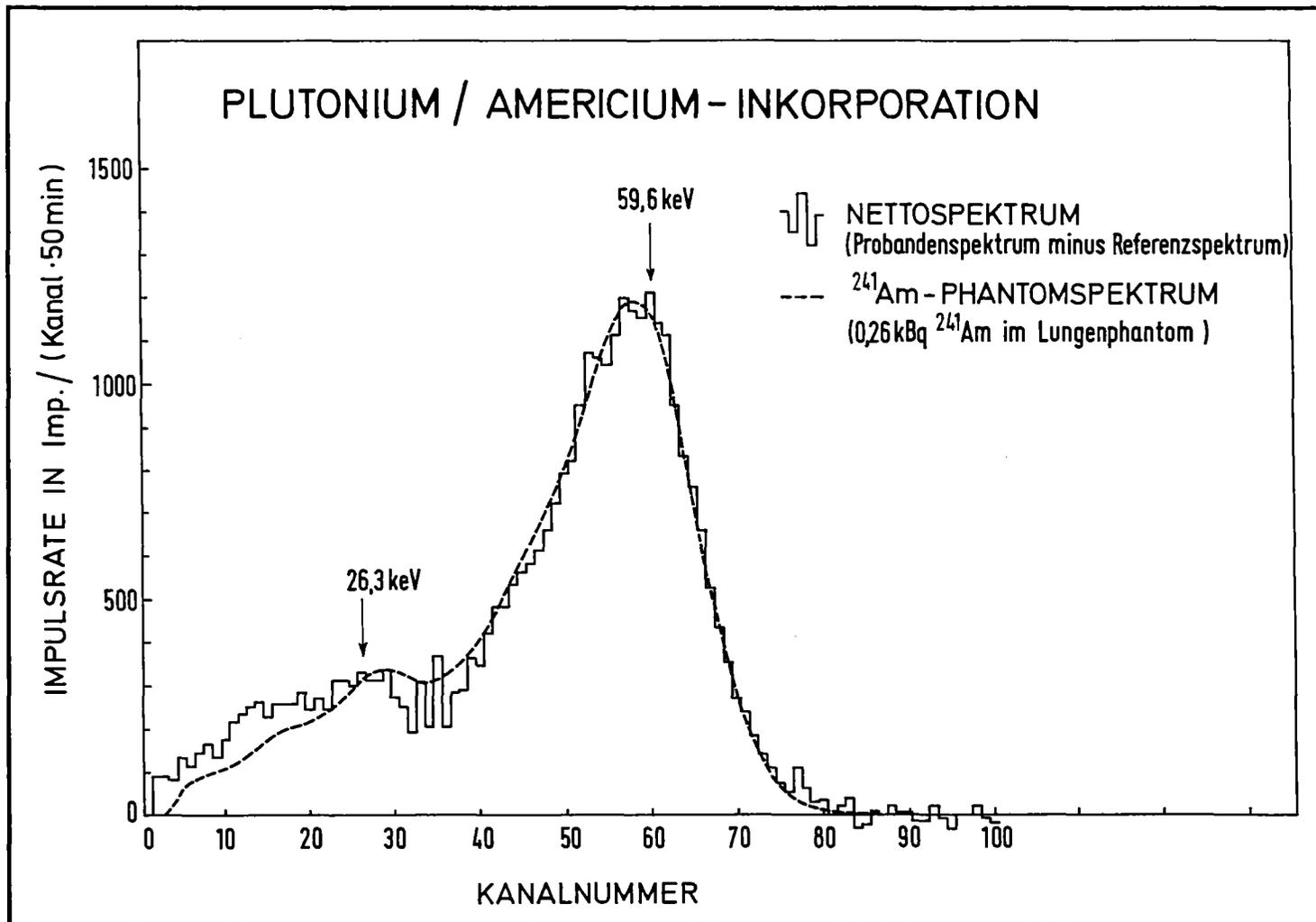


Abb. 3.2.3: Probandenspektrum im Vergleich zum Am-241-Phantomspektrum bei einer zwischenfallsbedingten Pu/Am-Inkorporation

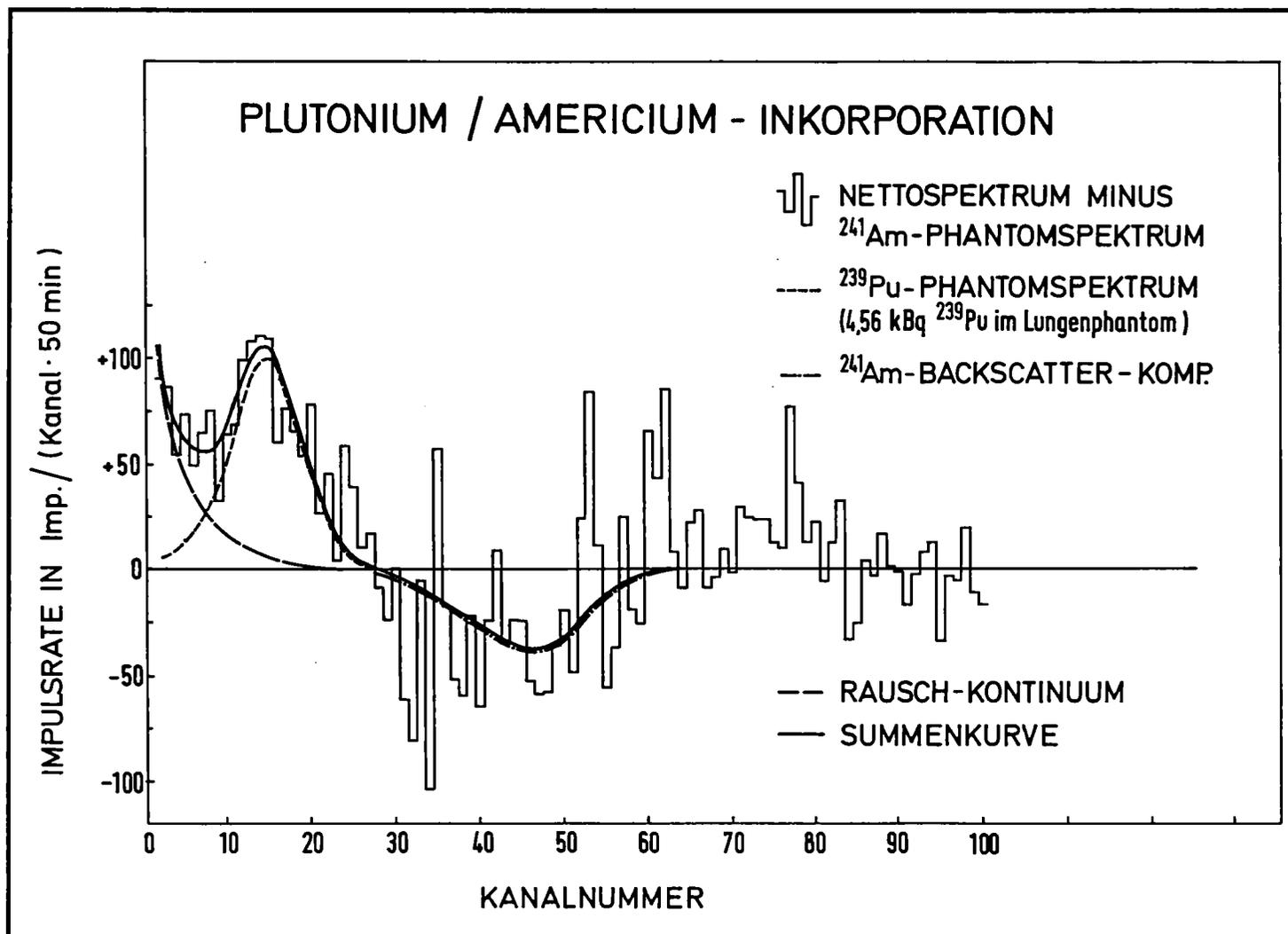


Abb. 3.2.4: Separierung der Pu-Komponente aus dem Probandenspektrum

hier allerdings aus der Not eine Tugend machen, indem man das Am-241 als Leitnuklid zur Bestimmung der Plutoniumaktivität heranzieht. Bei den vorliegenden Aktivitätsverhältnissen verringert sich dadurch die untere Nachweisgrenze auf etwa 100 Bq Plutonium.

3.2.4 Die weitere Entwicklung

Aufgrund der Erfahrungen nach den oberirdischen Kernwaffentests dauert es mindestens drei Jahre, bis die durch Tschernobyl bedingte Cäsium-Körperaktivität soweit abgeklungen ist, daß die Nachweisgrenze der Phoswich-Detektoren wieder bei den ursprünglichen Werten liegt. Während dieser Zeit ist eine hinreichend empfindliche Direktbestimmung der Körperaktivität von Plutonium nur mit Germaniumdetektoren möglich.

Angesichts dieser Situation wird zur Zeit bei KfK im Rahmen eines vom Bundesumweltministerium geförderten Forschungsvorhabens ein neuer Teilkörperzähler mit speziellen Germanium-Teleskopdetektoren entwickelt. Diese Detektoren bestehen jeweils aus einem flachen Low-Energy-Germaniumkristall und einem unmittelbar dahinter angeordneten koaxialen Germaniumkristall und arbeiten nach dem gleichen Prinzip der Nulleffektreduzierung wie die Phoswich-Detektoren. Für den neuen Teilkörperzähler werden sieben Germanium-Teleskopdetektoren verwendet, die zur weiteren Nulleffektreduzierung in einem gemeinsamen Plastik-Szintillationsdetektor eingebettet sind. Vor den Strahleneintrittsfenstern der Teleskopdetektoren befindet sich jeweils ein dünner Gasdurchflußproportionalzähler, mit dessen Hilfe die Beta-Strahlung und die Compton-Elektronen aus der Umgebung eliminiert werden sollen. Aufgrund der bisherigen Erkenntnisse wird dieses Detektorsystem allen bisher gebräuchlichen Meßanordnungen überlegen sein. Mit diesem Detektorsystem sollte es möglich sein, die Plutoniumaktivität in allen dosisrelevanten Organen so empfindlich zu messen, daß eine direkte Dosisbestimmung auch unterhalb der zulässigen Grenzwerte durchführbar ist.

3.3 Inkorporationsüberwachung durch Ausscheidungsanalysen

H. Schieferdecker

3.3.1 Grundlagen der Inkorporationsüberwachung

3.3.1.1 Grenzwerte der Körperdosis

Die ICRP-Publikation 2 [ICRP 59] sowie die Strahlenschutzverordnung aus dem Jahr 1977 gehen von jährlichen Dosiswerten aus, die für den Gesamtkörper und für einzelne Organe nicht überschritten werden dürfen. Zur Begrenzung wird bezüglich der Inkorporation radioaktiver Stoffe dasjenige "kritische Organ" herangezogen, bei dem durch die Ablagerung und die damit verbundene Exposition die größte Wirkung verursacht wird.

Dieses Konzept ist in den letzten Jahren durch das Konzept der "effektiven Äquivalentdosis" ersetzt worden, bei dem die Wirkung auf den Gesamtkörper mit allen seinen Organen als Bezug genommen wird [ICRP 77, ICRP 79]. Dieses Konzept hat im Entwurf zur Novellierung der Strahlenschutzverordnung seinen Eingang in die deutsche Gesetzgebung gefunden.

Da die primären Grenzwerte für die einzelnen Körperorgane oder den Gesamtkörper im Fall der Inkorporation mit Dosimetern nicht bestimmt werden können, wurden sekundäre Grenzwerte abgeleitet, die an die Stelle der primären Standards treten.

3.3.1.2 Maximal zugelassene Körperbelastung

Unter Benutzung der physikalischen und biologischen Eigenschaften der Radionuklide (Strahlenenergie, Zerfallsschema, Art und biologische Wirksamkeit der Strahlung), dem aufgenommenen Anteil der Nuklide und der Masse der Organe lassen sich diejenigen Aktivitäten berechnen, die bei Anwesenheit im Körper gerade die Grenzwerte der Körper- oder Organdosen verursachen. Sie wurden von ICRP [ICRP 59, ICRP 64] für eine Reihe von Radionukliden als "maximal zugelassene Körperbelastung" tabelliert. Sie gelten für den Fall, daß sich die Aktivität des Radionuklids in gleicher Höhe während eines Kalenderjahrs im Körper befindet. Um das zu erreichen, muß diese Aktivität dem Körper zugeführt, von den Körperflüssigkeiten aufgenommen und im Körper abgelagert werden. Es

wurde deshalb von der ICRP bei der Inkorporation zwischen drei verschiedenen Begriffen unterschieden:

- Zufuhr (intake): Eintritt von Stoffen in den Körper durch Ingestion oder Inhalation, unabhängig vom weiteren Verbleib im Körper (Ausatmung, Ausscheidung, radioaktiver Zerfall);
- Aufnahme (uptake): Übertritt von Stoffen in die Körperflüssigkeiten und Transport zu anderen Organen;
- Deposition (deposition): Ablagerung von Stoffen im Körper in bestimmten Organen.

Die Ableitung der Werte der maximal zugelassenen Körperbelastung ist ausschließlich unter Bezug auf die abgelagerten Aktivitäten (deposition) vorgenommen worden. Es wird angenommen, daß diese Aktivität ständig im Körper vorhanden ist. Dies entspricht nicht der Praxis, da die Radionuklide zerfallen (physikalische Halbwertszeit) oder aus dem Körper ausgeschieden werden (biologische Halbwertszeit). Dadurch nimmt die Dosisleistung mit der Zeit ab. Unbeachtet bleibt bei diesem Konzept, daß Radionuklide, die länger als ein Kalenderjahr im Körper verweilen, auch noch längere Zeit eine Exposition hervorrufen.

3.3.1.3 Grenzwerte der Jahres-Aktivitätszufuhr

Die zeitliche Änderung aufgrund der Ausscheidung und des radioaktiven Zerfalls wird in einem erweiterten Konzept berücksichtigt. Mit Kenntnis der physikalischen und biologischen Halbwertszeit des Nuklids im Körper kann diejenige Aktivität des Radionuklids berechnet werden, die die Körperdosis in Höhe der primären Grenzwerte ergibt. Vereinfachend wird dies für eine einmalige Zufuhr pro Jahr berechnet und dieser Wert als Grenzwert der Jahresaktivitätszufuhr bezeichnet. Die Berücksichtigung der längerfristigen Ablagerung von Radionukliden wird durch die Berechnung der noch zu erwartenden Körperdosis über 50 Jahre (50-Jahre-Folgedosis) erreicht. Dadurch sind die Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr bei langlebigen Radionukliden zum Teil sehr viel kleiner als die Werte der maximal zugelassenen Körperbelastung. Bei kurzlebigen Radionukliden ist dies umgekehrt (siehe Abbildungen 3.3.1 und 3.3.2). Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr sind in der Strahlenschutzverordnung aufgeführt.

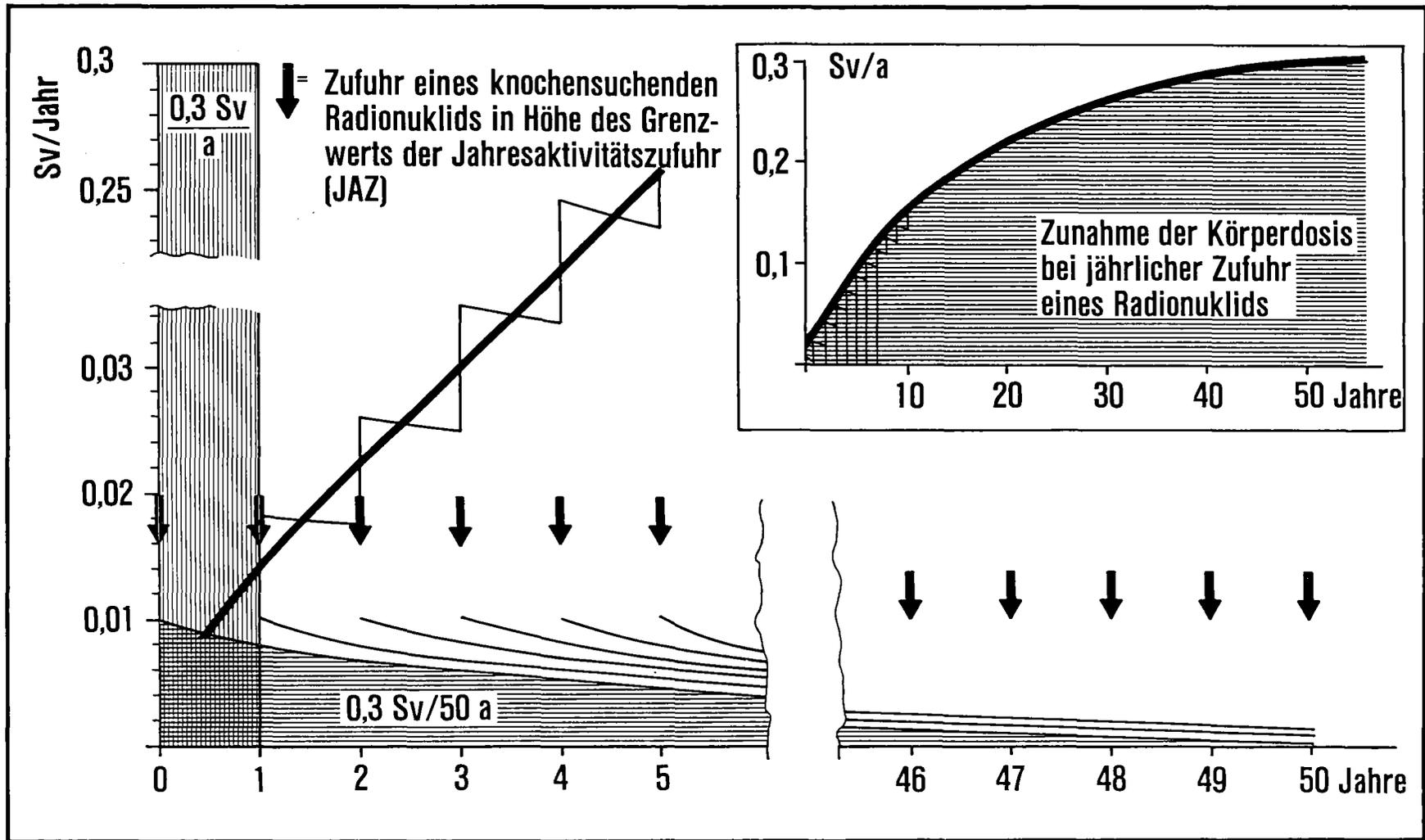


Abb. 3.3.1: Verlauf der Körperdosis nach Inkorporation eines langlebigen Radionuklides

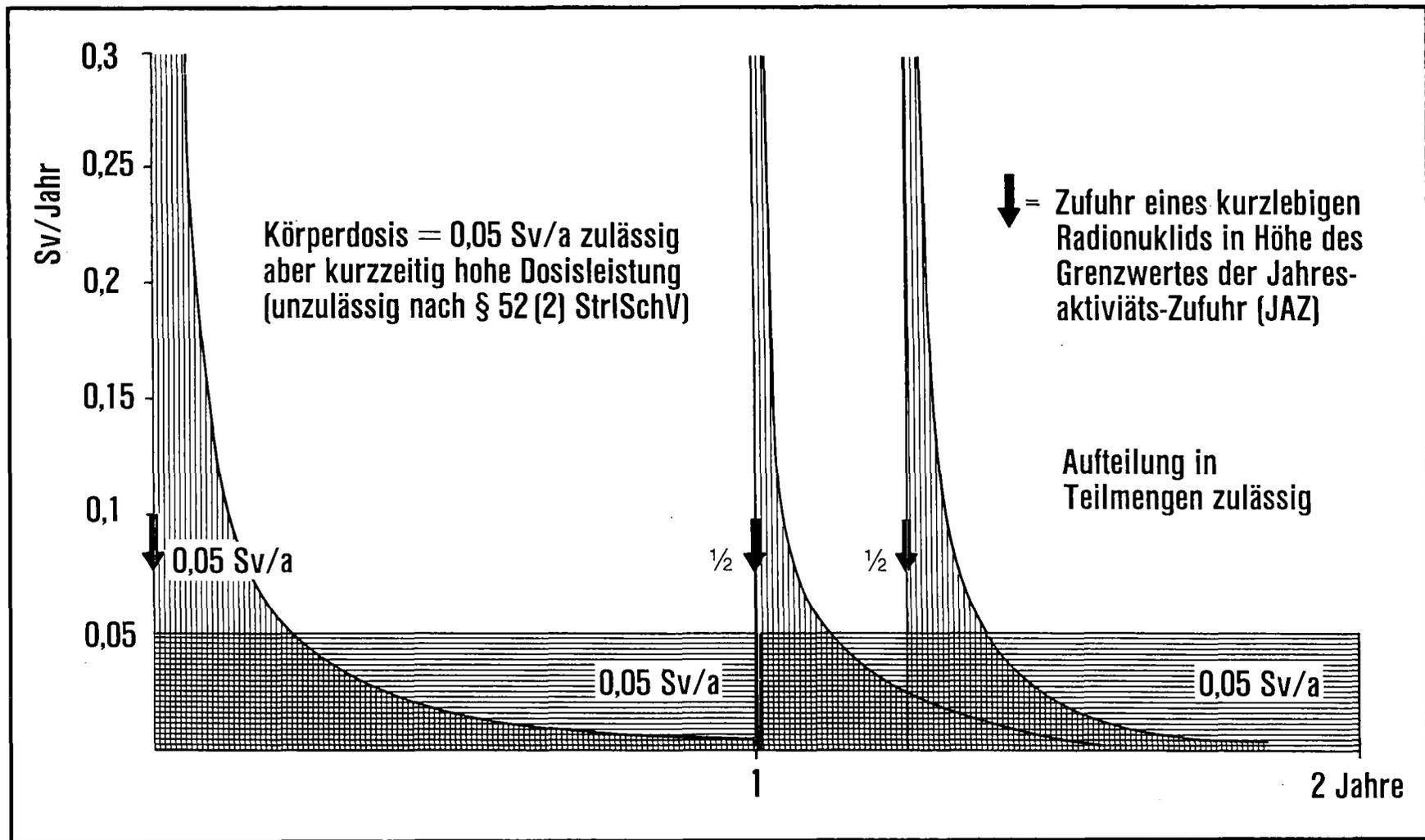


Abb. 3.3.2: Verlauf der Körperdosis nach Inkorporation eines kurzlebigen Radionuklides

3.3.1.4 Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr nach neuem Konzept

Bei der Berechnung der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr nach einem neuem Konzept der ICRP [ICRP 79] ist das Konzept des "kritischen Organs" aufgegeben worden. An dessen Stelle trat die sogenannte "effektive Äquivalentdosis". Demnach wird nicht mehr das kritische Organ, sondern der Gesamtkörper als Bezug für die Dosis benutzt. Die unterschiedliche Strahlenempfindlichkeit der verschiedenen Organe wird durch Wichtungsfaktoren W_T in die Berechnungen einbezogen. Die Körperdosis H_{eff} des Ganzkörpers errechnet sich damit nach der Beziehung

$$H_{eff} = \sum_i W_{T_i} \cdot H_{T_i}$$

aus der Organdosis H_{T_i} und dem Wichtungsfaktor W_{T_i} für die Organe T_i . Die Wichtungsfaktoren W_{T_i} für diese Rechnungen sind (Details siehe [ICRP 77]):

Gonaden	0,25
Brust	0,15
rotes Knochenmark	0,12
Lunge	0,12
Schilddrüse	0,03
Knochenoberfläche	0,03
verbleibender Körper	0,30

Die in Organen abgelagerte Aktivität führt nicht nur zu einer direkten Exposition dieses Organs, sondern kann auch durch Strahlung auf andere Organe eine zusätzliche Exposition dieser Organe bewirken. Dies wird bei der Errechnung der effektiven Dosis berücksichtigt. Bei Plutonium sind solche Dosisbeiträge wegen der geringen Reichweite der α -Strahlung ohne Bedeutung.

Unterschieden wird bei der Berechnung der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr zwischen der stochastischen und der nichtstochastischen Wirkung ionisierender Strahlen. In den Tabellen der ICRP [ICRP 79] sind jeweils diejenigen Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr angegeben, die im Vergleich von stochastischen und nichtstochastischen Dosen den niedrigeren Wert ergeben.

3.3.1.5 Metabolismus-Modelle

Die Berechnungen der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr wurden unter Benutzung verschiedener Modelle, die die Verteilung einer inhalierten oder ingestierten Verbindung nach der Zufuhr beschreiben (Lungenmodell, Ingestionsmodell), vorgenommen. Eine Aufnahme über die Wunde ist explizit nicht berechnet worden, kann aber mit dem Lungenmodell nach Modifikation beschrieben werden.

3.3.1.5.1 Lungenmodell

Die Ablagerung und Verteilung inhalierten Radionuklidverbindungen wurde von einer Arbeitsgruppe der ICRP untersucht und ist in [Mo 66] beschrieben. Bei der Inhalation bestimmt die Aerosolgröße den abgelagerten Anteil im Atemtrakt. Die verschiedenen chemischen Eigenschaften der Nuklidverbindungen sind die Ursache für eine unterschiedliche Aufenthaltsdauer im Atemtrakt. Der Atemtrakt wird nach dem Modell der ICRP (siehe Abbildung 3.3.3) in drei verschiedene Kompartimente unterteilt:

- das Nasopharyngeale Kompartiment NP (Nasen-/Rachenraum bis zum Kehlkopf),
- das Tracheo-Bronchiale Kompartiment TB (Luftröhre einschließlich der Verzweigung und den endständigen Bronchioli)
- das Pulmonale Kompartiment P (Lungen mit den Alveolen).

In diesen drei Bereichen lagern sich Aerosole mit Korngrößen von 10 Mikrometer AMAD (medianer aerodynamischer Aktivitätsdurchmesser) bevorzugt im NP-Kompartiment ab, Aerosole mit Korngrößen von 1 Mikrometer AMAD können bis in den P-Bereich gelangen. Die Verteilung von Aerosolen mit unterschiedlicher Korngröße zeigt die Abbildung 3.3.4. Für alle Berechnungen der ICRP ist ein normierter Durchmesser von 1 Mikrometer AMAD benutzt worden, der in den meisten Fällen gegenüber üblichen Aerosolen mit Korngrößen von ca. 5 Mikrometer ein restriktives Ergebnis liefert.

Das in den drei Kompartimenten abgelagerte Aerosol unterliegt im Atemtrakt zwei verschiedenen Transportvorgängen. Der in den Körperflüssigkeiten leicht

transportierbare Anteil wird mit diesen in die Ablagerungsorgane gebracht. Durch den ständig ablaufenden Selbstreinigungsmechanismus des Atemtrakts, durch den ein mechanischer Abtransport durch Wirkung der Ciliarbewegungen des Flimmerepithels oder durch Phagocytose von Makrophagen erfolgt, werden die Aerosolpartikel in den Bereich des Kehlkopfs gebracht, verschluckt und im Stuhl ausgeschieden.

Ein bestimmter Anteil der abgelagerten Aerosolteilchen wird je nach chemischer Eigenschaft der Verbindung von den Körperflüssigkeiten aufgenommen und in Organe des Körpers transportiert. Die Geschwindigkeit, mit der dies erfolgt, ist abhängig von der Transportabilität dieser Verbindungen in den Körperflüssigkeiten. Die Geschwindigkeiten dieser Selbstreinigungsmechanismen und die Übergangsraten in die Körperflüssigkeiten beschreibt die Tabelle 3.3.1

Kompartiment	Transportweg	Verbindungs-klasse					
		D		W		Y	
		t_b	w	t_b	w	t_b	w
NP	a	0,01	0,5	0,01	0,1	0,01	0,01
	b	0,01	0,5	0,40	0,9	0,40	0,99
TB	c	0,01	0,95	0,01	0,5	0,01	0,01
	d	0,2	0,05	0,2	0,5	0,2	0,99
P	e	0,5	0,8	50	0,15	500	0,05
	f	-	-	1	0,4	1	0,4
	g	-	-	50	0,4	500	0,4
	h	0,5	0,2	50	0,05	500	0,15
Lymph.	i	0,5	1,0	50	1,0	1000	0,9
	j	-	-	-	-	∞	0,1

T_b : Biologische Halbwertszeit

Tab.: 3.3.1 Daten zum Lungenmodell der ICRP, Verteilung und Aufenthaltsdauer inhalierter Aerosole im Atemtrakt

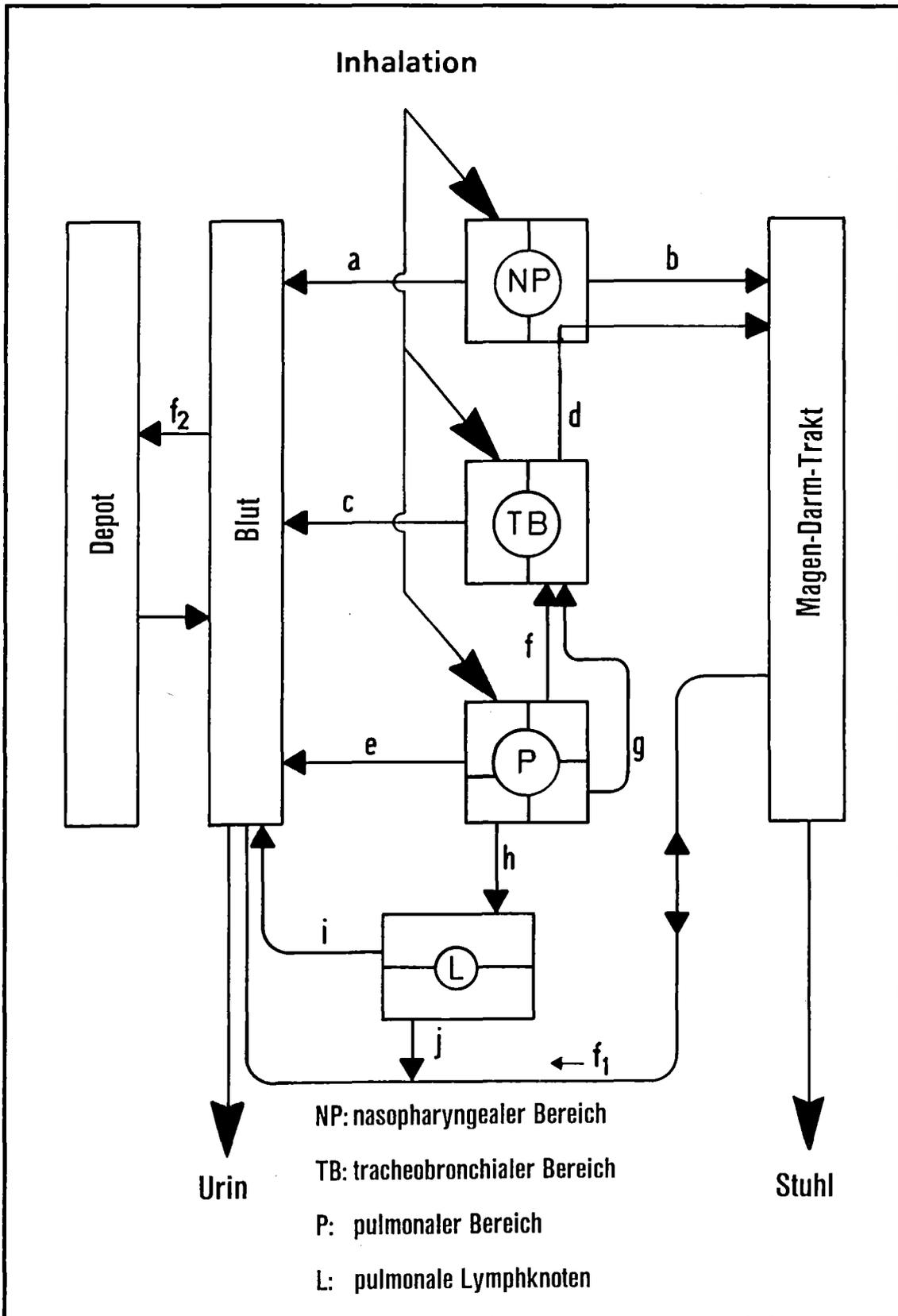


Abb. 3.3.3: Lungenmodell der ICRP [ICRP 79]

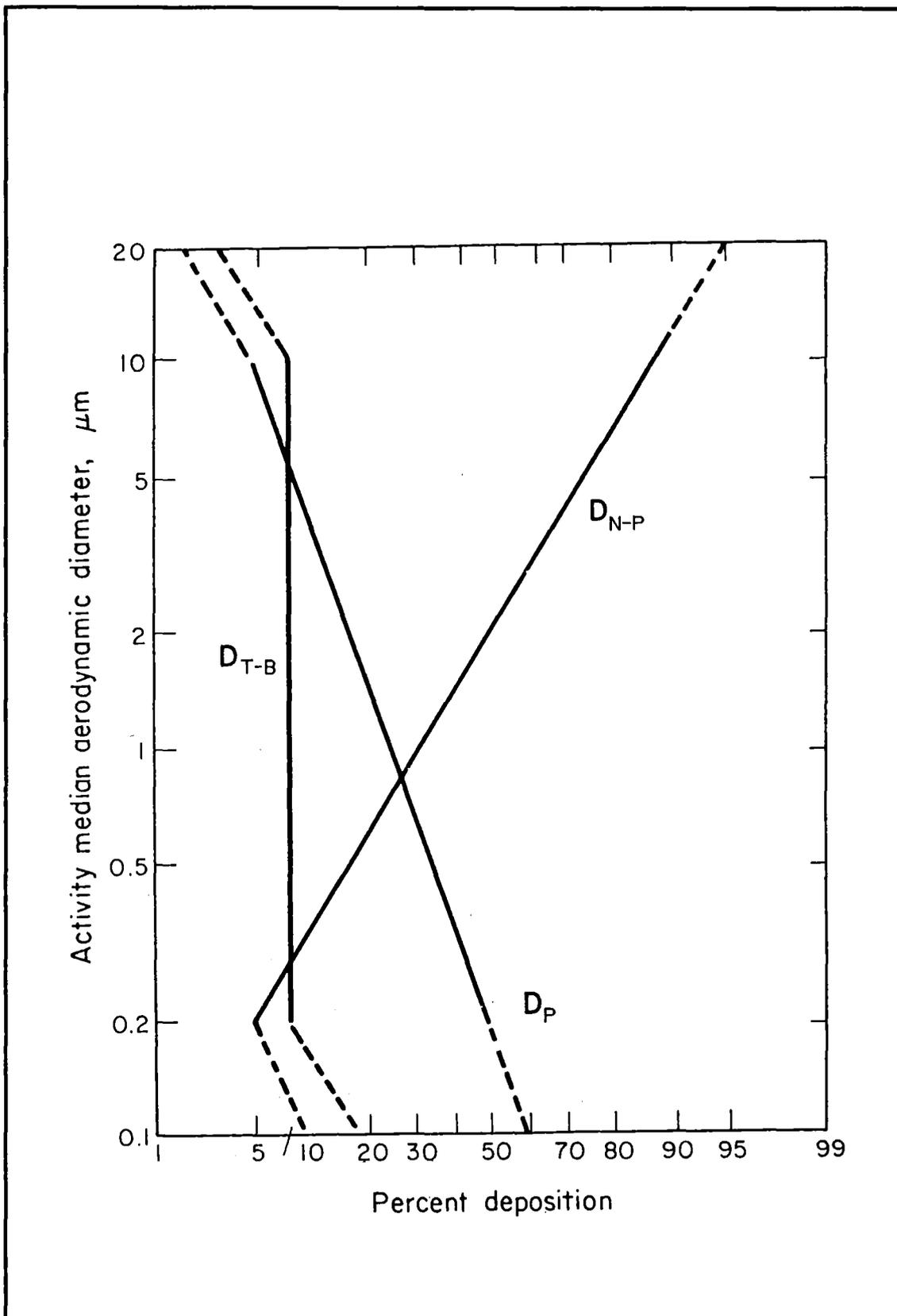


Abb. 3.3.4: Verteilung der Aerosolablagerungen in verschiedenen Kompartimenten des ICRP-Lungenmodells

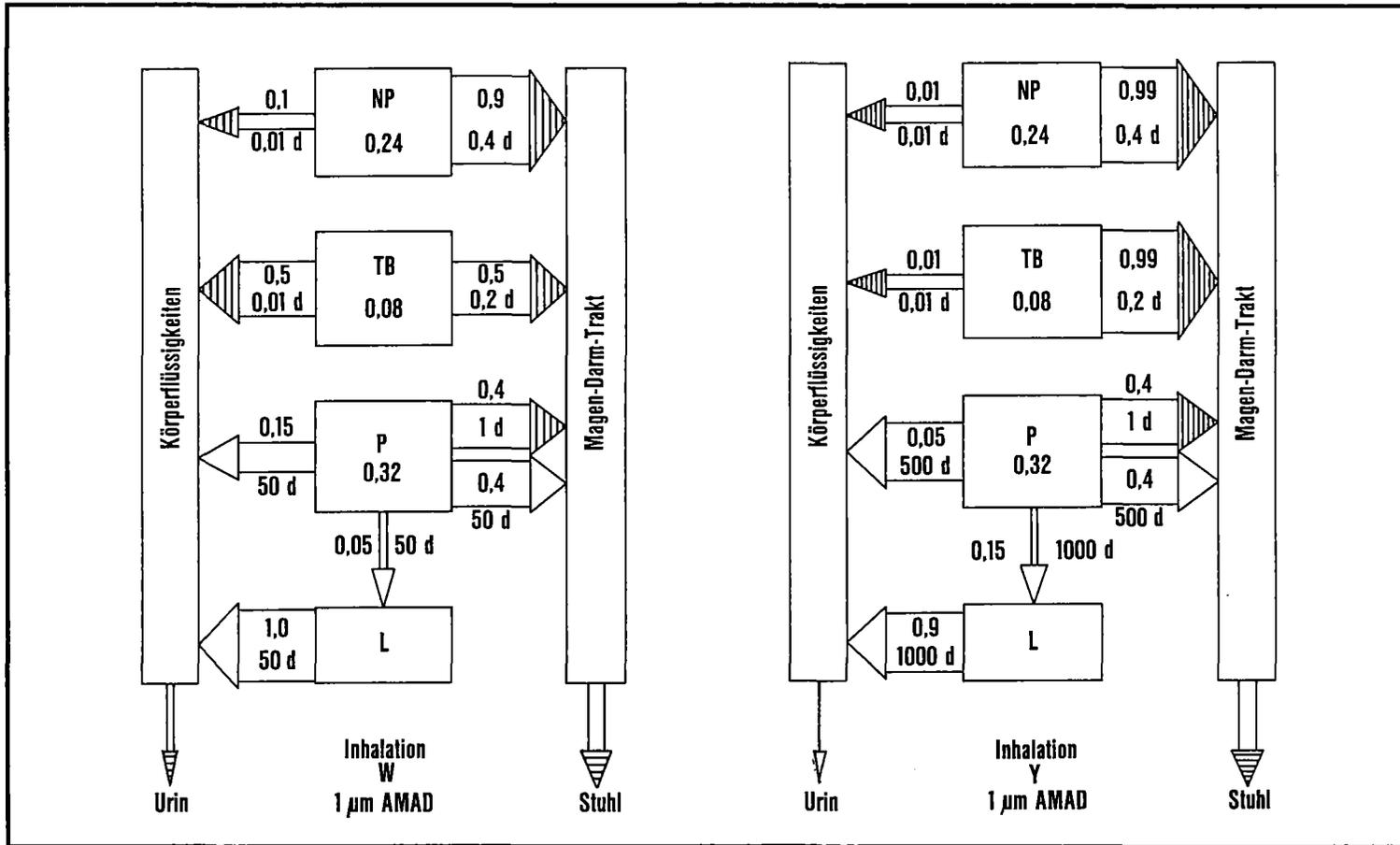


Abb. 3.3.5: Ablagerungs- und Ausscheidungsraten nach Plutoniuminhalation für die Lungenretentionsklassen W und Y

Als Maß für die Verweildauer im Atemtrakt hat die Arbeitsgruppe der ICRP die Verweildauer (effektive Halbwertszeit) der abgelagerten Aktivität im P-Kompartiment festgelegt. In der Praxis werden dabei die drei Werte von 0,5 Tagen (Klasse D), 50 Tagen (Klasse W) und 500 Tagen (Klasse Y) benutzt.

Die Verteilung der Radionuklidverbindung im Körper nach der Ablagerung im Atemtrakt wird mit den im Lungenmodell enthaltenen Daten (Anteil der Ablagerung, Anteil der Umlagerung und deren Geschwindigkeit) berechnet (s Tabelle 3.3.1). Als Dosis wird diejenige Organdosis angenommen, die sich für eine Zeit von 50 Jahren ergibt. Sie läßt sich aus dem Anteil, der von den Körperflüssigkeiten in diese Organe geht, berechnen (f_2 -Faktor).

Die Abbildung 3.3.5 zeigt schematisch die Ausscheidungsraten im Urin u. Stuhl nach einer Inhalation. Plutonium der Verbindungsklasse Y wird demnach nur zu einem sehr kleinen Anteil im Urin ausgeschieden, während die Ausscheidung im Stuhl sehr viel größer ist.

3.3.1.5.2 Ingestionsmodell

Die Ingestion von Radionuklidverbindungen wird von der ICRP mit dem Modell aus [Ev 66] beschrieben ist. Der Magen-Darm-Trakt wird dabei nach [ICRP 79] in vier Kompartimente unterteilt, die in der Abbildung 3.3.6 dargestellt sind.

Die Konstanten für die Verweildauer der Verbindungen im Magen-Darm-Trakt können aus dem f_1 -Faktor abgeleitet werden, der denjenigen Anteil des stabilen Elements darstellt, der in die Körperflüssigkeiten übergeht. Dieser Faktor ist in den Tabellen der ICRP für jedes Radionuklid aufgeführt [ICRP 79]. Zur Berechnung der Organdosen werden dann wie auch im Lungenmodell die Übergangsraten von den Körperflüssigkeiten in die Organe (f_2 -Faktor) benutzt. Wegen der geringen f_2 -Werte beim Plutonium sind die abgeleiteten Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr für Ingestion sehr hoch.

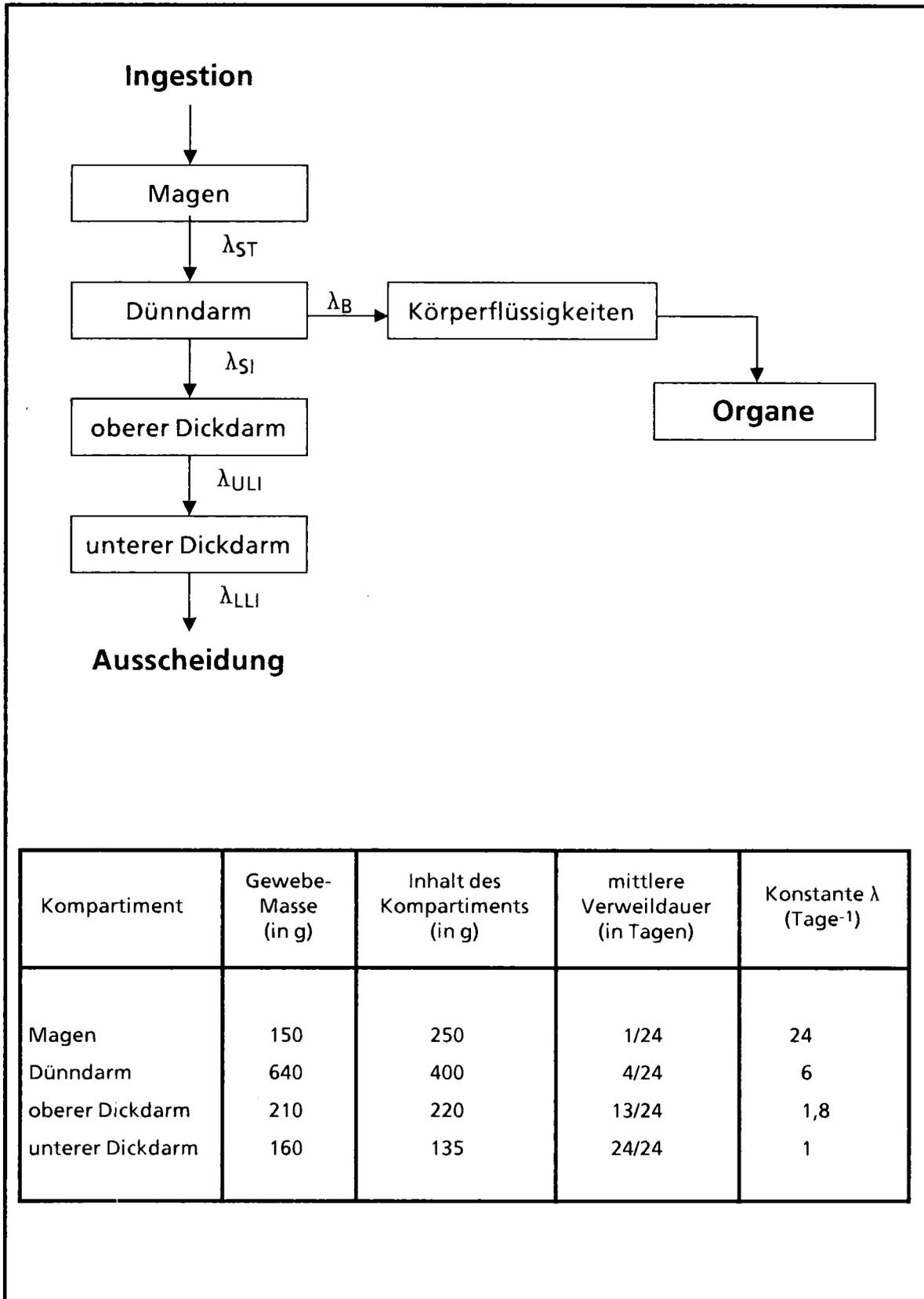


Abb. 3.3.6: Ingestionsmodell der ICRP

3.3.2 Allgemeines zur Inkorporationsüberwachung

Die Inkorporationsüberwachung durch Ausscheidungsanalysen wird mit zwei verschiedenen Zielen durchgeführt:

- regelmäßige Überwachung des Normalbetriebs,
- Messungen aus besonderem Anlaß bei besonderen Vorkommnissen zur Bestimmung der eventuell inkorporierten Aktivitätsmenge oder der Körperdosis.

Die regelmäßige Überwachung besteht in der täglichen Raumlufthüberwachung und monatlichen Urin- und Body-Counter-Messungen. Bei unauffälligem Verlauf der Überwachung (Meßwerte unterhalb der Schwellwerte) werden keine weiteren Maßnahmen ergriffen, die Ergebnisse werden in einer personenbezogenen Datei 30 Jahre lang aufbewahrt und zur Erfassung der Gesamtexposition (intern und extern) einer zentralen Dosisdatei übertragen.

Mitarbeiter, die mit Plutonium umgehen, werden entsprechend der Richtlinie [BMI 78] monatlich überwacht. Es wird das Verfahren der monatlichen Überwachung von einzelnen Referenzpersonen benutzt, das in [Di 86] beschrieben ist.

Besondere Vorkommnisse (erhöhte Raumlufkonzentrationen, größere Kontaminationen der Hände, Gesichtskontaminationen oder außergewöhnliche Ereignisse), bei denen der Verdacht einer Inkorporation besteht, werden durch "Messungen aus besonderem Anlaß" [BMI 78] untersucht. Diese bestehen darin, bei Verdacht einer Inhalation einen Nasen-/Rachen-Abstrich zu untersuchen, die Sammlung des gesamten Urins und Stuhls für die Dauer von drei Tagen zu veranlassen, wobei durch Sperrung einer weiteren Tätigkeit in Kontrollbereichen eine zusätzliche Inkorporation oder Kontamination vermieden wird, und die direkte Messung der Körperaktivität je nach dem betreffenden Nuklid im Ganzkörper- oder Lungenzähler vorzunehmen.

Bei Wundkontaminationen mit Plutonium und anderen Transuranelementen wird nach eventuell erfolgter Wundbehandlung neben Urinalysen auch eine Aufarbeitung von Gewebsexcidat und Blut zur Aktivitätsbestimmung vorgenommen.

Aus den Ergebnissen der Messungen aus besonderem Anlaß wird eine Abschätzung der Höhe der Zufuhr oder bei Wundkontamination der Höhe der resultierenden Körperdosis vorgenommen. Diese Werte werden mit den Grenzwerten der Strahlenschutzverordnung verglichen und dem Strahlenschutzbeauftragten und bei Überschreitung von Grenzwerten auch der zuständigen Behörde mitgeteilt.

Die Abschätzung der Zufuhr oder der Dosis erfolgt mit den jeweiligen Ausscheidungs- und Retentionsfunktionen aus den Ergebnissen der Ausscheidungsmessungen, wobei auf die Angaben der Internationalen Strahlenschutzkommission [ICRP 59, ICRP 68, ICRP 71, ICRP 79] und des Fachverbandes für Strahlenschutz [Gü 87] zurückgegriffen wird.

3.3.3 Bestimmung von Plutonium im biologischen Material

Es sind zahlreiche Analysenverfahren für Plutonium ausgearbeitet worden, von denen jedoch nicht alle zur Inkorporationsüberwachung herangezogen werden können [Schi 68]. Im einzelnen stehen folgende Verfahren zur Verfügung:

- kalorimetrische,
- gravimetrische (als PuO₂ aus Oxalat, Hydroxid, Oxinat),
- oxidimetrische (aufgrund des Redox-Potentials des Pu),
- colorimetrische (mit Arsenazo, Thorin etc.),
- spektroskopische (durch Emissionsanregung oder Röntgenfluoreszenz),
- polarographische,
- coulometrische,
- radiochemische.

Für den Plutoniumnachweis im Aktivitätsbereich von Millibecquerel sind nur die radiochemischen Verfahren, einschließlich der Aktivierungsanalyse, ausreichend empfindlich.

Zur Plutoniumabtrennung ist die Solventextraktion besonders günstig, da der Extraktionskoeffizient nach dem Nernst'schen Verteilungsgesetz unabhängig von der Konzentration ist und durch die Wahl geeigneter Extraktionsbedingungen die Abtrennung des Plutoniums von der störenden Matrix sehr gut ist. Nach

Entfernung der organischen Phase läßt sich unmittelbar ein Meßpräparat gewinnen, das durch α -Spektrometrie gemessen werden kann.

3.3.4 Messung von Plutonium in Ausscheidungen

3.3.4.1 Allgemeines

Bezugswert für die Inkorporationsüberwachung ist diejenige Aktivität, die im Körper gerade den Grenzwert der Körperdosis verursacht. Unter Berücksichtigung der Verteilung und Aufenthaltsdauer der Aktivität im Körper wird der "Grenzwert der Jahresaktivitätszufuhr" nach der StrlSchV als Bezugswert angenommen.

Voraussetzung für die Berechnung dieser Aktivität ist die Kenntnis des metabolischen Verhaltens der betreffenden Radionuklidverbindung im Körper, insbesondere der Ausscheidungsraten, mit denen eine im Körper abgelagerte Aktivität ausgeschieden wird. Diese sind für Plutonium durch Untersuchungen von Langham [La 50] mit Plutoniumcitrat bereits kurz nach der Entdeckung des Plutoniums ermittelt und für die ersten Inkorporationsüberwachungen benutzt worden. Aus den ersten Erfahrungen sind später auch Kenntnisse über das Verhalten anderer Plutoniumverbindungen erhalten worden [Be 64, Du 71, Le 87], mit denen ein Modell aufgestellt wurde [Mo 66], um Grenzwerte für die Inkorporationsüberwachung aufzustellen [ICRP 79].

Ausgangsdaten für die Inkorporationsüberwachung sind die gemessenen Aktivitäten in Urin und Stuhl sowie bei Zwischenfällen auch die Ergebnisse von Nasen-/Rachen-Abstrichen und Blutproben.

Die abgeleiteten Grenzwerte in den Ausscheidungen, bezogen auf die maximal zugelassene Körperbelastung, sind in den Veröffentlichungen der ICRP [ICRP 68, ICRP 71] für spezielle "investigation level" enthalten. Mit den Empfehlungen der ICRP in ihrer Publikation 30 wurden diese Werte durch [ICRP 86] ersetzt. Die Ausscheidungsraten in Urin und Stuhl nach Inhalation von Pu-Verbindungen verschiedener Aerosolgrößenverteilungen und Verbindungsklassen sind in [Gü 87] tabelliert.

3.3.4.2 Urin

Urinanalysen werden bei der Inkorporationsüberwachung am häufigsten herangezogen, weil die Probenahme einfach ist und keine zu große Belästigung des Betroffenen darstellt. Den Ergebnissen der Urinanalysen wird jedoch häufig eine falsche Interpretation unterlegt, weil die Ausscheidungsraten, die zur Anwendung kommen müssen, sich auf unterschiedliche Bezugsgrößen beziehen (maximal zulässige Körperbelastung oder Grenzwert der Jahresaktivitätszufuhr).

Eine Inkorporationsüberwachung auf Plutonium wurde bereits zum Zeitpunkt der Entdeckung des Plutoniums als notwendig erkannt. Grenzwerte der Aktivität im Körper waren zu dieser Zeit nur durch den Vergleich der Wirkung des Radiums mit dem des Plutoniums zu erhalten. Als Grenzwert wurde demnach zu dieser Zeit eine maximal zugelassene Körperbelastung von 40 nCi (1480 Bq) ermittelt [ICRP 59].

Bereits damals wurde nach geeigneten Methoden zum Nachweis von Plutonium im Körper gesucht, der in dem indirekten Nachweis von Plutonium in den Ausscheidungsprodukten gefunden wurde. Voraussetzung für die Anwendung dieser Methode war die Kenntnis des Verhaltens von Plutonium im menschlichen Körper. Zur Bestimmung der Ausscheidungsrate im Urin nach Aufnahme in den Körper wurden zur damaligen Zeit unter den herrschenden Kriegsbedingungen von Langham [La 50] Versuche an Freiwilligen (u. a. moribunde Krebspatienten) durchgeführt. Diese Versuche wurden nicht über längere Zeit fortgesetzt, boten aber einen ersten Anhalt für das bis dahin unbekannt Verhalten von Pu-Citrat im menschlichen Körper.

Entsprechend den Versuchsbedingungen Langhams sind die auf diese Weise ermittelten Ausscheidungsraten nur anwendbar bei Inkorporationen, die (wie bei Langham) durch intravenöse Applikation erfolgt sind. In der Praxis ist dies nur in den Fällen möglich, in denen eine Aufnahme über die Blutbahn erfolgt, z. B. bei Wundkontamination.

Diese Ausscheidungsraten beziehen sich auf die systemische Belastung an Plutonium (im Blut, in der Leber, in den Knochen und im retikulo-endothelialen System) und geben Ausscheidungsraten im Urin und Stuhl an, die einer Deposition entsprechen. Solange allein die Beurteilung dieser Deposition im Körper Aufgabe der Inkorporationsüberwachung war, waren auch Urin- und Stuhlanaly-

sen in Verbindung mit diesen Ausscheidungsraten geeignete Untersuchungsmaterialien.

Diese Ergebnisse sind nicht, wie bei oberflächlicher Betrachtung angenommen werden kann, die einzigen Erfahrungen am Menschen, sondern sind die ersten, die zur Verfügung standen aber aus militärischen Gründen anfangs geheimgehalten wurden. Sie konnten durch eine große Zahl weiterer Erkenntnisse bei Inkorporationen erweitert werden [Cl 82, Lö 83]. Aus diesen Erkenntnissen stammen erweiterte Ausscheidungsfunktionen von Beach und Dolphin [Be 64], Durbin [Du 71], Leggett [Le 87] und anderen, die diese Erfahrungen in die Ableitung erweiterter Ausscheidungsfunktionen einbezogen haben.

Da Plutoniumverbindungen von den Körperflüssigkeiten nicht oder nur in geringem Maße aufgenommen werden, ist auch die systemische Belastung und damit auch die Urin- und Stuhlausscheidung bezogen auf die Zufuhr klein. Im Fall von unlöslichen Plutoniumverbindungen kann sie so gering sein, daß ein Nachweis im Urin nicht möglich ist [Schi 88b]. Eine Inkorporationsüberwachung durch Urinalysen ist daher in diesen Fällen nur bei Zwischenfällen anwendbar.

Die Ausscheidungsfunktionen, die sich auf die Abschätzung der Zufuhr unter Benutzung der Grenzwerte der ICRP [ICRP 79] beziehen, sind in Form von Tabellen [Gü 87] dargestellt. Sie enthalten die täglichen und kumulierten Ausscheidungsraten im Urin und Stuhl für Plutoniumverbindungen der Klassen W und Y und für unterschiedliche Aerosolgrößen nach Inhalation.

Mit Hilfe dieser Ausscheidungsdaten läßt sich die Ausscheidung von Plutoniumverbindungen der Klasse W und Y bei Inhalation von 8 Bq Pu-239 (entsprechend 1/20 des Grenzwertes der Jahresaktivitätszufuhr von 160 Bq) darstellen (Abb. 3.3.7). Es ist zu erkennen, daß ein Nachweis von Plutonium bei Inhalation einer Aktivität unterhalb von 5 % des Grenzwertes der Jahresaktivitätszufuhr durch Urinalyse nicht möglich ist, wenn die Nachweisempfindlichkeit des Verfahrens bei 1,5 mBq Pu-239 liegt. Die Ausscheidung von Plutonium im Stuhl ist dagegen sehr viel leichter möglich und wird deshalb hauptsächlich für die Inkorporationsüberwachung herangezogen (Kapitel 3.3.4.3). Ein empfindlicherer Nachweis im Urin durch Ausscheidungsintensivierung mittels DTPA ist wegen des unbekanntem Faktors der Ausscheidungsintensivierung nicht ausreichend genau möglich.

Durch Urinanalysen kann jedoch eine geringe chronische Inkorporation, die über längere Zeit durch unbemerkte Inhalation erfolgte, nach einiger Zeit erkannt werden. Bei chronischer Inhalation nimmt die Ausscheidungsrate mit der Zeit zu, so daß eine Ausscheidung nach einiger Zeit im Urin festgestellt werden kann. Dies wird umso früher geschehen, je empfindlicher das Nachweisverfahren ist.

Bei einer täglichen Zufuhr von 0,6 Bq Pu/Tag (das entspricht einer Zufuhr von ca. 160 Bq/a) erhöht sich die Urinausscheidung in dem Maß, wie es die Abbildung 3.3.8 zeigt. Bei Zufuhr von Plutonium der Verbindungsklasse W kann die Zufuhr in Höhe des Jahresaktivitätszufuhrgrenzwertes der Strahlenschutzverordnung bei einer Nachweisgrenze von 1,5 mBq Pu-239/Probe somit noch nach 130 Tagen nachgewiesen werden. Für Aerosole mit größerer Korngrößenverteilung als 1 µm AMAD wird bei der Verbindungsklasse W dies früher, bei Verbindungsklasse Y später erreicht.

3.3.4.3 Stuhl

Die Plutoniummessung im Stuhl wird zu einer sehr empfindlichen Überwachung einer Inhalation herangezogen. Unmittelbar nach einer Zufuhr ist bei einer Nachweisgrenze von 1,5 mBq noch eine Aktivität von weniger als 0,01 % des Grenzwertes der Jahresaktivitätszufuhr erkennbar. Die Ausscheidung von Plutonium im Stuhl erfolgt auf zwei verschiedenen Wegen. Das in den Körperflüssigkeiten vorhandene Plutonium, das z. B. bei einer intravenösen Injektion (wie bei den Versuchen von Langham) vorhanden ist oder aus dem nach Inhalation in der Lunge abgelagerten Plutonium stammt, wird zu einem sehr geringen Anteil über die Galle im Stuhl ausgeschieden.

Nach einer Inhalation wird Plutonium jedoch schnell und zum größten Anteil durch mucociliaren Transport des Flimmerepithels ebenfalls im Stuhl ausgeschieden. Beide Wege überlagern sich, wobei bei einer Inhalation die Ausscheidungsraten so groß sind, daß die durch die Galle ausgeschiedenen Anteile nicht von dem aus dem Atemtrakt stammenden unterscheidbar sind. Eine Inkorporation durch Inhalation läßt sich wegen der schnellen und intensiven Lungen-clearance sehr empfindlich durch Stuhlanalysen feststellen. Dazu müssen Stuhlproben innerhalb der ersten Tage nach der Zufuhr gesammelt und gemessen werden.

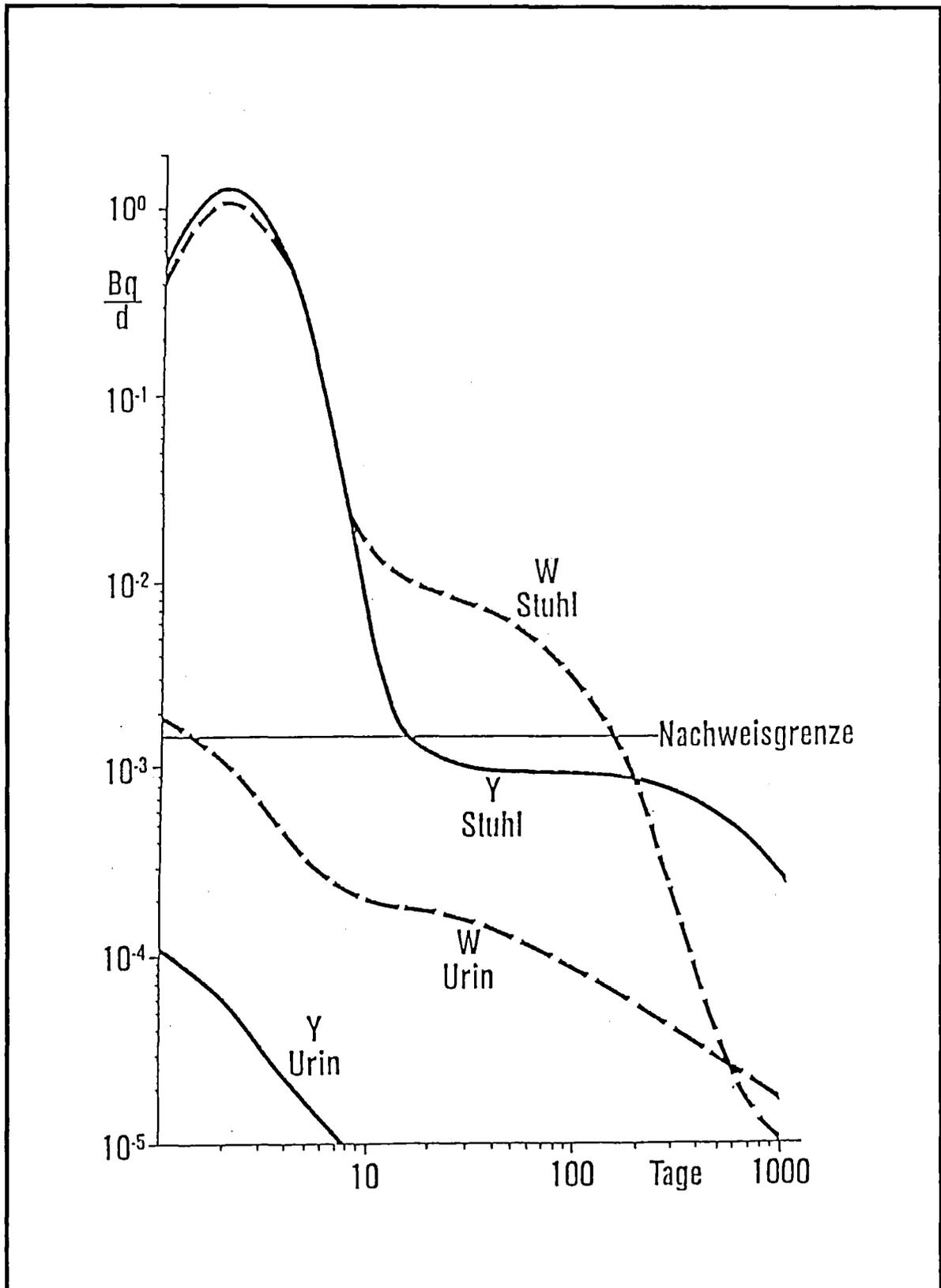


Abb. 3.3.7: Ausscheidung von Plutonium in Urin und Stuhl nach Inhalation von 8 Bq ($1 \mu\text{m}$ AMAD) für die Lungenretentionsklassen W und Y

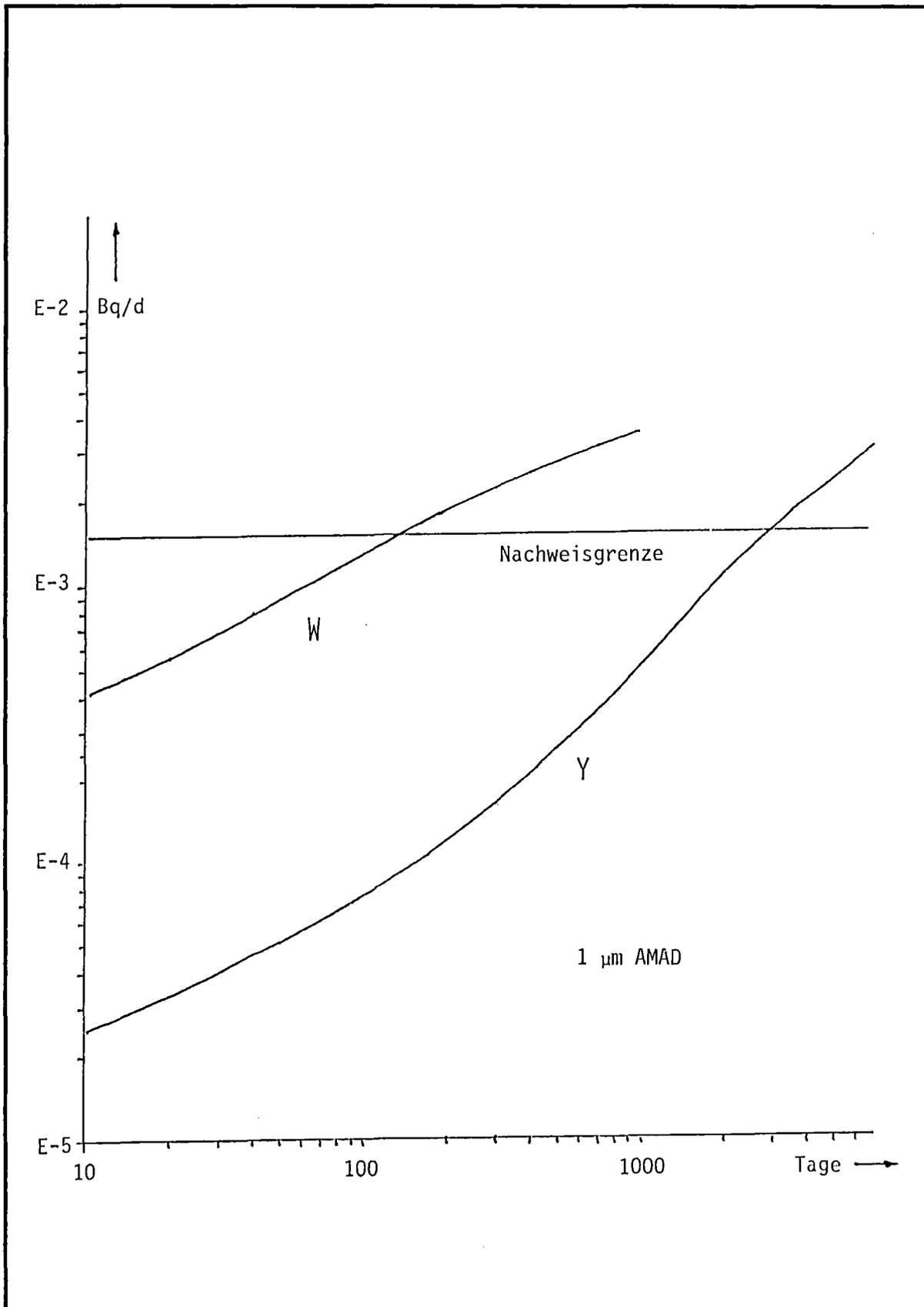


Abb. 3.3.8: Ausscheidung von Plutonium im Urin bei einer chronischen Zufuhr von 0,6 Bq pro Arbeitstag für die Lungenretentionsklassen W und Y

Die Ausscheidungsraten nach dem Lungenmodell der ICRP [ICRP 79] sind in [Gü 87] tabellarisch zusammengefaßt. Nach einer Zufuhr von 8 Bq Pu-239 durch Inhalation wird innerhalb der ersten Tage mehr als 1 Bq/Tag wieder im Stuhl ausgeschieden. Die Ausscheidungsraten sind aus der Abbildung 3.3.7 ersichtlich. Bei einer Nachweisgrenze von 1,5 mBq/Probe kann somit eine solche Zufuhr noch nach 10 bis 100 Tagen (je nach chemischer Löslichkeitsklasse W oder Y) durch Stuhlanalysen ermittelt werden. Unmittelbar nach der Zufuhr ist bei einer Nachweisgrenze von 1,5 mBq noch eine Aktivität in Höhe von weniger als 0,01 % der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr erkennbar.

Zur Überwachung wird bei Verdacht einer Inhalation sofort für die drei folgenden Tage die Sammlung des gesamten Stuhlgangs angeordnet. Aus dem Ergebnis der Analysen wird unter Benutzung der Modelle der ICRP die Höhe der Zufuhr ermittelt.

Mit diesem Verfahren wäre es prinzipiell auch möglich, bei Personen der Bevölkerung eine einmalige Zufuhr in Höhe des Grenzwertes der Jahresaktivitätszufuhr sofort nach einer Inhalation durch Stuhlanalysen nachzuweisen. Dieser Nachweis wird jedoch ständig und sehr viel effektiver durch Überwachung der Abluft plutoniumemittierender Anlagen durchgeführt.

Die Ermittlung der Zufuhr aus den Ausscheidungen wird jedoch mit zunehmender Zeit nach der Zufuhr unsicherer, weil durch die notwendig werdende Extrapolation auf einen meist unbekanntem Inkorporationszeitpunkt sehr große Unterschiede auftreten können. Aus diesem Grund werden bei der Inkorporationsüberwachung in Verdachtsfällen sofortige Untersuchungen eingeleitet, um diese Fehler zu verringern.

Durch Plausibilitätsbetrachtungen beim Vergleich der Meßergebnisse der verschiedenen Verfahren untereinander (Urinanalysen, Luftmessungen und Direktmessungen, siehe Kap. 3.4) können jedoch diese Fehler eingegrenzt werden. Es sind deshalb alle Meßergebnisse aller in der Praxis benutzten Überwachungsmethoden heranzuziehen. Eine Bewertung eines Einzelwerts aus dem Zusammenhang heraus kann zu Fehlinterpretationen führen. Die bewußte Benutzung eines Einzelwerts nur einer bestimmten Überwachungsmethode bietet die Möglichkeit einer gezielten Über- oder Unterschätzung, ist wissenschaftlich nicht vertretbar und wird bei der Inkorporationsüberwachung im Kernforschungszentrum Karlsruhe nicht benutzt. Bei Zwischenfällen werden zur Abklärung die-

ser Diskrepanzen Verlaufsmessungen über längere Zeit durchgeführt, die eine zunehmende Sicherheit der Abschätzung bieten.

Die Überwachung der Raumluft löst bei Überschreitung von Schwellenwerten die Überwachung durch Stuhlanalysen aus. Die Korrelation zwischen Luftmessungen und der in Stuhlproben festgestellten Aktivitäten wurde im Kernforschungszentrum Karlsruhe in einer Pilotstudie untersucht [Di 86]. Bei einem Personenkollektiv von ca. 100 Personen in der Hauptabteilung Dekontaminationsbetriebe im Kernforschungszentrum Karlsruhe wurde ein mehrjähriges Untersuchungsprogramm durchgeführt, um eine sinnvolle und effektive Überwachung der dort tätigen Personen zu erreichen. Es bestand darin, die Luftkonzentration an den exponierten Arbeitsstellen zu messen, eine Referenzpersonengruppe im monatlichen Wechsel durch Urin- und Stuhlanalysen zu überwachen und gleichzeitig die Ganzkörperaktivität mit einem Ganzkörperzähler zu bestimmen.

Die Ergebnisse wurden unter Benutzung des Lungenmodells der ICRP ausgewertet. Es zeigte sich, daß die Inkorporationsüberwachung durch Stuhlanalysen eine gute Korrelation zur Raumluftaktivität gab. Von einer routinemäßigen Stuhlüberwachung wurde Abstand genommen, da die Raumluftüberwachung als Screening-Test mit geringerem Aufwand den gleichen Zweck erfüllt. Die intensive Überwachung durch Stuhlanalysen nach Überschreitung der Schwellenwerte hat bei allen bisher untersuchten Personen eine Bestätigung der Ergebnisse der Pilotstudie ergeben.

3.3.4.4 Nasenabstriche

Eine Inhalation von aerosolgetragendem Plutonium kann durch Nasen-/Rachenabstriche bereits zu einem frühen Zeitpunkt festgestellt werden. Eine Quantifizierung ist jedoch wegen der nicht definierbaren Probenahme und der bei Mund- und Nasenatmern unterschiedlichen Ablagerungsbedingungen nicht möglich. Sie bieten jedoch die Möglichkeit, bei einer unfallbedingten Inhalation größerer Plutoniummengen eine schnelle Aussage darüber zu machen, in welchen Größenordnungen diese liegt. In der Praxis sind durch nachfolgende Urin- und Stuhlanalysen keine korrespondierenden Zufuhrwerte zu den Meßwerten des Nasen-/Rachenabstrichs festgestellt worden [Doe 85]. Es würden zum Teil

auch bei größeren Aktivitäten im Nasenabstrich keine dementsprechend erwarteten Zufuhrwerte durch Stuhlanalysen ermittelt und auch bei höheren Luftaktivitäten keine höheren Werte im Nasenabstrich gefunden.

Die Auswertung der Nasenabstriche ist nach der anfänglichen Direktmessung, bei der im feuchten Material große Absorptionsverluste der α -Strahlung auftreten können, erst nach folgender chemischer Aufarbeitung des Nasen-/Rachenabstrichs und geeigneter Probenpräparation möglich.

3.3.5 Nachweisverfahren

Ein anfänglich benutztes Analysenverfahren [He 65] ging von einer Wismutphosphatfällung aus, mit dem das dreiwertige Plutonium direkt aus dem Urin ausgefällt und dann abzentrifugiert wird. Nach dem Lösen des Phosphatniederschlags in Salzsäure wurde Eisen als Träger zugesetzt und eine Eisen-Kupferonafällung angeschlossen, mit dem das Plutonium mitgefällt wurde. Mit Hilfe einer Chloroformextraktion erfolgte dann die Abtrennung des Plutoniums von anderen Spurenelementen zusammen mit dem Eisen. Nachdem das Eisen durch eine Ätherextraktion wieder entfernt wurde, konnte das dann trägerfrei vorliegende Plutonium elektrolytisch auf Stahlplättchen abgeschieden und gemessen werden. Als Nachweisgrenze ergab sich eine Pu-239-Aktivität von ca. 20 mBq.

Das Verfahren hat den Vorteil, daß mit relativ einfachen Hilfsmitteln eine hinreichend empfindliche Plutoniumanalyse möglich ist. Ein Nachteil ist, daß das Verfahren für Stuhlproben nicht anwendbar ist. Nachteilig ist auch, daß komplexgebundenes Plutonium nicht mitfällt und mehrere Arbeitsgänge mit Urin ausgeführt werden müssen, bevor die Analyselösung geruchsfrei geworden ist.

Es wurde daher später eine Methode zum Nachweis von Plutonium gefunden, die folgende Forderungen erfüllt:

- hohe chemische Ausbeute auch für komplexgebundenes Plutonium,
- Nachweis von Plutonium in Blut, Stuhl und anderen biologischen Materialien nach ein und demselben Verfahren,
- Nachweis von Plutonium neben Americium und anderen Transplutoniumelementen in ein und derselben Probe,

- Arbeitsbedingungen, durch welche die Geruchsbelästigung beim Umgang mit Urin, Stuhl usw. weitgehend eingeschränkt wird.

Das entwickelte Verfahren unterscheidet sich von dem früher benutzten durch die Art der Entfernung der Matrix. Die bei der Analyse störenden Substanzen wie Chelate des komplexgebundenen Plutoniums, Hämoglobin aus dem Blut, nicht verdaute Zellulose, nicht resorbierte Verdauungsprodukte und Mikroorganismen im Stuhl und Zellulose von Nasenabstrichen bestehen alle aus organischem Material und können durch Veraschen verbrannt werden.

Die Veraschung muß bei Temperaturen unter 500 °C ausgeführt werden, da sonst Plutoniumverluste unvermeidlich sind. Bei dieser Temperatur ist jedoch die Verbrennung unvollständig, so daß Schwelprodukte mit einem äußerst penetranten Geruch auftreten. Daher ist eine Zerstörung der Schwelprodukte bei der Veraschung unerläßlich. Durch katalytische Nachverbrennung der Schwelgase mit Luft an Platinkatalysatoren bei 300 °C wird dies zufriedenstellend erreicht (Abb. 3.3.9). Die veraschten Proben werden dann mit geeigneten Methoden so aufgearbeitet, daß die Plutoniumbestimmung für alle Arten von Proben nach ein und demselben Verfahren ausgeführt werden kann.

Das Plutonium wurde von den anorganischen Bestandteilen durch Extraktion des Plutonium-Kupferronatkomplexes mit Chloroform abgetrennt. Als nichtisotoper Träger wurde Eisen zugesetzt. Zur trägerfreien Präparierung des Plutoniums wurde das Eisen mit Diisopropyläther extrahiert und das Plutonium auf Stahlplättchen elektrolytisch abgeschieden und gemessen [Schi 68]. Eine Verbesserung des Nachweisverfahrens konnte durch Wahl eines geeigneteren Extraktionsmittels erreicht werden, mit dem auch der Nachweis anderer Nuklide (Np, Am, Cm und Cf) ermöglicht wird.

Mit einem kombinierten Extraktionsverfahren unter Benutzung von Trioctylamin (TOA) und Trioctylphosphinoxid (TOPO) können die Nuklide getrennt und einzeln bestimmt werden. Die Abtrennung der oben aufgeführten Nuklide kann dabei unter Berücksichtigung ihrer chemischen Eigenschaften vorgenommen werden [Wi 82]. Im Prinzip ist es möglich, alle fünf Radionuklide mit Trioctylphosphinoxid (TOPO) zu bestimmen. Eine Schwierigkeit besteht darin, daß Np und Pu im Gegensatz zu Am, Cm und Cf nicht aus der organischen Phase rückextrahierbar sind.

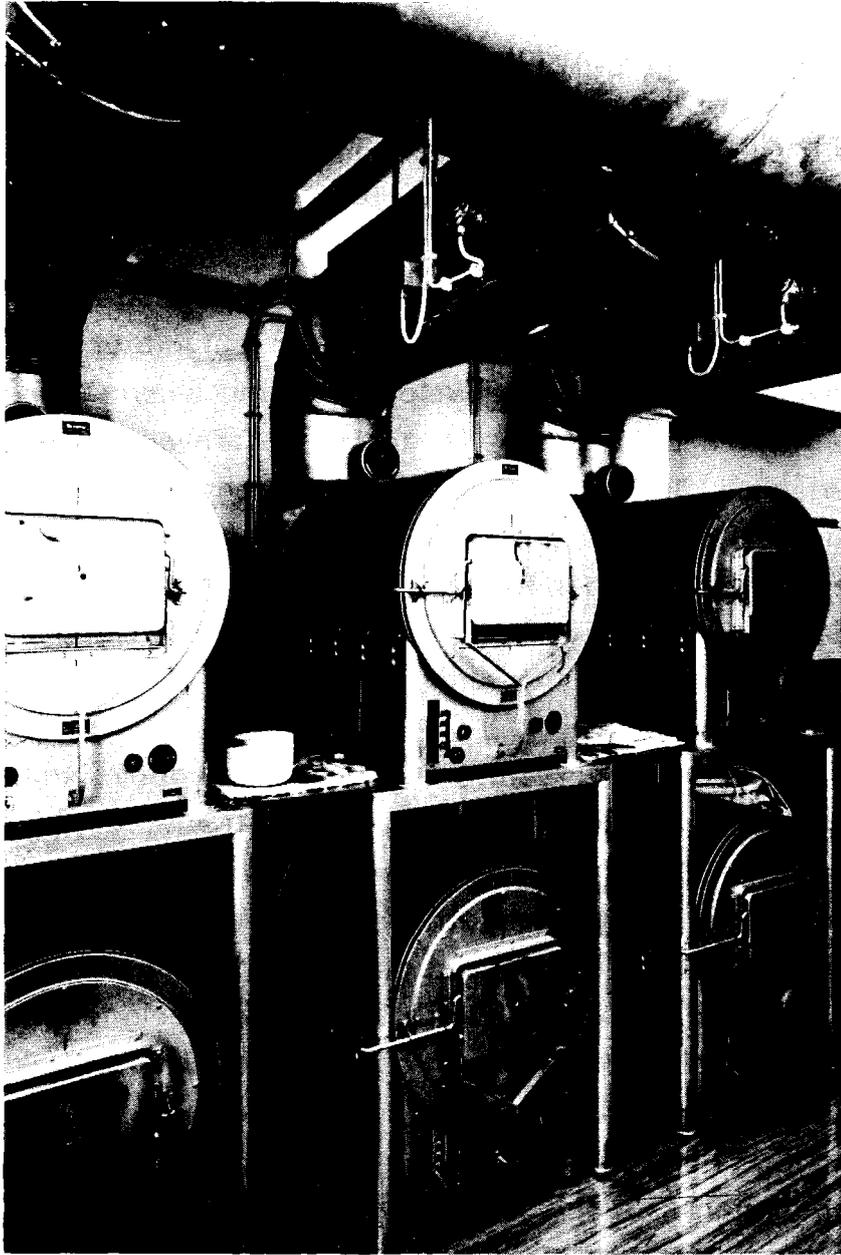


Abb. 3.3.9: Veraschungsöfen mit katalytischer Nachverbrennung der Schwelgase

Zusätzlich ist zu beachten, daß eine Qualitätskontrolle der Analysen durch Verwendung von Leitisotopen zur Ausbeutebestimmung durchzuführen ist. Bei der anschließenden α -Spektrometrie sind die α -Energien der zu bestimmenden Nuklide und der Leitisotope zu beachten. So stören sich bei der α -Spektrometrie aufgrund ihrer ähnlichen α -Energien die Nuklide Pu-238 und Am-241, Pu-236 und Cm-244 Cm-242 und Cf-252, Am-243 und Pu-239. Die Nachweisgrenze konnte mit diesem Verfahren auf 1,5 mBq Pu-239 gesenkt werden.

3.3.6 Gemeinsamer Trennungsgang

Eine Trennung der störenden Nuklide voneinander ist nur möglich, indem zwei verschiedene Extraktionsmittel verwendet werden und zwar Trioctylamin (TOA) und Trioctylphosphinoxid (TOPO).

Die unterschiedlichen Ausgangsmaterialien (Urin, Stuhl, Gewebe und Nasenabstriche) werden so aufgearbeitet, daß für alle der gleiche Trennungsgang benutzt werden kann.

Flüssige Proben werden eingedampft und das verbleibende organische Material wird durch trockene Veraschung entfernt. Wichtig ist, daß die Asche in Salpetersäure leicht löslich ist. Um dies zu erreichen, darf die Veraschungstemperatur von 500 °C nicht überschritten werden. Es entstehen sonst unlösliche Verbindungen, die ohne Aufschluß nicht in Lösung zu bringen sind.

Um bei Stuhlproben eine rein anorganische Asche zu erhalten, muß die Probe nach dem Veraschen mehrfach mit HNO₃ eingedampft und mehrmals geglüht werden. Das gleiche gilt für Gewebeproben und in besonderem Maße auch für Blutproben, bei denen der hohe Eisenanteil zwar stört, aber den Analysengang nicht wesentlich beeinflusst.

Bei Nasenabstrichen ist ein unlöslicher Rückstand bei Watteproben für den Nachweis sehr störend. Für Nasenabstriche wird daher nur reine Mullgaze verwendet, die sich rückstandsfrei aufarbeiten läßt. Dies ist erforderlich, weil Nasenabstriche nicht dem gesamten Trennungsgang unterworfen werden, sondern nur durch Veraschen und Elektrolyse aufgearbeitet werden. In diesem Fall würde eine Flächenbelegung durch unlösliche Reste die α -Spektrometrie verschlechtern.

Die Abtrennung der einzelnen Nuklide erfolgt durch Flüssigextraktionsverfahren, die mit einfachem apparativem Aufwand anwendbar sind. Die Extraktionsmittel Trioctylamin und Trioctylphosphinoxid erwiesen sich für unsere Zwecke als besonders geeignet. Die Extraktionskoeffizienten (siehe Tabelle 3.3.1) sind bei allen aufgeführten Nukliden sowohl für die Extraktion als auch für die Rückextraktion günstig und ergeben eine ausreichend gute Abtrennung.

	Extraktionskoeffizient	
	bei TOA-Extraktion (4 M HNO ₃)	bei TOPO-Extraktion (0,1 M HNO ₃)
Np (IV)	90	100
Pu (IV)	250	500
Pu (III)	0,07	
Am (III)	} < 10 ⁻³	} 20
Cm (III)		
Cf (III)		

Tab. 3.3.1: Extraktionskoeffizienten für Np, Pu, Am, Cm und Cf

Das Extraktionsverfahren wurde unter dem Gesichtspunkt ausgewählt, daß sowohl eine exakte und empfindliche Messung der α -Aktivität im low-level-Bereich als auch ein Zugriff für eine schnellere Messung bei höheren Aktivitäten bei Zwischenfällen möglich wird. Die Anwendung der Flüssigextraktion hat den Vorteil, daß bei Zwischenfällen ein Aliquot des Extraktionsmittels in einem Flüssigzintillationszähler sofort ohne weitere Aufarbeitung gemessen werden kann. Auf diese Weise ist eine schnellere Messung möglich, die durch Ionenaustauschverfahren nicht in gleicher Weise anwendbar ist.

Zur Bestimmung der chemischen Ausbeute werden die Proben vor der Verarbeitung jeweils mit Leitisotopen versetzt. Für Pu wird Pu-236, für Am, Cm und Cf wahlweise Am-243, Cm-242 oder Cm-244 verwendet. Für Np steht kein Leitisotop zur Verfügung. Stattdessen wird die Ausbeute von 60 % eingesetzt, die sich bei Zugabe von Np-237 bei einer Serie von Kontrollanalysen ergeben hat.

Die Extraktion der Radionuklide wird gruppenweise mit Trioctylamin (TOA) in Toluol und Trioctylphosphinoxid (TOPO) in Cyclohexan durchgeführt. Trioctyla-

min extrahiert nur vierwertige Transurane, so daß dadurch eine Abtrennung des Np und Pu von Am, Cm und Cf möglich ist. Durch Veränderung der Wertigkeit kann eine sukzessive Abtrennung von Np und Pu gegenüber den anderen Transuranen erreicht werden.

Durch Reduktion mit Eisensulfamat wird das Np in den vierwertigen Zustand, Pu dagegen in den dreiwertigen Zustand überführt. In dieser Form ist Np mit Trioctylamin extrahierbar, das Pu dagegen nicht. Nach Extraktion des Np kann das Pu mit Nitrit wieder in die vierwertige Stufe oxidiert und dann mit Trioctylamin extrahiert werden. Das Pu und Np wird aus der organischen Phase mit 0,2 M Schwefelsäure rückextrahiert.

Nach der Extraktion wird die wäßrige Phase, in der Am, Cm und Cf enthalten sind, bis zur Trockne eingedampft und auf pH 1 eingestellt. Die Abtrennung erfolgt mit Trioctylphosphinoxid (10 %ig in Cyclohexan). Aus der organischen Phase werden Am, Cm und Cf mit Salzsäure (8 M) in die wäßrige Phase rückextrahiert.

Die abgetrennten Radionuklide werden dann elektrolytisch auf Edelstahlplättchen abgeschieden. Dazu werden die wäßrigen Phasen eingedampft und auf eine bestimmte Elektrolytkonzentration eingestellt. Die elektrolytische Abscheidung ist nach zwei Stunden bei einer Stromstärke von 400 mA quantitativ.

Die Messung erfolgt mit einem α -Spektrometer, wobei das Auflösungsvermögen des Detektors besser sein muß als 50 keV, um eine Unterscheidung der verschiedenen α -Energien zu ermöglichen. Der Zählwirkungsgrad liegt zwischen 30 und 35 % für Halbleiterdetektoren mit einer Fläche von 300 mm². Die chemische Ausbeute beträgt 70 ± 15 % und der Nulleffekt der Meßanordnung liegt für den Energiebereich von 4,0 bis 6,0 MeV bei 5 bis 15 Imp/15 Stunden. Damit ist eine Nachweisgrenze von 1,5 mBq/Probe statistisch signifikant zu erreichen [Wi 82].

Das Schema des Verfahrens ist aus Abbildung 3.3.10 ersichtlich.

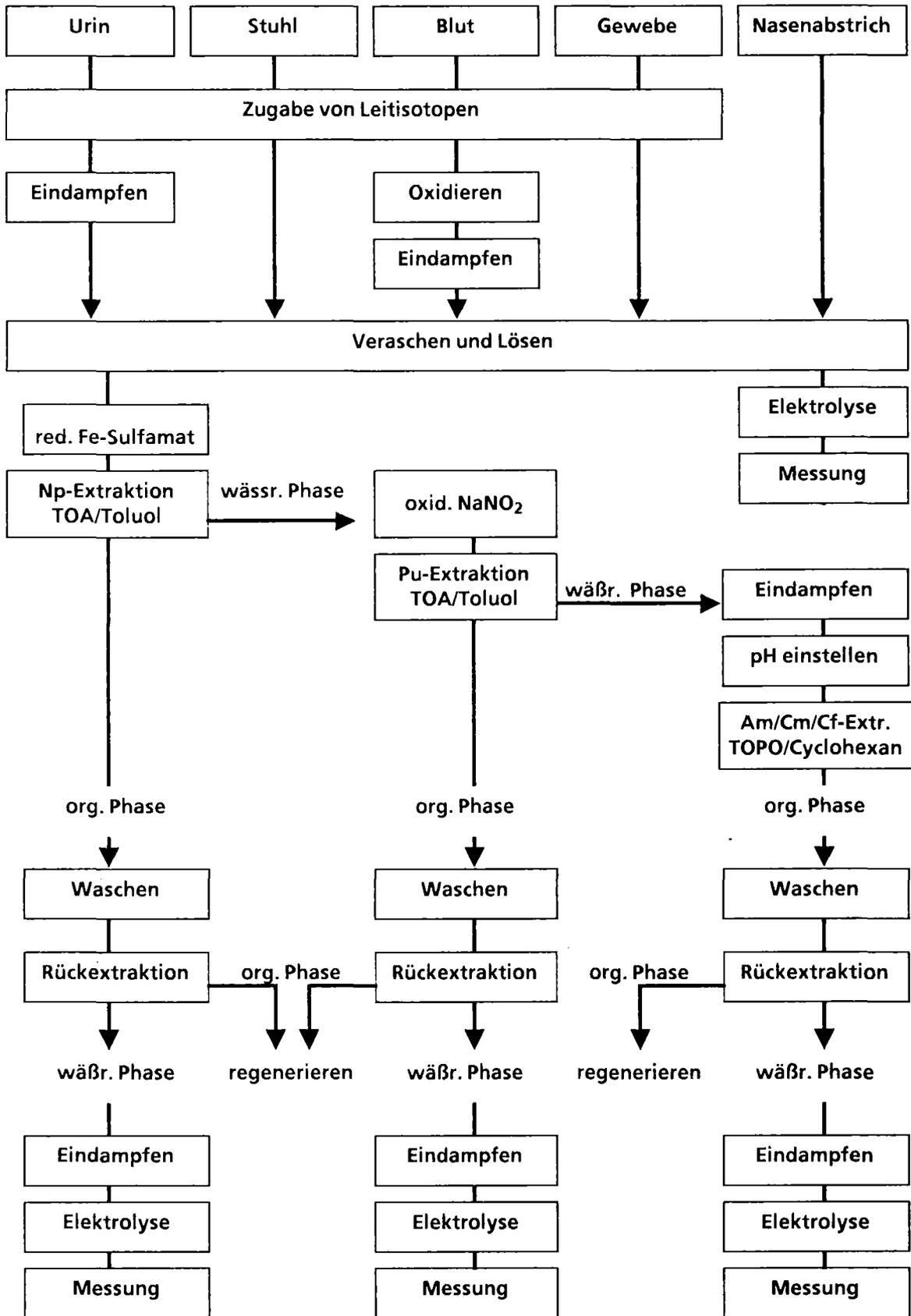


Abb. 3.3.10: Ablaufschema des Trennungsgangs

3.3.7 Durchführung der Plutoniumanalysen

3.3.7.1 Vorbereitung der Analysenproben

Urinproben werden mit ca. 100 ml Salpetersäure (konz.) in Quarzschalen von etwa 1,4 l Inhalt auf Heizstrahlern eingedampft. Um Verluste durch Übersäumen zu vermeiden, werden einige Tropfen Octylalkohol zugegeben. Die Proben werden dann während 60 Minuten bei 480 °C verascht. Der Rückstand wird mit ca. 130 ml Salpetersäure (4 M) aufgenommen und 15 Min. lang zum Sieden erhitzt.

Stuhlproben werden mit dem Sammelbehälter (Polyethylen) in Quarzschalen bei 500 °C verascht. Der Rückstand wird zweimal mit ca. 100 ml Salpetersäure (konz.) zur Trockne eingedampft und erneut geblüht. Nach dem Abkühlen wird der Rückstand mit Salpetersäure (4 M) gelöst und weiterverarbeitet.

Blutproben werden im Becherglas mit 50 bis 100 ml Salpetersäure (konz.) versetzt, vorsichtig eingedampft und bei 500 °C verascht. Der Rückstand wird mehrmals mit Salpetersäure (konz.) aufgekocht und bis zur Trockne eingedampft, bis der Kohlenstoff entfernt ist.

Mullgaze von Nasen- und Rachenabstrichen wird vom Halter gestreift und in einer Porzellanschale bei 500 °C verascht. Der Rückstand wird mit einigen Tropfen Salpetersäure (konz.) und Wasserstoffsuperoxid (30 %ig) oxydiert, bis zur Trockne eingedampft und nach 3.3.7.3 weiterverarbeitet.

3.3.7.2 Analysengang von Plutonium für Urinproben

- Den 24-h-Urin in einer Quarzschale mit einer bekannten Menge Pu-236, einigen Tropfen Octylalkohol und ca. 100 ml HNO₃ (konz.) versetzen und langsam zur Trockne eindampfen.
- Rückstand bei 480 °C ca. eine Stunde lang glühen.
- Rückstand in 130 ml HNO₃ (4 M) lösen, Schale mit einem Uhrglas abdecken, kurz aufkochen und zehn Minuten bei ca. 80 bis 90 °C halten.
- Auf Zimmertemperatur abkühlen lassen.
- Die Lösung in einen 250-ml-Schütteltrichter überführen, Schale mit 50 ml HNO₃ (4 M) nachspülen.

- 2 ml NaNO_2 -Lösung (5 M = ca. 35 g/100 ml) zugeben, zwei bis drei Minuten stehen lassen.
- 50 ml TOA-Lösung (10 %ig in Toluol) dazugeben, fünf Minuten schütteln.
- Phasen absitzen lassen.
- Phasen trennen, wäßrige Phase verwerfen.
- Zweimal mit 50 ml HNO_3 (4 M) waschen, je ca. eine Minute schütteln, absitzen lassen, Waschwasser jeweils verwerfen.
- Mit 40 ml H_2SO_4 (0,2 M) rückextrahieren, fünf Minuten schütteln.
- Absitzen lassen, Phasen trennen und organische Phase zur Regeneration sammeln.
- Die anorganische Schwefelsäure-Phase mit Diisopropyläther kurz schütteln.
- Absitzen lassen, wäßrige Phase abtrennen und bis zur Trockne eindampfen.
- Mit 1 ml HNO_3 versetzen und erneut zur Trockne eindampfen.
- 0,3 ml H_2SO_4 (konz.) zugeben, erhitzen bis zur Bildung von SO_3 -Nebeln, abkühlen lassen.
- Portionsweise mit insgesamt 5 ml destilliertem Wasser in eine vorbereitete Elektrolysezelle überführen.
- Unter Verwendung von Methylrot als Indikator pH-Wert mit einigen Tropfen NH_4OH (konz.) auf Farbumschlag von rot nach gelb, anschließend mit H_2SO_4 (1,5 M) auf Farbumschlag rot einstellen.
- Elektrolyse auf Edelstahlplättchen von 25 mm Durchmesser kathodisch zwei Stunden bei 400 mA.
- 2 ml NH_4OH (konz.) zugeben, Zelle entleeren, Strom abschalten.
- Messen der α -Aktivität mit 500 bis 1000 Minuten Meßzeit und Berechnung der Aktivität.

3.3.7.3 Elektrolytische Abscheidung des Plutoniums

Die Abscheidung des Pu erfolgt in einer Elektrolysezelle, die aus einem Plexiglas-körper mit einer konisch erweiterten Öffnung und einer abschraubbaren Bodenplatte aus Edelstahl besteht (siehe Abbildung 3.3.11). Mit der Bodenplatte wird von unten ein Stahlplättchen (25 mm Durchmesser), das als Präparatträger dient, gegen einen Gummidichtring gepreßt.

An die Bodenplatte, mit der das Stahlplättchen leitend verbunden ist, wird der Minuspol einer Gleichspannungsquelle von 10 V angelegt, als Anode dient ein in

die Lösung eintauchender Platinstreifen mit einer effektiven Fläche von 2 cm². Die Stahlkathode hat einen Durchmesser von 13 mm.

Ab einer Stromdichte von 0,3 A/cm² ist die elektrolytische Wasserzersetzung so stark, daß ein Rühren der Elektrolytlösung entbehrlich wird. Eine quantitative Abscheidung ist nach zwei Stunden erreicht. Die Elektrolysezelle muß gut abgedeckt werden, damit keine großen Konzentrationsänderungen eintreten.

3.3.7.4 Aktivitätsmessung

Die Meßpräparate, auf denen das Plutonium in trägerfreier Form abgeschieden ist, werden mit einem α -empfindlichen Halbleiterdetektor mit einer effektiven Fläche von 300 mm² gemessen. Der Abstand der Proben zum Detektor ist durch die Konstruktion des Probenhalters mit ca. 2 mm vorgegeben. Er kann aber für Sonderfälle beliebig verändert werden. Für die Ermittlung der Nachweisgrenze des Analysenverfahrens werden folgende Werte verwendet:

Wirkungsgrad des Detektors:	30 %
Nullrate der Blindproben:	5,0 Imp/15 Stunden
Dauer der Messungen:	15 Stunden

Aus den angegebenen Werten ergibt sich eine Nachweisgrenze von 1,5 mBq Pu/Probe.

Eine andere Meßmethode besteht in der autoradiographischen Bestimmung mit einer Kernspuremulsion. Die Probe wird eine Woche lang mit der Schicht in Kontakt gebracht. Mit dieser Methode kann eine geringere Aktivität nachgewiesen werden.

Die Exposition der Kernspurplatten erfolgt zweckmäßigerweise im Kühlschrank bei 10 °C. Verwendet werden NTA-Kernspurplatten (Kodak). Die Platten werden ausgewertet, indem auf ihnen nach der Entwicklung und Fixierung die Zahl der α -Spuren unter einem Mikroskop bestimmt wird. Die Zahl der α -Spuren ist proportional der Zahl der zerfallenen Plutoniumatome und damit der Aktivität der Probe. Sie bietet die Möglichkeit, Einzelteilchen zu erkennen.

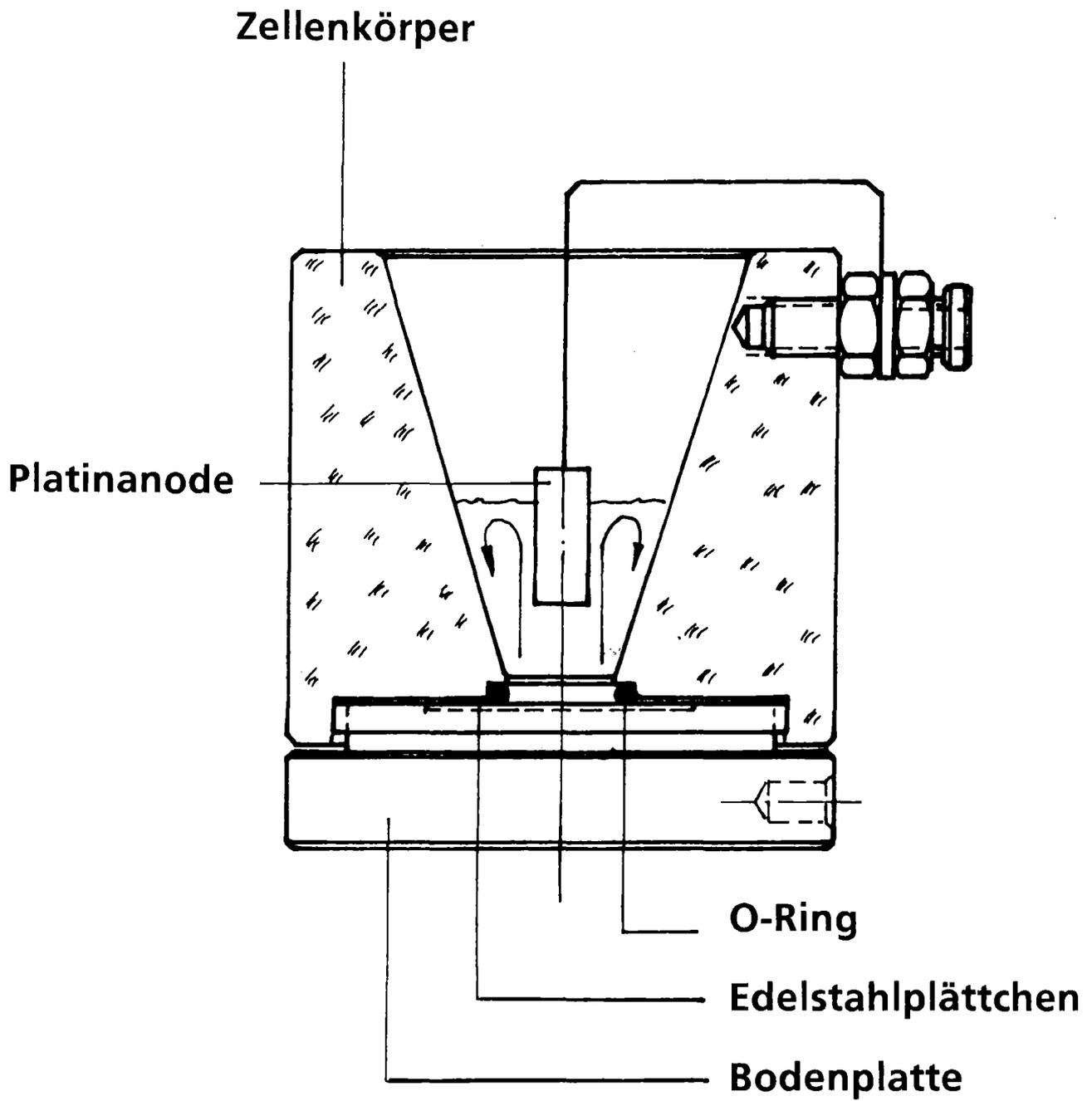


Abb. 3.3.11: Elektrolysezelle

Auf frisch hergestellten Kernspurplatten sind praktisch keine störenden Fremdspuren vorhanden, so daß die Methode der Autoradiographie bei entsprechend langer Exposition der Probe ein äußerst empfindliches Nachweisverfahren darstellt. Begrenzt wird es lediglich durch den Fading-Effekt, d. h. durch die Tatsache, daß bei sehr langer Exposition das latente Bild wieder schwindet. Eine zunehmende Verlängerung der Belichtungszeit bringt somit auch einen wesentlichen Unsicherheitsfaktor. Die Nachweisgrenze des Verfahrens hängt von dem Aufwand ab, den man bei der mikroskopischen Auswertung anstellt. Die Auswertung nur eines Gesichtsfeldes ($0,342 \text{ mm}^2$) aus einer Gesamtfläche von $132,7 \text{ mm}^2$ bei einer einwöchigen Exposition bringt bereits eine Nachweisgrenze von $1,3 \text{ mBq}$. Durch Auswertung größerer Flächen kann das Verfahren empfindlicher gestaltet werden, z. B. für $1,39 \text{ mm}^2$ Gesichtsfeld auf $0,4 \text{ mBq}$. Die Voraussetzung für diese Art der Auswertung ist eine gleichmäßig elektrolytische Abscheidung des Plutoniums über die gesamte Fläche, von der man sich durch eine autoradiographische Aufnahme einer Standardprobe vergewissern kann [Schi 68].

3.3.7.5 Bestimmung der Höhe einer Inkorporation

Eine Dosisbestimmung ist bei Plutonium-Inkorporationen nur bei Kenntnis des Inkorporationszeitpunktes, der Inkorporationsart, der chemischen Zusammensetzung und der physikalischen Eigenschaften der inkorporierten Verbindung möglich. Als Berechnungsgrundlagen ist dabei [BMI 81] zu benutzen.

In der Praxis ist die Bestimmung der Höhe einer Pu-Zufuhr bei bekanntem Zufuhr-Zeitpunkt aus den Ergebnissen der Urin- und Stuhlanalysen möglich. Es können die Ausscheidungsraten benutzt werden, die in [Schi 82] und [Gü 87] tabelliert sind.

Die Vorgehensweise bei der Bestimmung der Zufuhr aus den Ergebnissen der Urin- und Stuhlanalysen nach Inhalation geht von der Annahme aus, daß keine genaueren Kenntnisse über die chemische Verbindungsklasse und die Korngrößenverteilung des inhalierten Aerosols vorliegen. Sie werden daher für eine konservative Verbindungsklasse und für eine Korngrößenverteilung von $1 \mu\text{m}$ AMAD durchgeführt.

Vereinfachend kann dann angenommen werden, daß das inhalierte Aerosol bei in den Körperflüssigkeiten sehr leicht transportierbaren Verbindungen ent-

weder sehr schnell in das Körpersystem (vorwiegend Knochen, Leber und Milz) übergeht, sich in diesen Organen ablagert und zum Teil im *Urin* ausgeschieden wird, oder zum anderen als nicht transportierbarer Anteil sich im Atemtrakt ablagert und nach kurzer Zeit durch den Selbstreinigungsmechanismus des Atemtrakts wieder im *Stuhl* ausgeschieden wird [Schi 82].

Der erste Anteil ist aus den Ergebnissen der Urinausscheidung mit den Ausscheidungsfunktionen von Beach und Dolphin oder Durbin [Be 64, Du 71, ICRP 68] berechenbar, wobei in der Praxis festgestellt wurde, daß dieser Anteil bei fast allen Personen so gering war, daß er keinen Beitrag zur Berechnung lieferte. Dieser Anteil repräsentiert nur den Systemgehalt im Körper und stellt damit nur einen bestimmten Anteil der gesamten Zufuhr im Körper dar.

Der andere Anteil, der den Gehalt im Atemtrakt darstellt, läßt sich nach den Angaben der ICRP [ICRP 79] aus der im Stuhl der ersten drei Tage ausgeschiedenen Aktivität ermitteln. Vereinfachend wird nach [Gü 87] für alle Verbindungsklassen und für eine normierte Korngrößenverteilung von 1 Mikrometer AMAD eine kumulierte Ausscheidung von 0,5 innerhalb dieses Zeitraums angenommen.

Eine Ausscheidung von 4 Bq in den Stuhlausscheidungen der ersten drei Tage nach der Inhalation (einschließlich einer eventuell festgestellten, durch Nasenabstrich entfernten Aktivität im Nasen-/Rachen-Raum) hat somit eine ungefähre Zufuhr von 5 % des Grenzwerts der Jahresaktivitätszufuhr an Plutonium (160 Bq) zur Folge [Gü 87].

Bei Wundkontaminationen sind Urinalysen zur Abschätzung der Höhe eines eventuellen Körperdepots erforderlich. Mit den Ausscheidungsfunktionen nach Beach und Dolphin ist die Systembelastung (die in den Körperorganen vorhandene Aktivität, vorwiegend in Knochen, Leber und Milz) zu bestimmen. Ein Bezug auf Grenzwerte der Strahlenschutzverordnung kann in diesem Fall nur durch Bestimmung der Organdosis mit Hilfe der Dosisfaktoren der Richtlinie [BMI 81] und einem Vergleich mit den Grenzwerten der Körperdosis nach Anlage X der Strahlenschutzverordnung erfolgen.

Erhöhte Zufuhrwerte erfordern eine Fortsetzung der Urin- und/oder Stuhlanalysen mit dem Ziel einer genaueren Bestimmung der Zufuhr und gegebenenfalls der Körperdosis nach Ermittlung der chemischen und physikalischen Beschaffen-

heit des inhalierten Materials (Lungenretentionsklasse und Korngrößenverteilung). Erhöhte Zufuhren machen unter Umständen eine Therapie zur Ausscheidungsintensivierung erforderlich, wobei eine Beeinträchtigung der Inkorporationsabschätzung durch eine gegenüber dem Normalen veränderte Ausscheidungsfunktion in Kauf genommen werden muß [Gü 87].

3.4 Anwendung der verschiedenen Meßverfahren zur Optimierung der Inkorporationsüberwachung

H. Dilger, H. Doerfel, H. Schieferdecker

Da die Unsicherheitsfaktoren der verschiedenen Überwachungsverfahren sehr unterschiedlicher Natur sind, ist es zweckmäßig, die einzelnen in den Kapiteln 3.1 bis 3.3 beschriebenen Verfahren in geeigneter Weise zu kombinieren. Das im folgenden beschriebene Überwachungsprogramm stellt aufgrund der im Kernforschungszentrum Karlsruhe gesammelten Erfahrungen eine optimale Lösung dar [Schi 88b].

3.4.1 Regelmäßige Überwachung

Das kombinierte Verfahren der Inkorporationsüberwachung auf Plutonium besteht darin, daß routinemäßig

- die Raumlufkonzentration in jedem Arbeitsbereich kontinuierlich gemessen wird,
- monatlich Referenzpersonen aus einer Arbeitsgruppe mit vergleichbaren Arbeitsbedingungen durch Ganzkörpermessungen und Urinalysen überwacht werden und
- bei Überschreiten von Schwellenwerten dieser Überwachung eine individuelle Überwachung einsetzt.

Das Schema der Überwachung ist in der Abbildung 3.4.1 dargestellt [Di 86].

Werden im Rahmen der Routineüberwachung Meßwerte unterhalb eines Schwellenwerts (bei Raumlufkonzentration 60 mBq/m^3 im Tagesmittel, beim Ganzkörperzähler 22 Bq Cs-137 , entsprechend einer Plutoniumzufuhr von 8 Bq/a und bei Urinmessungen $1,5 \text{ mBq/d}$) ermittelt, werden keine weiteren Maßnahmen außer der Sammlung und Registrierung der Luftfilter und der Meßergebnisse ergriffen (Fall 1 in Abbildung 3.4.1). Aus den Meßergebnissen unterhalb des Schwellenwerts von 60 mBq/m^3 werden für die in den jeweiligen Arbeitsbereiche beschäftigten Personen quartalsweise mittlere Aktivitätszufuhren berechnet und aufgezeichnet.

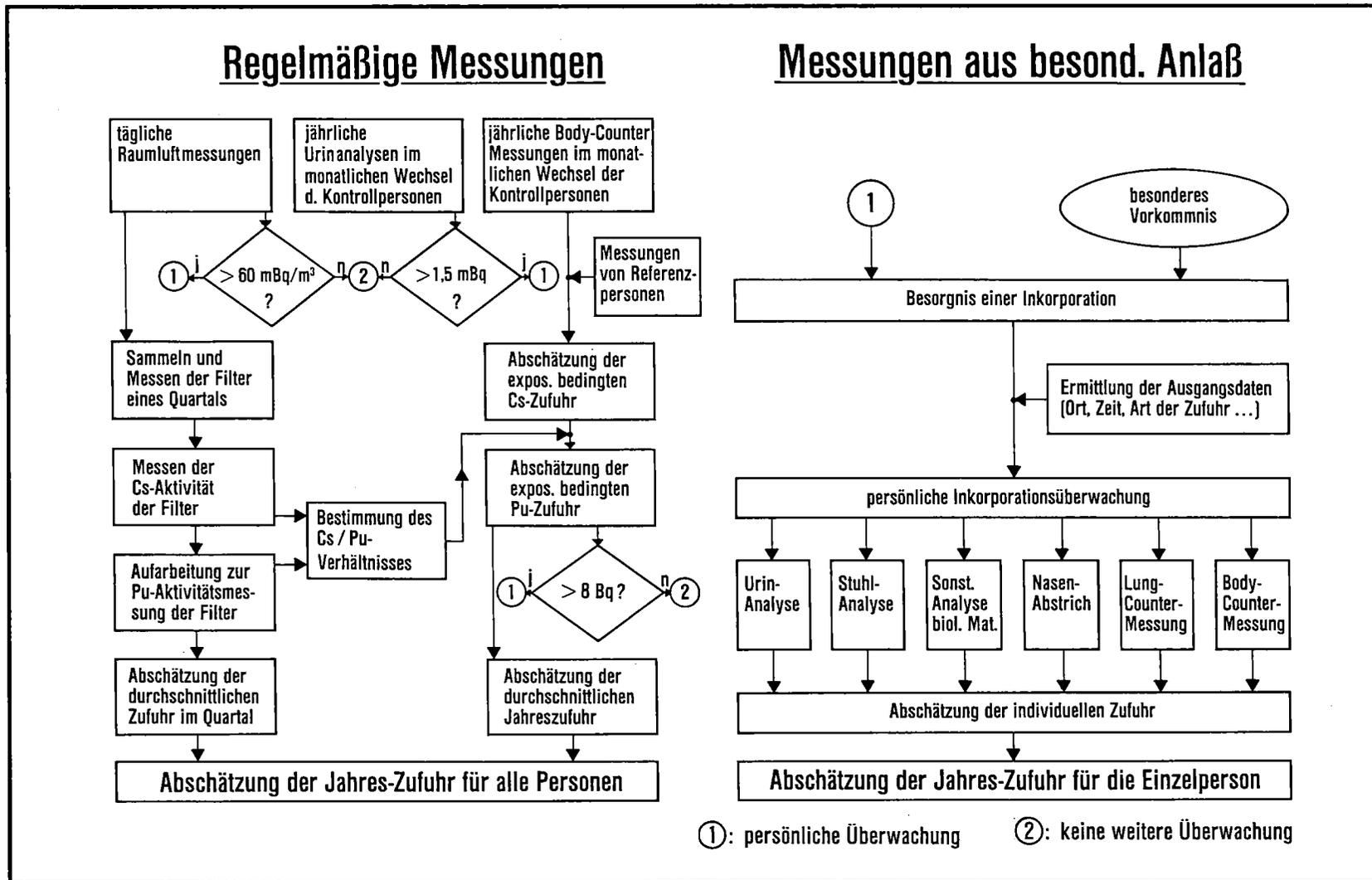


Abb. 3.4.1: Schematische Darstellung des Überwachungsverfahrens im Kernforschungszentrum Karlsruhe

Werden bei der Routineüberwachung Meßwerte oberhalb der Schwellenwerte ermittelt, werden weitere Untersuchungen ausgeführt.

3.4.2 Überwachung aus besonderem Anlaß

Bei Auftreten von Meßwerten oberhalb der Schwellenwerte der Überwachung (siehe Abbildung 3.4.1) und bei Kontamination im Gesichtsbereich erfolgt sofort eine individuelle Überwachung, die folgende Untersuchungen umfaßt ("Messungen aus besonderem Anlaß" gemäß [BMI 78]) (siehe Fall 2 in Abbildung 3.4.1):

- Abnahme von Nasen-/Rachen-Abstrichen,
- Direktmessungen mit dem Ganzkörperzähler und dem Lungenzähler,
- Sammlung von Urin und Stuhl der folgenden drei Tage, gegebenenfalls Blutentnahme.

Aus dem Ergebnis dieser Messungen wird unter Einbeziehung der Modelldaten der ICRP [ICRP 79] die Zufuhr an Plutonium ermittelt, wobei die Tabellen in [Gü 87] herangezogen werden.

Diese Zufuhr wird mit den Grenzwerten der Jahresaktivitätszufuhr verglichen. Bei festgestellten Inkorporationen in Höhe von weniger als 50 % der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr sind die Körperdosen kleiner als 5 % der Grenzwerte nach Anlage X der Strahlenschutzverordnung. Bei Überschreitung von 50% der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr wird eine Berechnung der Körperdosis durchgeführt [BMI 81]. Hierbei werden sowohl die 50-Jahre-Folgedosis als auch die in den einzelnen Jahren zu erwartenden Jahreskörperdosen berechnet und in einer persönlichen Inkorporationsdatei gesammelt.

Die Grenzwerte, die international und in der Bundesrepublik Deutschland eingehalten werden müssen, sind im Lauf der Zeit verändert worden. Die niedrigeren Zufuhrwerte in der Bundesrepublik Deutschland gegenüber der ICRP [ICRP 79, ICRP 88] und der EG ergeben sich aus der Änderung des Dosisbegrenzungskonzepts. Wegen der Reduktion der Grenzwerte für nichtstochastische Wirkungen in Einzelorganen sind in Deutschland künftig niedrigere Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr zu beachten.

Verbindung	Löslichkeitsklasse	Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr in Bq				
		ICRP 30 1979	ICRP 30 1988	Euratom 1980	StrlSchV 1977	Novelle 1989
PuO ₂	Y	500	600	500	160	400
alle anderen Verbindungen	W	200	200	200	160	100

Tab. 3.4.1: Zusammenstellung der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr für Pu-239 nach den verschiedenen Vorschriften

Bei Plutonium wirkt sich die in der Novelle der Strahlenschutzverordnung vorgenommene Teilkörperbegrenzung auf die Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr aus. In Tabelle 3.4.1 sind diese Werte für Plutonium nach den verschiedenen Vorschriften zusammengestellt. Man sieht, daß die Novelle gegenüber der geltenden Strahlenschutzverordnung für die Klasse W einen um 40 % kleineren Wert vorsieht; gegenüber den Euratom-Grundnormen ist dieser Wert um den Faktor 2 erniedrigt. Für PuO₂ (Klasse Y) sieht die Novelle zwar eine Erhöhung des Wertes gegenüber der geltenden Strahlenschutzverordnung vor, dieser Wert liegt aber immer noch um den Faktor 1,5 unter den ICRP- bzw. um 1,25 unter den Euratom-Werten.

Für Plutonium ist die Knochenoberfläche grenzwertbestimmend; deshalb liegen die Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr für die Klasse W tiefer als für Klasse Y. Korngrößen-Korrekturen bei AMAD größer als 1 µm führen bei Klasse W zu einer Erhöhung des Grenzwertes der Jahresaktivitätszufuhr, bei Klasse Y zu einer Erniedrigung. Dies ist darauf zurückzuführen, daß die Anteile der im Nasen-/Rachenraum abgelagerten Aktivitäten, die in die Körperflüssigkeiten übergeführt werden, bei Klasse W um den Faktor 10 höher liegen als bei Verbindungen der Klasse Y [Schi 88a].

Bei Nukliden, die auf den Knochenoberflächen abgelagert werden, wird mit einer einmaligen Zufuhr in Höhe der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr erst im Verlauf von 50 Jahren der Grenzwert der Teilkörperdosis erreicht. Im ersten Jahr fallen nur 2,4 % der Dosis an, das sind ca. 7 mSv bei einem Grenzwert von 300 mSv.

Die Abschätzung der Zufuhr konnte im Kernforschungszentrum Karlsruhe nur in einem Fall durch Vergleich der in den Organen festgestellten Aktivitäten überprüft werden. Es handelte sich dabei um den Fall einer ungeklärten Plutoniuminhalation, die bei Arbeiten außerhalb der Bundesrepublik Deutschland erfolgte. Die Ausscheidungsmessungen wurden im Ausland und zuletzt auch im Kernforschungszentrum Karlsruhe vorgenommen. Aus den Ergebnissen wurde mit den bekannten Ausscheidungsfunktionen und dem vermuteten Inkorporationszeitpunkt eine Abschätzung vorgenommen, die später durch Ergebnisse von Organmessungen nach einer Milzektomie verglichen werden konnten. Nach dem Tod wurden Organteile auf Plutonium untersucht. Die Ergebnisse sind in [Oh 84] vollständig publiziert. Dabei stellte sich heraus, daß die verschiedenen Modelle zur Abschätzung der Systembelastung nach Langham [La 50], Beach und Dolphin [Be 64] sowie Durbin [Du 71] eine Überschätzung der tatsächlichen Zufuhr ergaben, und sich die bekannte Konservativität der Modelle bestätigte.

Aufgrund von neueren Modellrechnungen des ICRP-Lungenmodells sowie der Stoffwechselmodelle von ICRP 30 wurde anhand der Ausscheidungsdaten eine Abschätzung der Zufuhr vorgenommen [Doe 89]. Diese Abschätzung führte zu einer wesentlich besseren Konsistenz mit den Autopsiedaten. Die Anwendung der nach dem letzten Kenntnisstand aufgestellten Ausscheidungsdaten bietet somit die Möglichkeit, realistischere Abschätzungen vorzunehmen.

Weitere umfangreiche Untersuchungen liegen im Transuranium Registry vor. In dem in den USA geführten Trans-Uranium-Registry [Sw 88] sind zur Zeit 564 Personen registriert, die Umgang mit Plutonium hatten und dabei Plutonium in unterschiedlicher Menge inkorporierten. Sie haben die Zustimmung zur Autopsie gegeben mit dem Ziel einer umfangreicheren Datensammlung zur Dosis-Effekt-Beziehung. Bis jetzt wurden 252 Autopsien vorgenommen (davon im letzten Jahr 13 Untersuchungen), bei denen in den meisten Fällen festgestellt wurde, daß durch Ausscheidungsanalysen unter Benutzung der Modelle zur Abschätzung die Zufuhr überschätzt wurde. Es wurden bisher keine Todesfälle aufgrund der ermittelten Pu-Inkorporationen festgestellt.

In diesem Zusammenhang ist darauf zu verweisen, daß nach den Untersuchungen von Bunzl [Bu 83, Bu 85] der natürliche Gehalt an Plutonium im Menschen aufgrund der Fallout-Aktivitäten im Bereich von 75 mBq/Gesamtkörper liegt. Die mit der Zufuhr durch Nahrungsmittel täglich aufgenommene Plutoniumaktivität liegt im Bereich von 0,1 bis 0,2 mBq/d [Schi 87].

3.4.3 Ergebnisse der Überwachung

Die im Kernforschungszentrum Karlsruhe geübte Praxis hat sich bisher bewährt, was aus den Ergebnissen der Inkorporationsüberwachung der letzten vierzehn Jahre hervorgeht [Schi 79, Schi 85, Schi 88a, Schi 88b].

In diesem Zeitraum wurden im Kernforschungszentrum Karlsruhe insgesamt 4540 Personen im Rahmen der regelmäßigen Untersuchungen überwacht und dabei in 586 Fällen weitere Untersuchungen durchgeführt. Die Ergebnisse sind in den Tabellen 3.4.2 bis 3.4.16 zusammengestellt.

Aufgrund von regelmäßigen Messungen wurden zwei Fälle einer unbemerkten Inkorporation durch Urinalanalysen und ein Fall durch Body-Counter-Messungen erkannt und einer genaueren Untersuchung unterzogen. Wegen des nicht ermittelbaren Zeitpunkts der Inkorporation ist eine Dosisermittlung noch nicht abgeschlossen. Deshalb werden zur Zeit noch Verlaufsmessungen durchgeführt.

Von den 586 Untersuchungen aus besonderem Anlaß lag in 495 Fällen (85 %) die Inkorporation unterhalb von 5 % der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr. In 64 Fällen wurde eine Zufuhr im Bereich von 5 % bis 50 %, in sechzehn Fällen eine Zufuhr in Höhe von über 50 % bis unter 100 % des Grenzwertes der Jahresaktivitätszufuhr für Plutonium festgestellt. Eine Überschreitung des Grenzwertes der Jahresaktivitätszufuhr wurde in elf Fällen ermittelt.

Die effektive Dosis, die aus der Inhalation von Plutonium resultiert, beträgt im ersten Jahr bei einer Zufuhr von 100 % des Grenzwertes der Jahresaktivitätszufuhr weniger als 3 % des Grenzwertes der jährlichen Ganzkörperdosis nach Anlage X der Strahlenschutzverordnung. Bei den elf Fällen der Überschreitung der Zufuhrgrenzwerte wurden für das erste Jahr nach der Inkorporation effektive Äquivalentdosen von ca. 2 mSv - das entspricht etwa der natürlichen jährlichen Strahlenexposition in der Bundesrepublik - ermittelt.

Abt./ Inst.	Gesamtüberwachung		davon Messungen aus besonderem Anlaß		Aktivitätszufuhr in Prozent der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr				
	Personen	Analysen	Personen	Analysen	≤ 5	> 5 ≤ 50	> 50 ≤ 100	> 100 ≤ 200	> 200 ≤ 300
HDB	144	362	10		(10)				
IGT	14	35							
IRCH	31	70							
IHCH	113	261							
IMF1	4	8							
IMF3	26	60							
INR	6	12	1		(1)				
KTB/FR2	22	23							
KTB/HZ	28	47							
KTB/SN	20	33							
Summe	408	911	11		(11)				

Tab. 3.4.2: Verteilung der im Kernforschungszentrum Karlsruhe auf Pu-239 ausgeführten Analysen für das Jahr 1975
Angaben in (): Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr sind eigentlich erst ab 01.04.1977 anwendbar

Abt./ Inst.	Gesamtüberwachung		davon Messungen aus besonderem Anlaß		Aktivitätszufuhr in Prozent der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr				
	Personen	Analysen	Personen	Analysen	≤ 5	$\begin{matrix} > 5 \\ \leq 50 \end{matrix}$	$\begin{matrix} > 50 \\ \leq 100 \end{matrix}$	$\begin{matrix} > 100 \\ \leq 200 \end{matrix}$	$\begin{matrix} > 200 \\ \leq 300 \end{matrix}$
HDB	114	529	18		(8)	(4)	(3)	(3)	
IGT	11	15	1		(1)				
IRCH	90	179	4		(4)				
IHCH	4	4							
IMF1	22	58							
IMF3	2	15							
INE	12	21							
INR	40	65	1		(1)				
KTB/FR2	23	23							
KTB/HZ	31	10	17		(16)	(1)			
KTB/SN	13	22							
sonstige	1	4	1		(1)				
Summe	363	945	42		(31)	(5)	(3)	(3)	

Tab. 3.4.3: Verteilung der im Kernforschungszentrum Karlsruhe auf Pu-239 ausgeführten Analysen für das Jahr 1976
Angaben in (): Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr sind eigentlich erst ab 01.04.1977 anwendbar.

Abt./ Inst.	Gesamtüberwachung		davon Messungen aus besonderem Anlaß		Aktivitätszufuhr in Prozent der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr				
	Personen	Analysen	Personen	Analysen	≤ 5	>5 ≤ 50	>50 ≤ 100	>100 ≤ 200	>200 ≤ 300
HDB	105	414	37		28	8		4	
IGT	8	15							
IHCH	102	161	3		3				
IMF1	22	37	6		6				
IMF3	1	6	1		1				
INE	4	7							
INR	32	57	5		5				
KTB/FR2	23	23	2		2				
KTB/HZ	51	7	7		7				
KTB/SN	9	16							
Summe	357	743	61		49	8		4	

Tab. 3.4.4: Verteilung der im Kernforschungszentrum Karlsruhe auf Pu-239 ausgeführten Analysen für das Jahr 1977

Abt./ Inst.	Gesamtüberwachung		davon Messungen aus besonderem Anlaß		Aktivitätszufuhr in Prozent der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr				
	Personen	Analysen	Personen	Analysen	≤ 5	>5 ≤ 50	>50 ≤ 100	>100 ≤ 200	>200 ≤ 300
HDB	94	478	24		12	5	7		
IGT	11	29	4		4				
IRCH	102	305	9		8		1		
IHCH	4	8							
IMF1	37	82	6		6				
IMF3	1	1							
INE	8	14							
INR	29	100	4		3	1			
KTB/FR2	31	54	1		1				
KTB/HZ	67	135	7		5		1	1	
KTB/SN	11	22							
sonstige	14	14							
Summe	409	1242	55		39	6	9	1	

Tab. 3.4.5: Verteilung der im Kernforschungszentrum Karlsruhe auf Pu-239 ausgeführten Analysen für das Jahr 1978

Abt./ Inst.	Gesamtüberwachung		davon Messungen aus besonderem Anlaß		Aktivitätszufuhr in Prozent der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr				
	Personen	Analysen	Personen	Analysen	≤ 5	> 5 ≤ 50	> 50 ≤ 100	> 100 ≤ 200	> 200 ≤ 300
HDB	106	412	19	166	13	4	1		1
IGT	11	17							
IHCH	91	142	6	45	6				
IMF2	3	4							
IMF3	15	61	7	18	7				
INE	8	41	6	36	6				
INR	9	9							
IRCH	33	78	7	20	7				
KTB/FR2	47	61							
KTB/HZ	55	69	1	10	1				
KTB/SN	1	1							
VBW	3	19							
Summe	382	914	46	295	40	4	1		1

Tab. 3.4.6: Verteilung der im Kernforschungszentrum Karlsruhe auf Pu-239 ausgeführten Analysen für das Jahr 1979

Abt./ Inst.	Gesamtüberwachung		davon Messungen aus besonderem Anlaß		Aktivitätszufuhr in Prozent der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr				
	Personen	Analysen	Personen	Analysen	≤ 5	> 5 ≤ 50	> 50 ≤ 100	> 100 ≤ 200	> 200 ≤ 300
HDB	95	397	35	143	27	8			
HS	36	36							
IGT	8	11							
IHCH	104	158							
IMF3	19	27							
INE	6	9							
INR	9	9							
IRCH	24	44	5	7	5				
KTB/FR2	3	16	3	8	3				
KTB/HZ	37	37	1	1	1				
sonstige	1	1							
Summe	342	745	44	159	36	8			

Tab. 3.4.7: Verteilung der im Kernforschungszentrum Karlsruhe auf Pu-239 ausgeführten Analysen für das Jahr 1980

Abt./ Inst.	Gesamtüberwachung		davon Messungen aus besonderem Anlaß		Aktivitätszufuhr in Prozent der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr				
	Personen	Analysen	Personen	Analysen	≤ 5	> 5 ≤ 50	> 50 ≤ 100	> 100 ≤ 200	> 200 ≤ 300
HDB	73	284	26	110	23	3			
IGT	9	12	3	3	3				
IHCH	43	43							
IMF2	8	8							
IMF3	16	29							
INE	4	4							
INR	8	8							
IRCH	28	29							
KTB/HZ	43	52	1	3	1				
LAF2	1	2							
Summe	233	471	30	116	27	3			

Tab. 3.4.8: Verteilung der im Kernforschungszentrum Karlsruhe auf Pu-239 ausgeführten Analysen für das Jahr 1981

Abt./ Inst.	Gesamtüberwachung		davon Messungen aus besonderem Anlaß		Aktivitätszufuhr in Prozent der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr				
	Personen	Analysen	Personen	Analysen	≤ 5	> 5 ≤ 50	> 50 ≤ 100	> 100 ≤ 200	> 200 ≤ 300
AV/RD	3	3							
HDB	66	215	8	74	5	1	1		1
IGT	10	15							
IHCH	108	156	3	6	3				
IKVT	1	2	1	2	1				
IMF2	8	15							
IMF3	15	34	1	5	1				
INE	10	25	1	2	1				
INR	11	16							
IRCH	20	42	2	9	2				
KTB/BI	12	12							
KTB/FR2	11	11	5	5	5				
KTB/HZ	40	72							
VBW	1	1							
Summe	316	619	21	103	18	1	1		1

Tab. 3.4.9: Verteilung der im Kernforschungszentrum Karlsruhe auf Pu-239 ausgeführten Analysen für das Jahr 1982

Abt./ Inst.	Gesamtüberwachung		davon Messungen aus besonderem Anlaß		Aktivitätszufuhr in Prozent der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr				
	Personen	Analysen	Personen	Analysen	≤ 5	>5 ≤ 50	>50 ≤ 100	>100 ≤ 200	>200 ≤ 300
HDB	85	239	27	100	22	5			
IAK1	1	1	1	1	1				
IGT	1	1	1	1	1				
IHCH	97	142	5	12	5				
IMF1	1	1							
IMF2	5	5							
IMF3	14	14							
INE	16	30	1	6	1				
INR	3	13	3	6	3				
IRCH	20	25	1	6	1				
KTB/BI	23	29	1	6	1				
KTB/FR2	7	21	1	3	1				
KTB/HZ	45	66	3	20	2				1
Summe	318	587	44	161	38	5			1

Tab. 3.4.10: Verteilung der im Kernforschungszentrum Karlsruhe auf Pu-239 ausgeführten Analysen für das Jahr 1983

Abt./ Inst.	Gesamtüberwachung		davon Messungen aus besonderem Anlaß		Aktivitätszufuhr in Prozent der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr				
	Personen	Analysen	Personen	Analysen	≤ 5	> 5 ≤ 50	> 50 ≤ 100	> 100 ≤ 200	> 200 ≤ 300
HDB	88	264	24	143	20	4			
IHCH	111	242	19	180	16	3			
IKVT	1	2	1	2	1				
IMF1	1	1							
IMF2	3	3							
IMF3	15	15							
INE	11	17	1	6	1				
INR	7	7							
IRCH	22	22							
KTB/BI	19	25	1	2	1				
KTB/FR2	2	6	2	6	2				
KTB/HZ	43	47	1	3	1				
VBW	4	22	4	22	4				
Summe	327	673	53	364	46	7			

Tab. 3.4.11: Verteilung der im Kernforschungszentrum Karlsruhe auf Pu-239 ausgeführten Analysen für das Jahr 1984

Abt./ Inst.	Gesamtüberwachung		davon Messungen aus besonderem Anlaß		Aktivitätszufuhr in Prozent der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr				
	Personen	Analysen	Personen	Analysen	≤ 5	> 5 ≤ 50	> 50 ≤ 100	> 100 ≤ 200	> 200 ≤ 300
EKM	6	45	6	45	2	4			
HDB	55	294	26	122	25	1			
IHCH	82	97	2	10	2				
IGT	20	20							
IMF1	1	1							
IMF3	14	14							
INE	13	14							
INR	2	2							
IRCH	22	22							
KTB/BI	2	7	1	3	1				
KTB/FR2	1	1	1	1	1				
KTB/HZ	42	44							
KTB/SN	7	7							
SKT	1	5	1	5	1				
Summe	268	573	37	186	32	5			

Tab. 3.4.12: Verteilung der im Kernforschungszentrum Karlsruhe auf Pu-239 ausgeführten Analysen für das Jahr 1985

Abt./ Inst.	Gesamtüberwachung		davon Messungen aus besonderem Anlaß		Aktivitätszufuhr in Prozent der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr				
	Personen	Analysen	Personen	Analysen	≤ 5	≤ 5 ≤ 50	> 50 ≤ 100	> 100 ≤ 200	> 200 ≤ 300
HDB	117	184	21	71	18	2	1		
HS	4	7	4	7	4				
IGT	2	3	2	2	2				
IHCH	13	19	4	10	4				
IMF3	1	2	1	2	1				
INE	11	24	3	11	3				
INR	3	5							
IRCH	20	37	1	15					
KTB/BI	5	5							
KTB/HZ	42	58	9	20	9				
KTB/SN	22	47	8	19	8				
LAF2	1	6	1	6	1				
MED	1	7	1	7	1				
VBW	1	1	1	1	1				
Summe	243	405	56	172	53	2	1		

Tab. 3.4.13: Verteilung der im Kernforschungszentrum Karlsruhe auf Pu-239 ausgeführten Analysen für das Jahr 1986

Abt./ Inst.	Gesamtüberwachung		davon Messungen aus besonderem Anlaß		Aktivitätszufuhr in Prozent der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr				
	Personen	Analysen	Personen	Analysen	≤ 5	$\begin{matrix} > 5 \\ \leq 50 \end{matrix}$	$\begin{matrix} > 50 \\ \leq 100 \end{matrix}$	$\begin{matrix} > 100 \\ \leq 200 \end{matrix}$	$\begin{matrix} > 200 \\ \leq 300 \end{matrix}$
HDB	140	183	19	47	19				
IGT	4	8	3	6	3				
INE	11	16							
IHCH	21	49	8	29	7	1			
IRCH	20	26	1	6	1				
KTB/FR2	1	1							
KTB/HZ	40	87	7	54	6	1			
Summe	237	370	38	142	36	2			

Tab. 3.4.14: Verteilung der im Kernforschungszentrum Karlsruhe auf Pu-239 ausgeführten Analysen für das Jahr 1987

Abt./ Inst.	Gesamtüberwachung		davon Messungen aus besonderem Anlaß		Aktivitätszufuhr in Prozent der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr				
	Personen	Analysen	Personen	Analysen	≤ 5	> 5 ≤ 50	> 50 ≤ 100	> 100 ≤ 200	> 200 ≤ 300
HDB	164	409	36	235	27	8	1		
HBT	1	1	1	1	1				
IGT	1	2	1	2	1				
IMF3	12	12							
IHCH	90	115	5	43	5				
IRCH	25	62	3	18	3				
INE	15	22	1	1	1				
HVT/HZ	29	32	1	1	1				
Summe	337	655	48	301	39	8	1		

Tab. 3.4.15: Verteilung der im Kernforschungszentrum Karlsruhe auf Pu-239 ausgeführten Analysen für das Jahr 1988

Abt./ Inst.	Gesamt- überwachung Personen	davon Messungen aus besonderem Anlaß Personen	Aktivitätszufuhr in Prozent der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr				
			≤ 5	> 5 ≤ 50	> 50 ≤ 100	> 100 ≤ 200	> 200 ≤ 300
HDB	1446	330	255	54	13	7	1
IHCH	983	55	51	4			
IMF	260	22	22				
IRCH	457	33	32		1		
KTB	908	82	80	1			1
sonstige	486	64	55	5	2	1	1
Summe	4540	586	495	64	16	8	3

Tab. 3.4.16: Ergebnisse der Pu-239-Inkorporationsüberwachung im Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1975 - 1988

Liste der Abkürzungen (Tabellen 3.4.2 - 3.4.16)

AV/RD: Allgemeine Verwaltung/Reinigungsdienst
 EKM: Hauptabteilung Einkauf und Materialwirtschaft
 HBT: Hauptabteilung Betriebstechnik
 HDB: Hauptabteilung Dekontaminationsbetriebe
 HS: Hauptabteilung Sicherheit
 HVT: Hauptabteilung Versuchstechnik
 IHCH: Institut für Heiße Chemie
 IAK: Institut für Angewandte Kernphysik
 IGT: Institut für Genetik und für Toxikologie von Spaltstoffen

IMF: Institut für Material- und Festkörperforschung
 INE: Institut für Nukleare Entsorgungstechnik
 INR: Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
 IRCH: Institut für Radiochemie
 KTB: Hauptabteilung Kerntechnische Betriebe
 LAF: Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik
 MED: Medizinische Abteilung
 SKT: Schule für Kerntechnik
 VBW: Hauptabteilung Versorgungsbetriebe und Werkstätten

3.4.4 Zusammenfassung

Die Inkorporationsüberwachung auf Plutonium besteht aus regelmäßigen Messungen sowie aus Messungen aus besonderem Anlaß. Die lückenlose Überwachung wird durch die gleichzeitige Anwendung von drei verschiedenen Methoden erreicht:

- durch kontinuierliche Raumluftüberwachung,
- durch regelmäßige Direktmessungen mit einem Ganzkörperzähler,
- durch regelmäßige Urinalysen.

Die Raumluftüberwachung ist als Screening-Methode ausreichend sicher, um Inkorporationen noch unterhalb der Grenzwerte erkennen zu können. Die regelmäßige Messung von Ganzkörperaktivität und Urin wird dabei zur Erkennung kleinerer chronischer Inkorporationen eingesetzt.

Bei Überschreitung von Schwellenwerten der regelmäßigen Überwachung werden sofort personenbezogene Kontrollmessungen ausgeführt. Durch mehrere Urin- und Stuhlanalysen nach dem Verdacht einer Inhalation lassen sich mit dem beschriebenen Überwachungsverfahren noch weniger als 1 % des Grenzwerts der Jahresaktivitätszufuhr abschätzen. Body-Counter-Messungen bieten die Möglichkeit, bei Überschreitungen der Zufuhr-Grenzwerte eine schnelle Abschätzung vorzunehmen.

Aus den Erfahrungen der Überwachungen geht hervor, daß von den über 4500 in den letzten vierzehn Jahren im Kernforschungszentrum Karlsruhe regelmäßig untersuchten Personen etwa 13 % durch Messungen aus besonderem Anlaß einer eingehenderen Untersuchung unterzogen wurden. Insgesamt wurden über 9600 Urin- und Stuhlanalysen ausgeführt. Bei 98 % der Untersuchten wurden keine Zufuhren festgestellt, die mehr als 5 % der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr betrogen. Sie lagen in den meisten Fällen weit darunter. Eine Zufuhr im Bereich zwischen 5 % und 50 % der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr wurde bei 1,4 %, im Bereich zwischen 50 % und 100 % der Grenzwerte bei ca. 0,4 % aller Untersuchungen festgestellt. Überschreitungen der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr (maximal bis zum Dreifachen) wurden elfmal ermittelt (0,24 %). Aber auch daraus ergibt sich keine Überschreitung des Jahresdosisgrenzwertes.

3.5 Literatur zu Kapitel 3

- [Be 64] S.A. Beach, G.W. Dolphin; Determination of Plutonium Body Burdens from Measurements of Daily Urine Excretion; Assessment of Radioactivity in Man Vol. II, STI/PUB/84, 603 (Vienna, IAEA)
- [BMI 78] Bundesminister des Innern, Richtlinie über die physikalische Strahlenschutzkontrolle, (§§ 62 und 63 StrlSchV), GMBI. 1978, Nr. 22, 348-354
- [BMI 81] Bundesminister des Innern, Berechnungsgrundlage für die Ermittlung der Körperdosis bei innerer Strahlenexposition (Richtlinie zu § 63 der StrlSchV), GMBI. Nr. 23 (1981), 321-336
- [Br 67] R.T. Brunskill, F.B. Holt; Aerosol Studies on Plutonium and Uranium Plants at the Windscale and Springfield Works of the United Kingdom Atomic Energy Authority; Symposium "Assessment of Airborne Radioactivity", Vienna, July 3-7; Proceedings: IAEA, Vienna (1967) 463-476
- [Bu 83] K. Bunzl, W. Kracke; Fallout Pu-239 + 240 and Pu-238 in Human Tissues from the Federal Republic of Germany; Health Physics 44 (1983) 441-449
- [Bu 85] K. Bunzl, H. Henrichs, W. Kracke; Distribution of fallout Pu-241, Pu-239 + 240 and Pu-238 in Persons of Different Age from the Federal Republic of Germany; IAEA-SM 276/02 (1985) 541-553
- [Cl 82] G.F. Clemente, A. Delle Site; Assessment of plutonium internal contamination in man; Commission of the European Communities, Report EUR 7157 EN
- [Di 80] H. Dilger, W. Koelzer; Occupational Radiation Exposure at the Waste Handling Facility of the Karlsruhe Nuclear Research Center; Occupational Radiation Exposure in Nuclear Fuel Cycle Facilities, International Symposium, Los Angeles, USA, June 18-22, 1979. Proc.: IAEA, Vienna (1980) 491-511

- [Di 86] H. Dilger, H. Doerfel, H. Schieferdecker; Comparison of Various Methods of Routine Monitoring for Plutonium Incorporation at a Waste Management Facility, Radiation Protection Dosimetry 15 (1986) 167-175
- [DIN 84] Oberflächen-Kontaminationsmeßgeräte und -monitoren für Alpha-, Beta- und Gammastrahlung; DIN 44 801, T1 (Oktober 1984)
- [DIN 88] Bestimmung der Oberflächenkontamination, Beta-Strahler (max. Beta-Energie $E_{\beta\max}$ größer als 0,15 MeV) und Alpha-Strahler; DIN ISO 7503, T1E, Juni 1988
- [Doe 85] H. Doerfel; Aktivitäten im Nasen-/Rachen-Abstrich und in den Stuhlauscheidungen bei Inhalation; in: H. Kiefer, W. Koelzer, L.A. König (Hrsg.); Jahresbericht 1984 der Hauptabteilung Sicherheit, KfK-3883 (1985) 202-203
- [Doe 89] H. Doerfel; Neues Stoffwechselmodell für Plutonium; in: W. Koelzer, M. Urban (Hrsg.); Jahresbericht 1988 der Hauptabteilung Sicherheit, KfK-Bericht im Druck (1989)
- [Du 71] P.W. Durbin; Pu in Man: A Twenty-five year Review; University of California, Berkeley, CA., UCRL-20850 (1971)
- [Eh 64] R. Ehret, H. Kiefer, R. Maushart, G. Möhrle; Performance of an arrangement of several large-area proportional counters for the assessment of Pu-239 lung burdens; Assessment of radioactivity in man, IAEA Vienna (1964), 141-154
- [Ev 66] Eve, I.S.; A review of the physiology of the gastrointestinal tract in relation to radiation doses from radioactive materials, Health Physics 12 (1966) 131-161
- [Fe 61] H. Fessler, H. Kiefer, R. Maushart; Zur Messung von Quantenstrahlung im Energiebereich von 3 bis 30 keV mit großflächigen Proportionalzählern; Atompraxis, Jahrg. 7, Heft 11 (1961) 401-407

- [Gü 87] R. Güldner, D. Beyer, K. Buijs, W. Burkart, H. Dilger, H. Doerfel, K. Henrichs, H. Schieferdecker, W. Wagner, V. Volf; Inkorporationsüberwachung auf Plutonium, Loseblattsammlung des Arbeitskreises Inkorporationsüberwachung, Fachverband für Strahlenschutz e.V., FS-87-45-AKI November 1987
- [He 65] B. Heinrich, Atompraxis No. 2 (1965) 16
- [ICRP 59] Recommendations of the International Commission on Radiological Protection - Report of Committee II on Permissible Dose for Internal Radiation, ICRP Publ. 2, Pergamon Press (1959)
- [ICRP 64] Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, ICRP Publ. 6, Supplement to ICRP Publ. 2; Pergamon Press (1964)
- [ICRP 68] Recommendations of the International Commission on Radiological Protection - Report of Committee VI on Evaluation on Radiation Doses from Internal Contamination due to Occupational Exposure, ICRP Publ. 10, Pergamon Press (1968)
- [ICRP 71] Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, The Assessment on Internal Contamination Resulting from Recurrent or Prolonged Uptakes, ICRP Publ. 10A, Pergamon Press (1971)
- [ICRP 77] Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, ICRP Publ. 26; Annals of the ICRP, Vol. 1, No. 3, Pergamon Press (1977)
- [ICRP 79] Limits for Intakes of Radionuclides by Workers, ICRP Publ. 30, Pergamon Press, Annals of the ICRP
Vol. 2 No. 3/4 (1979), Part 1
Vol. 6 No. 2/3 (1981), Part 3, including Addendum to Parts 1 and 2
Vol. 3 No. 1-4 (1979), Supplement to Part 1
- [ICRP 86] The Metabolism of Plutonium and Related Elements, ICRP Publ. 48, Annals of the ICRP, Vol 16, No. 2/3, Pergamon Press (1986)

- [ICRP 88] Limits for Intakes of Radionuclides by Workers: an Addendum, ICRP Publ. 30, Part 4, Annals of the ICRP, Vol. 19, No. 4 Pergamon Press, (1988)
- [Ki 62] H. Kiefer, R. Maushart; Determination of Pu-239 body burden using gamma spectrometry with proportional counters; Whole body counting, IAEA Vienna (1962), 289-293
- [Kö 70] L.A. König; Erfahrungen bei der Luftüberwachung auf radioaktive Aerosole; Atompraxis 16 (1970) 1-5
- [La 50] W.H. Langham, S.H. Bassett, P.S. Harris, R.E. Carter; Distribution and Excretion of Plutonium Administred Intravenously to Man; LA-1151 (1950) (classified), Nachdruck in Health Physics 38 (1980) 1031-1060
- [Le 87] W.R. Leggett, K.F. Eckermann; A Method for Estimating the Systemic Burden of Plutonium from Urinalysis; Health Physics 52 (1987) 337-346
- [Lö 83] V. Löbner; Dosimetrie inkorporierter Transurane; Staatliches Amt für Atomsicherheit und Strahlenschutz, Berlin, Report SAAS-302 (1983)
- [Mo 66] P.E. Morrow et al.; Deposition and Retention Models for Internal Dosimetry of the Human Respiratory Tract; Health Physics 12 (1966) 173-205
- [Oh 84] L. Ohlenschläger, H. Schieferdecker, W. Schmidt-Martin; Systemic burden and body burden of Pu in man: comparison of results from bioassay and autopsy; Health Physics 46 (1984) 833-838
- [Schi 68] H. Schieferdecker; Bestimmung von Radionukliden in biologischem Material (T, C-14; Po, U, Pu, Am, Cm und Cf); KFK-810 (Nov. 1968)
- [Schi 79] H. Schieferdecker; Ergebnisse der Inkorporationsüberwachung durch Ausscheidungsanalysen im Kernforschungszentrum Karlsruhe in den Jahren 1975 bis 1978; Kfk 2799 B (Juli 1979)

- [Schi 82] H. Schieferdecker, D. Beyer, B. Glöbel, E. Günther, K. Henrichs, V. Volf, E. Werner; Biokinetisches Verhalten von radioaktiven Stoffen bei Inkorporation; Loseblattsammlung Arbeitskreis Inkorporationsüberwachung des Fachverbandes für Strahlenschutz, FS-82-22-AKI (1982)
- [Schi 85] H. Schieferdecker; Ergebnisse der Inkorporationsüberwachung durch Ausscheidungsanalysen im Kernforschungszentrum Karlsruhe in den Jahren 1979 bis 1984; KfK 3826 B (Oktober 1985)
- [Schi 87] H. Schieferdecker, O. Frindik; 7. Fachgespräch zur Überwachung der Umweltradioaktivität, Neuherberg, 16.-17.11.1987, 173-177
- [Schi 88a] H. Schieferdecker, H. Dilger; Anwendung des Lungenmodells der ICRP zur Inkorporationsüberwachung radioaktiver Stoffe; Veröffentlichungen der Strahlenschutzkommission, Band 8, Gustav-Fischer-Verlag (1988) 285-305
- [Schi 88b] H. Schieferdecker, H. Dilger, H. Doerfel; Practical Experience Accumulated at the Karlsruhe Nuclear Research Center; Workshop Biological Assessment of occupational Exposure to Actinides, Versailles, France, May 30-June 2, 1988
- [Sw 88] M.J. Swint, R.L. Kathreen; United States Transuranium Registry; Annual Report, Oct 1, 1986 through Sept.30, 1987, HEHF-54-87 (April 1988)
- [Wi 82] L. Widua, H. Schieferdecker; Anwendung von Flüssigextraktionsverfahren bei der Inkorporationsüberwachung auf Np, Pu, Am, Cm und Cf, KfK 3370B (Oktober 1982)

4 Biokinetik und Toxikologie von Plutonium

D. M. Taylor, V. Volf

4.1 Verteilung und Biokinetik des Plutoniums im Menschen

Unsere direkte Kenntnis der Verteilung und Biokinetik des Plutoniums im menschlichen Körper stammt aus einer Reihe von Messungen an schwerkranken Patienten nach intravenöser Injektion von Pu-239, von Analysen der Ausscheidungen von beruflich exponierten Männern und von der Analyse von Geweben von verstorbenen, beruflich exponierten Männern oder von verstorbenen Mitgliedern der Bevölkerung, die Plutonium vom Kernwaffen-"Fall-out" akkumuliert hatten. Da diese Daten nur ein Teilbild ergeben können, müssen die menschlichen Resultate durch die Ergebnisse von Tierversuchen erweitert werden.

1945 wurde sechzehn erwachsenen Patienten (elf Männern, fünf Frauen), die nach Meinung ihrer Ärzte nur eine sehr begrenzte Lebenserwartung hatten, Pu-239-Citrat intravenös eingespritzt. Die injizierte Menge betrug 2,3 Nanomol Plutonium (12,4 kBq) und 8,2 Mikromol Natrium-Citrat, deswegen wurde das "Molarverhältnis" Citrat:Plutonium ca. 350:1. Die Ausscheidung in Harn und Fäzes wurde für 21 bis 138 Tage verfolgt. In einigen Fällen wurde nach dem Tod der Plutoniumgehalt in verschiedenen Organen gemessen. Aus den Ergebnissen der Messungen der Ausscheidungen wurden mathematische Gleichungen entwickelt, die die Elimination in Harn und Fäzes beschreiben. Die Ergebnisse dieser Studie wurden ursprünglich als vertraulicher interner Bericht des Los Alamos Scientific Laboratory veröffentlicht (La XX); kurz danach wurde der Bericht deklassifiziert, und die Ergebnisse wurden interessierten Ärzten und Wissenschaftlern zur freien Verfügung gestellt.

Seitdem wurden die Ausscheidungsdaten von vielen Forschern überarbeitet, um Eliminationsmodelle zu entwickeln, die die Abschätzung der Körperbelastung aus dem Plutoniumgehalt des Harns ermöglichen [La 56, La 57, La 59, He 57, Be 64, Du 72, Jo 85, Le 87]. Die Gewebeproben zeigen, daß - wie in Versuchstieren - die Hauptablagerungsorgane Leber und Skelett sind. Die Analyse von einigen hundert Obduktionsproben zeigt auch, daß in beiden Fällen - bei den beruflich exponierten Männern und bei den Männern und Frauen, die nur bei dem Fallout plutoniumexponiert wurden - Leber und Skelett ca. 80 % des gesamten Körpergehalts enthielten. Nach Betrachtung aller relevanten Faktoren

vermutet man eine realistische Verteilung des Plutoniums von 50 % im Skelett und 30 % in der Leber, aber die Streuung ist relativ groß [ICRP 86]. Neulich hat man aus diesen Daten die Verweildauer des Plutoniums in Leber und Skelett neu geschätzt. Für die Leber wurde eine Halbwertszeit von 20 Jahren und für das Skelett von 50 Jahren berechnet [ICRP 86]. Die Aufnahme von Plutonium in anderen Geweben scheint sehr klein zu sein. In menschlichen Gonaden liegt der Plutoniumgehalt unter der Nachweisgrenze; aus den Ergebnissen verschiedener Tierversuche wurde die Aufnahme in menschliche Hoden als 0,035 % und in Ovarien als 0,011 % der systemischen Belastung geschätzt. Die Retention des Plutoniums in Gonaden scheint sehr lange zu sein, nach der vorsichtigen Annahme der ICRP "unendlich" lang [ICRP 86].

Nach oraler Einnahme (Ingestion) von Plutoniumverbindungen oder plutoniumkontaminierten Nahrungsmitteln ist die Resorption sehr niedrig. Zwei Messungen an erwachsenen Menschen wiesen auf Resorptionswerte von 0,01 bis 0,1 % der eingenommenen Menge hin [Mu 84, Hu 86]. Tierversuche zeigen, daß die chemische Form des Plutoniums, die Anwesenheit von komplexierenden Substanzen im Magen-Darm-Trakt und der Ernährungszustand (nüchtern oder satt) die Resorption des Plutoniums beeinflussen können. Es ist auch zu erwarten, daß pathologische Änderungen des Magens und oberen Dünndarms die Resorption beeinflussen können [Ta 89]. In neugeborenen Kindern und Säuglingen kann die Resorption um eine Größenordnung erhöht sein.

Nach Inhalation ist die Retention in der Lunge von der chemischen Form des inhalierten Plutoniums abhängig. Während lösliche Verbindungen wie Nitrate relativ schnell resorbiert werden, sind schwer lösliche Oxide sehr stark retiniert. Nach Inhalation werden die tracheobronchialen Lymphknoten relativ stark belastet.

4.2 Strahlentoxikologie des Plutoniums

Unsere heutigen Kenntnisse der Strahlentoxizität des Plutoniums stammen nur aus Tierversuchen, hauptsächlich an Mäusen, Ratten und Beagle-Hunden [Ta 83, Be 65, Mo 65, Wr 86, Pa 87, Da 87]. Die Ergebnisse dieser Studien aus den USA, dem UK und der UdSSR zeigen sehr deutlich, daß Inhalation von Pu-239 oder Pu-238 zu malignen Tumoren der Lunge und der Knochen führen können [Pa 87,

Da 87]. Nach intravenöser Injektion von Pu-239 wurden in Mäusen und Ratten hauptsächlich Knochentumore (Osteosarkome) gefunden [Ta 83, Be 65, Mo 65] während bei Beagle-Hunden Knochen- und Lebertumore verursacht wurden [Wr 86].

Bis jetzt gibt es überhaupt keinen Hinweis auf einen durch Plutonium verursachten Tumor im Menschen. Laufende retrospektive und prospektive epidemiologische Studien in den USA an über 7000 Plutoniumarbeitern haben zur Zeit keine erhöhte Krebsrate festgestellt [Vo 83, Wi 87]. Bei 452 Todesfällen waren 107 Personen an Krebs gestorben, bei einer ähnlichen Gruppe der normalen US-Bevölkerung wären 167 Krebstodesfälle zu erwarten gewesen.

Keine erhöhte Leukämierate wurde in der Studie an Menschen festgestellt [Vo 83]. Auch in den Tierversuchen mit Mäusen und Hunden wurden keine Leukämiefälle gefunden. Nur bei Ratten wurden einige Leukämien nach intravenöser Injektion von Pu-239 beobachtet. In einer der zwei Studien wurde die erhöhte Leukämierate statistisch signifikant [Be 65, Ta 86], in der zweiten Studie wurden die Ergebnisse nicht signifikant [Mo 65, Ta 86]. Neulich hat eine Arbeitsgruppe, das US Committee on the Biological Effects of Ionizing Radiation, berichtet, daß es aufgrund der Ergebnisse der Tierversuche keinen Hinweis für eine leukämogene Wirkung von Plutonium oder anderen Transuranelementen gibt [BEIR 88].

Die Studien in Beagle-Hunden zeigen ein klares lineares Verhältnis zwischen Osteosarkominduktion und der durchschnittlichen Strahlendosis in Knochen für Pu-239, Ra-226 und andere knochensuchende, alphastrahlende Radionuklide [Wr 86]. Im Hund wurde ein Osteosarkom schon bei einer durchschnittlichen Knochenstrahlendosis von 50 Milligray beobachtet [Mi 86]. Der Hund scheint 10- bis 20-fach empfindlicher zur Osteosarkominduktion durch Alphateilchen-Bestrahlung zu sein als der Mensch [Ma 86, BEIR 88].

4.3 Risikoabschätzungen

Die Risikoabschätzungen für Tumorinduktion im Menschen durch Plutonium wurden durch das US Committee on the Biological Effects of Ionizing Radiations neu überarbeitet. Nach sehr sorgfältiger Durchsicht aller vorhandenen Tierdaten

und der Daten von Menschen, die entweder mit Ra-226, Ra-224 oder "Thoro-trast" eingespritzt oder auf andere Weise kontaminiert wurden, wurden Risikofaktoren für Knochen, Leber und Lunge berechnet. Mit Hilfe einer Bayesischen Analyse wurde das Risiko der Induktion von Knochenkrebs durch intern abgelagertes Plutonium als ca. 300 Todesfälle pro 10^4 Personen-Gray berechnet, der 95%-Vertrauensbereich liegt zwischen 80 und 1100 Knochenkrebs-Todesfälle pro 10^4 Personen-Gray. Für Lungenkrebs wird das Risiko zu ca. 700 Todesfälle pro 10^4 Personen-Gray berechnet. Das Risiko für Leberkrebs wurde auf 260 bis 300 Todesfälle pro 10^4 Personen-Gray abgeschätzt [BEIR 88].

4.4 Therapie nach Plutoniumaufnahme

Das in den Körper aufgenommene Plutonium kann mit geeigneten Methoden am Übertritt vom Eintrittsort ins Blut gehindert werden; wenn das Plutonium bereits im Blut zirkuliert, kann seine Ablagerung in den Organen durch Beschleunigung seiner Ausscheidung aus dem Körper herabgesetzt werden [Ne 78, NCRP 80, Vo 78]. Durch diese Maßnahmen soll die Strahlendosis und somit die toxische Wirkung von Plutonium vermindert werden. Da die inkorporierte Plutoniummenge meist gering ist, hat die Therapie vorbeugenden Charakter im Hinblick eines möglichen Strahlenspätchadens.

4.4.1 Hemmung des Übertritts von Plutonium ins Blut

Nach dem Einatmen von plutoniumhaltigem Aerosol wird der Nasen-Mund-Rachenraum gespült und, wenn erforderlich, könnte auch die Lungenspülung durchgeführt werden. Dazu wird dieselbe Methode benutzt, die heutzutage zur Gewinnung von Zellen zum diagnostischen Zwecken bei Lungenerkrankungen routinemäßig eingesetzt wird. Es ist also eine Übertreibung, wenn diese Lungenspülung als "praktisch einem thoraxchirurgischen Eingriff gleich" bezeichnet wird [Ku 87].

Das verschluckte Plutonium wird in den meisten Fällen nur geringfügig ins Blut übertreten. Bei Bedarf werden alkalisierende Mittel eingenommen, um den pH-Wert im Magen und Darm zu erhöhen; dies hätte eine Hydrolysierung von Pluto-

nium, d. h. Bildung von schlecht resorbierbaren Kolloiden, zur Folge. Hierbei handelt es sich um gängige Substanzen, wie sie auch bei Magenübersäuerung eingenommen werden.

Nach einer Verletzung, die mit Plutonium kontaminiert werden könnte, wird so schnell wie möglich eine wundnahe, venöse Stauung angelegt, die Wunde gründlich ausgespült und ausgemessen. Bei festgestelltem Plutonium wird das kontaminierte Gewebe unter dosimetrischer Kontrolle chirurgisch entfernt.

4.4.2 Stimulierung der Plutoniumausscheidung

Zu diesem Zweck steht ein bewährtes Arzneimittel, die Diäthylentriaminpentaessigsäure (DTPA) zur Verfügung. Die Pharmakologie, Toxizität und Bindung mit Plutonium und verschiedenen anderen Radionukliden werden in Karlsruhe seit mehr als 30 Jahren untersucht [Vo 80], und diesen Forschungsergebnissen ist es auch zu verdanken, daß DTPA in der Bundesrepublik, als einzigem Land der Welt, über jede Apotheke erhältlich ist. DTPA bildet mit Plutonium einen festen Komplex - Chelat, der aus dem Blut, vor allem durch die Niere, ausgeschieden wird; das in der Leber gebildete Plutonium-DTPA wird mit der Galle in den Darm abtransportiert. DTPA wird als Calcium- bzw. Zinkchelate verabreicht, um dem Körper Calcium und einige Spurenmetalle nicht zu entziehen.

Nach einer Injektion von DTPA steigt die Plutoniumausscheidungsrate im Urin in der Regel um das 50- bis 100fache an; die absolute Höhe hängt vom jeweiligen Plutoniumblutspiegel ab. Da dieser mit der Zeit nach Plutoniumaufnahme abnimmt, ist eine Frühbehandlung mit DTPA am wirksamsten. Weil DTPA ein risikoarmes Mittel ist, wird es auch bei bloßem Verdacht auf Plutoniumaufnahme angewandt. DTPA wird in kleinen, therapeutischen Dosen verabreicht, und es trifft deshalb nicht zu, daß es sich um "subtoxische Dosen eines Chelatbildners" handelt [Ku 87].

Das Ziel der Dekorporationstherapie ist eine Herabsetzung der Plutoniumtoxizität, was bisher nur bei Tieren untersucht werden konnte, weil es keine Plutoniumintoxikation beim Menschen gegeben hat. Einige dieser Studien deuten darauf hin, daß die Toxizität von Plutonium nach Behandlung mit DTPA sogar stärker abnimmt als es der Verminderung der Strahlendosis durch erhöhte Pluto-

niumausscheidung entsprechen würde [Jo 86]. Wahrscheinlich wird Plutonium besonders aus der Nähe der für die Krebsbildung wichtigen Zellen entfernt.

4.5 Literatur zu Kapitel 4

- [Be 64] S.A. Beach, G.W. Dolphin; Determination of Plutonium Body Burdens from Measurements of Daily Urine Excretion; Assessment of Radioactivity in Man Vol. II, STI/PUB/84, 603 (Vienna, IAEA)
- [Be 65] Bensted, J.P.M., Taylor, D.M., and Sowby, F.D.; The carcinogenic effects of americium-241 and plutonium-239 in the rat; Br. J. Radiol. 38 (1965) 920-925
- [BEIR 88] Committee on the Biological Effects of Ionizing Radiation (BEIR IV); Health Risks of Radon and Other Internally Deposited Alpha-Emitters; National Research Council, National Academy Press, Washington, D.C. 1988
- [Da 87] Dagle, G.E.; Inhaled plutonium nitrate in dogs. Battelle Pacific Northwest Laboratory Annual Report to the DOE, PNL-6100Pt1 (1987) 21-25
- [Du 72] Durbin, P.W.; Plutonium in man: a new look at the old data. In "Radiobiology of Plutonium" (Ed. B.J. Stover and W.S.S. Jee), Salt Lake City, Utah, The J.W.Press (1972) 469-530
- [He 57] Healy, J.W.; Estimation of plutonium lung burden by urine analysis. Am. Ind. Hyg. Assoc. Quart. 1 (1957) 261-266
- [Hu 86] Hunt, G.J., Leonard, D.R.P., and Lovett, M.B.; Transfer of environmental plutonium and americium across the human gut. Lancet (i) (1986) 439-440
- [ICRP 86] International Commission on Radiological Protection (ICRP). The metabolism of plutonium and related elements, ICRP Publ. 48, Ann. ICRP 16 Parts 2/3 (1986)

- [Jo 85] Jones, S.R.; Derivation and validation of a urinary excretion function for plutonium applicable over tens of years post uptake; *Radiat. Prot. Dosim.* 11 (1985) 19-27
- [Jo 86] Jones, C.W., Mays, C.W., Taylor, G.N., Lloyd, R.D., and Packer, S.M.; Reducing the cancer risk of ^{239}Pu by chelation therapy; *Radiation Research* 107 (1986) 296-306
- [Ku 87] Kuni, H.; Die Gefahr von Strahlenschäden durch Plutonium, Gutachten im Auftrag der Landesregierung Nordrhein-Westfalen; Philipps-Universität Marburg/Lahn (1987)
- [La XX] Langham, W.H.; Metallurgical Project Report CN-3167 (date unknown)
- [La 56] Langham, W.H.; Determination of internally deposited radioactive isotopes from excretion analysis. *Am. Ind. Hyg. Assoc. Quart.* 17 (1956) 305-318
- [La 57] Langham, W.H.; Excretion methods: The application of excretion analyses to the determination of body burden of radioactive isotopes; *Brit. J. Radiol. Suppl.* 7 (1957) 95-113
- [La 59] Langham, W.H.; Physiology and toxicology of plutonium-239 and its industrial medical control; *Health Physics* 2 (1959) 172-185
- [La 80] Langham, W.H., Bassett, W.H., Harris, P.S., and Carter, R.E.; Distribution and excretion of plutonium administered intravenously to man. Los Alamos Scientific Laboratory Report LA-1151 (September 1950). Nachgedruckt in *Health Physics* 38 (1980) 1031-1060
- [Le 87] Leggett, R.W., and Eckerman, K.F.; A method for estimating the systemic burden of Pu from urinalyses; *Health Physics* 52 (1987) 337-346
- [Ma 86] Mays, C.W., Taylor, G.N., and Lloyd, R.D.; Toxicity ratios: their use and abuse in predicting the risk from induced cancer. In *Life-span radiation effects studies in animals: what can they tell us?* (Ed. R.C.

Thompson and J.A. Mahaffey), CONF-830951, OSTI, USDOE (1986) 299-310

- [Mi 86] Miller, S.C., and Buster, D.S.; Research in Radiobiology, University of Utah Report of the Radiobiology Division, COO-119-262 (1986) Appendix A-15
- [Mo 65] Moskalev, Yu.I., Buldakov, L.A., Koshurnikova, N.A., Nifatov, A.P., and Reshetov, G.N.; Combined effect of strontium-90, cerium-144 and plutonium-239 in rats. Radiobiology 5 (1965) 836-841
- [Mu 84] Mussalo-Rauhamaa, H., Jaakola, T., Miettinen, J.K., and Laiho, K.; Plutonium in Finnish Lapps - an estimate of the gastrointestinal absorption of plutonium by man based on a comparison of the plutonium content of Lapps and Southern Finns; Health Physics 46 (1984) 549-559
- [NCRP 65] NCRP-65. Management of Persons Accidentally Contaminated with Radionuclides. National Council on Radiation Protection and Measurements Report No. 65 (1980)
- [Ne 78] Nenot, J.C., Lushbaugh, C.C., Lincoln, T.A., and Elder, W.M.; Manual on Early Medical Treatment of Possible Radiation Injury; International Atomic Energy Agency, Vienna, Safety Series No. 47 (1978)
- [Pa 87] Park, J.F.; Inhaled plutonium oxide in dogs; Battelle Pacific Northwest Laboratory Annual Report to the DOE, PNL-6100 Pt1 (1987) 5-19
- [Ta 83] Taylor, G.N., Mays, C.W., Lloyd, C.W., Gardner, P.A., Talbot, L.R., McFarland, S.S., Pollard, T.A., Atherton, D.R., Van Moorhem, D., Brammer, D., Brammer, T.W., Ayora, G., and Taysum, D.H.; Comparative toxicity of Ra-226, Pu-239, Am-241, Cf-249 and Cf-252 in C57BL/Do black and albino mice; Radiat. Res. 95 (1983) 584-601
- [Ta 86] Taylor, D.M.; The Comparative Carcinogenicity of ²³⁹Pu, ²⁴¹Am, and ²⁴⁴Cm in the Rat. In: "Life span radiation effects studies in animals: what can they tell us? (Ed. R.C. Thompson and J.A. Mahaffey), CONF-830951, OSTI, USDOE (1986) 404-412

- [Ta 89] Taylor, D.M.; The metabolism of plutonium and related elements: ICRP Publ. 48; Radiat. Prot. Dosim. in press (1989)
- [Vo 78] Volf, V.; Treatment of Incorporated Transuranium Elements. International Atomic Energy Agency, Vienna, Technical Reports Series No. 184 (1978)
- [Vo 80] Volf, V.; Dekorporationstherapie: DTPA als Mittel der Wahl; Strahlenschutz in Forschung und Praxis, Band XXI (1980) 136-150, Georg-Thieme-Verlag, Stuttgart
- [Vo 83] Voelz, G.L., Wilkinson, G.S., Acquavella, J.R., Tietjen, G.L., Brackbill, R.N., Reyes, M., and Wiggs, D. L.; An update of epidemiologic studies of plutonium workers; Health Physics 44 (Suppl. 1) (1983) 493-503
- [Wi 87] Wilkinson, G.S., Tietjen, G.L., Wiggs, L.D., Galke, W.A., Acquavella, J.F., Reyes, M., Voelz, G.L., and Waxweiler, R.J.; Mortality among plutonium and other radiation workers at a plutonium weapons facility. Am. J. Epidemiol. 125 (1987) 231-250
- [Wr 86] Wrenn, M.E., Taylor, G.N., Stevens, W., Mays, C.W., Jee, W.S.S., Lloyd, R.D., Atherton, D.R., Bruenger, F.W., Miller, S.C., Smith, J.M., Shabestari, L.R., Woodbury, L.A., and Stover, B.J.; DOE life-span radiation effects studies in experimental animals at University of Utah, Division of Radiobiology. In Life-span radiation effects studies in animals: what can they tell us? (Ed. R.C. Thompson and J.A. Mahaffey), CONF-830951, OSTI, USDOE (1986) 32-52

5 Unfallsituationen und strahlenschutzmedizinische Möglichkeiten

(L. Ohlenschläger)

5.1 Potentielle Strahlenszwischenfälle beim Umgang mit Plutonium

Bei Arbeiten mit Plutonium kann eine ungewollte Strahlenbelastung über drei Expositionspfade auf den Organismus einwirken:

- Kontaminationen der Körperoberfläche mit Strahleneinwirkung auf die Haut,
- Inkorporationen per Inhalation oder Ingestion mit innerer Strahlenbelastung,
- kontaminierte Wunden mit lokaler und/oder innerer Strahlenbelastung.

5.1.1 Plutoniumkontaminationen der Körperoberfläche

Das radioaktive Material kann staubförmig, flüssig oder dampfförmig auf die Körperoberfläche einwirken.

Das zunächst betroffene Organ ist die Haut. Sie bedeckt beim Erwachsenen eine Oberfläche von ca. 1,6 bis 2,0 m² und wiegt durchschnittlich ca. 7 kg. Sie besteht aus:

- Epidermis (Oberhaut)
- Corium (Lederhaut)
- Subcutis (Unterhaut mit Fettgewebe, Talg- und Schweißdrüsen sowie Haare und Nägel als Hautanhangsgebilde.)

Ein Säuremantel der Haut dient zur Verhinderung mikrobiellen Wachstums.

Der biokinetische Zellumsatz der Epidermis liegt zwischen 12 und 26 Tagen, im Mittel bei 17 Tagen. Die durchschnittliche Dicke der Epidermis beträgt 70 bis 150 µm. Die Eindringtiefe der Alphastrahlung bei einer Hautkontamination mit Plutonium ist mit maximal 40 bis 50 µm verhältnismäßig gering und erreicht nicht die strahlensensible Basalzellschicht der Epidermis.

Für die medizinische Einschätzung der Strahlenfolgen einer Kontamination auf die Haut spielt die Permeationskinetik des kontaminierenden Radionuklids eine besondere Rolle. Es kann davon ausgegangen werden, daß die intakte, nicht erkrankte Haut eine ausreichend gute Barriere gegen das Eindringen staubförmiger und wässriger Kontaminationen in den Körper darstellt. Lipoidlösliche Kontaminationen dagegen unterliegen einer stärkeren Permeationskinetik.

Die Strahlenbelastung der Haut nach einer Kontamination mit Plutonium kann wegen der geringen Reichweite der korpuskularen Alphastrahlung als gering angesehen werden, wenn die Kontamination sofort erkannt und beseitigt wird. Gelangt die radioaktive Verschmutzung über eröffnete Lymph- oder Blutgefäße in die Nähe der Basalzellschicht der Epidermis, so würde die hier einwirkende dicht ionisierende Alphastrahlung unter der Annahme eines Kontaminationsdepots von 3,7 kBq eine Dosisleistung von 10 Sv/h ergeben, was zu einer erheblichen Strahlenbelastung der Keimzellschicht führen würde [Mö 72].

Die Gefahren einer Hautkontamination bestehen in der Verbreitung der Substanz sowohl am eigenen Körper als auch in die Umgebung und somit in einer Gefährdung unbeteiligter Personen. Bei Kontaminationen im Gesichtsbereich und bei nicht intakter Haut besteht zusätzlich die Gefahr einer Inkorporation.

Durch zweimal jährlich durchzuführende Belehrungen wird der exponierte Personenkreis über potentielle Gefährdungsmöglichkeiten beim Umgang mit Plutonium informiert. Diese Maßnahme hat zu einer erheblichen Steigerung des Sicherheitsbewußtseins der Arbeitnehmer an ihren Arbeitsplätzen geführt.

Arbeiten mit offenem Plutonium werden in Handschuhboxen mit Unterdruck durchgeführt, die ihrerseits wieder in Räumlichkeiten installiert sind, in denen ebenfalls ein Unterdruck herrscht (Prinzip des Caisson im Caisson). Hierdurch wird ein direkter Kontakt mit Plutonium verhindert.

Gelegentliche Kontaminationen werden beim Ein- und Ausschleusen von plutoniumhaltigem Material beobachtet. In der Regel handelt es sich bei derartigen Vorkommnissen um geringfügige Kontaminationen der Körperoberfläche, die durch ein- oder zweimalige Dekontamination mit Wasser und pH-neutraler Seife beseitigt werden können. Prognostisch kann eine gesundheitliche Gefährdung ausgeschlossen werden.

5.1.2 Inkorporationen beim Umgang mit Plutonium

Inkorporationen per Inhalation oder Ingestion sind bei den bereits geschilderten technischen Sicherheitsbedingungen relativ selten. Sie können entstehen durch direkte Zufuhr des radioaktiven Aerosols beim Ein- und Ausschleusen des radioaktiven Materials an der Handschuhbox. Die indirekte Zufuhr kann erfolgen durch eine Verbreitung der Kontamination von den Händen ins Gesicht bei unachtsamem Verhalten des Arbeitnehmers. Möglichkeiten einer Inkorporation bestehen auch beim unsachgemäßen Ausziehen eines kontaminierten Atemvollschutzanzugs. Ein Teil des inkorporierten Materials gelangt über die Nieren und den Magen-Darm-Trakt wieder zur Ausscheidung, ein anderer Teil wird in Körperorgane, vorwiegend Lungenlymphknoten, Knochen und Leber eingelagert. Besonders strahlenempfindlich sind die proliferationsaktiven Zellgewebe, wie beispielsweise das Dünndarmepithel, das rote Knochenmark und die peri- und endostalen Oberflächen des trabeculären Knochens.

Alle exponierten Arbeitnehmer unterliegen einem breitgefächerten physikalisch-technischen und strahlenschutzmedizinischen Überwachungssystem. Zwischenfälle mit Freisetzungen von Plutonium werden durch die am Arbeitsplatz installierten Meßgeräte rasch erkannt. Die Arbeitnehmer verlassen unmittelbar nach Wahrnehmung der optischen und akustischen Warnsignale den Kontrollbereich und werden anschließend beim technischen Strahlenschutz einer ersten Ausmessung der Körperoberfläche unterzogen. Als nächster Schritt ist eine klinische und laborchemische Untersuchung durch den ermächtigten Arzt vorgesehen, zu deren Umfang auch die Erhebung einer ausführlichen Zwischenfallanamnese zählt. Darüber hinaus werden kurzfristig im Rahmen inkorporationsdiagnostischer Maßnahmen Untersuchungen mittels Ganzkörper- und Lungenstrahlungsmeßgerät veranlaßt. Die Abnahme eines Nasen-Rachen-Abstrichs mit Direktausmessung läßt erste Schlüsse auf das Vorliegen einer Inkorporation zu. Nach radiochemischer Aufarbeitung des Nasen-Rachen-Abstrichs erfolgt eine alphaspektrometrische Untersuchung, deren Ergebnis eine erste prognostische Einschätzung des Zwischenfalls zuläßt.

Für die Behandlung einer Inkorporation mit Plutonium haben sich die Komplexbildner Calcium- und Zink- DTPA (Diäthylentriaminpentaessigsäure) bewährt [Ca 68]. In unklaren Fällen, bei denen sowohl die Messung unter dem Lungenstrahlungsmeßgerät als auch die Ausscheidungsanalysen in 24-Stunden-Urin- und -Fäzesproben sowie die Blutanalysen unter der Nachweisgrenze liegen,

kann die intravenöse Applikation einer DTPA-Infusion zwecks diagnostischer Plutoniumausscheidung weiterhelfen. Bei fehlender Ausscheidung post infusio-nem kann davon ausgegangen werden, daß eine Plutoniuminkorporation nicht stattgefunden hat. Dagegen spricht eine meßbare Plutoniumausscheidungsrate im Urin oder Stuhl nach der DTPA-Infusion für das Vorhandensein eines Pluto-niumdepots im Organismus. Diese Methode der Verabfolgung einer DTPA-Gabe hat sich besonders bei der diagnostischen Abklärung kleiner Plutoniuminkorpo-rationen, die unterhalb der ausscheidungsanalytischen Nachweisgrenze liegen, bewährt.

5.1.3 Wundkontaminationen mit Plutonium

Wunden, die beim Umgang mit offenem Plutonium entstehen, müssen so lange als kontaminiert angesehen werden, bis die Annahme durch eine gezielte Mes-sung an und in der Wunde widerlegt worden ist.

Durch eröffnete Lymphspalten und Blutgefäße kann es im Falle einer Wund-kontamination zu einer schnellen Aszension des radioaktiven Materials in die Blutbahn und zur Ablagerung in den Körper kommen. Die Schnelligkeit der Aszension hängt von der chemisch-physikalischen Beschaffenheit des Materials ab. Bei löslichen und festlöslichen Substanzen erfolgt dieser Vorgang rasch, innerhalb von Minuten, wohingegen unlösliches Material vorwiegend im Wund-bereich deponiert bleibt oder in die regionalen Lymphknoten abgelagert wird. Bei Nichtbeseitigung ist mit einer hohen lokalen Strahlenbelastung in der Wunde oder in den regionalen Lymphknoten zu rechnen.

Nach Eintritt von Plutonium in die Blutbahn findet eine körpereigene Kom-plexierung mit den Eiweißkörpern Transferrin und Ferritin statt. In dieser Form gelangt das Plutonium zur Ablagerung in die Leber und in die Glyko- und Muko-proteine der endostalen und periostalen Trabekeloberflächen [Ei 73].

Die Erstmaßnahmen vor Ort bestehen in der Anlage einer wundnahen Stauung durch den Ersthelfer, anschließend intensivem Spülen der Wunde unter fließendem Wasser und danach Anlegen eines sterilen Verbandes. Unter Bei-behaltung der wundnahen Stauung Transport zu einem Chirurgen, der mit meß-technischer Unterstützung durch den Strahlenschutzingenieur eine schonende

Wundrandexcision in Oberstscher Leitungsanästhesie vornimmt. Das Plutoniumwunddepot ist meßtechnisch mit einem Wundmeßplatz quantitativ und qualitativ gut erfaßbar.

Bei diesem Vorgehen ist in der Regel die Eliminierung des gesamten Wunddepots möglich. Zum Ausschluß einer bereits stattgehabten Inkorporation, z. B. über eröffnete Wund- und Lymphgefäße wegen zu spät angelegter wundnaher Stauung, werden zusätzlich nach dem Eingriff ca. 50 bis 100 ml Blut (aus der Kubitalvene) entnommen und dreimal 24-Stunden-Urin- und -Fäzesproben radiochemisch aufgearbeitet und auf Plutonium analysiert. Das exzidierte Gewebe, welches die vor dem Eingriff gemessene Aktivität enthält, wird ebenfalls einer radiochemischen Aufarbeitung mit nachfolgender Ausmessung auf Aktivität unterzogen. Im Falle einer erhöhten Blut- oder Urinaktivität ist eine medikamentöse Zusatztherapie mit Calcium- oder Zink-DTPA angezeigt.

5.2 Erste-Hilfe-Maßnahmen unter Zugrundelegung eines Dreistufenplans

Durch strahlenschutzmedizinische und strahlenschutzphysikalische Maßnahmen unterliegt der beruflich strahlenexponierte Personenkreis wie kaum eine andere Berufsgruppe einer konsequenten und umfassenden gesundheitlichen Überwachung. Im Gegensatz zu den meisten konventionellen Arbeitsplätzen handelt es sich dabei um ein abgestuftes meßtechnisches Überwachungssystem, welches bereits im Vorfeld medizinischer und inkorporationsdiagnostischer Maßnahmen installiert ist. Daran anschließend folgen Untersuchungen am Menschen selbst, wie Messungen unter dem Ganzkörper- und Lungenstrahlungsmeßgerät sowie ausscheidungsanalytische Untersuchungen auf Plutonium und Transplutoniumelemente. Dadurch wird dem strahlenschutzmedizinischen Bemühen Rechnung getragen, besondere Vorkommnisse am Arbeitsplatz möglichst frühzeitig zu erkennen und zur Vermeidung von Gesundheitsschäden schnelle und gezielte Gegenmaßnahmen einzuleiten.

Zur Optimierung der medizinischen Maßnahmen bei Vorkommnissen im Rahmen des Umgangs mit Plutonium wurde daher bereits 1964 ein Dreistufenplan am Kernforschungszentrum Karlsruhe eingeführt [Oh 68].

Unter besonderer Berücksichtigung von Kommunikation, Information, Kooperation und Koordination war es möglich, unter Mitwirkung des physikalischen Strahlenschutzes und von in Erster Hilfe ausgebildeten Mitarbeitern eine Rettungskette aufzubauen, welche die am Zwischenfall beteiligten Personen unter möglichst geringem Zeitaufwand einer ersten ärztlichen Betreuung zuführt.

5.2.1 Stufe I des Dreistufenplans

Die Stufe I sieht die Durchführung aller Erstmaßnahmen am Ort des Zwischenfalls vor. Entsprechend der Möglichkeit eines kombinierten Ereignisses aus Strahlenunfall und konventioneller Verletzung wird in der Stufe I sowohl der Einsatz eines Strahlenschutzingenieurs als auch der eines in erweiterter Erster Hilfe ausgebildeten Mitarbeiters erforderlich.

Als Erstmaßnahmen stehen an:

- Ausmessung der Körperoberfläche des oder der Beteiligten mit Hilfe eines Großflächenproportionalzählers;
- Abnahme eines Wischtestes mit nachfolgender Analyse des Isotopengemischs;
- Auswertung des Luftfilters im Hinblick auf eine Raumluftkontamination sowie alphaspektrometische Abklärung der Zusammensetzung der Plutoniumisotope;
- Eintrag aller Erstbefunde in ein Begleitformular, welches in der zweiten Stufe der Betreuung dem ermächtigten Arzt ausgehändigt wird;
- bei Wunden, die sich der Arbeitnehmer während des Umgangs mit offenen radioaktiven Stoffen zugezogen hat, sofortige Anlage einer wundnahen Stauung durch den Ersthelfer und nachfolgende ausgiebige Spülung der Wunde unter fließendem Wasser unter Anleitung des Ersthelfers;
- Ablegen bzw. Auswechseln der kontaminierten Arbeitskleidung vor dem Transport zur Vermeidung einer Verbreitung der Kontamination;
- Abdecken kontaminierter Körperstellen wie z. B. der Hände, des behaarten Kopfes oder der Füße, wenn ein Wechseln des Schuhwerks nicht möglich ist. Empfohlen wird das Tragen von Einmalhandschuhen bei kontaminierten Händen, das Tragen einer Einmalkopfbedeckung oder das Tragen von Plastiküberschuhen;

- nach Beendigung der Erstmaßnahmen erfolgt, wenn erforderlich und nach vorheriger telefonischer Information, der Transport der am Zwischenfall beteiligten Personen zu einer Strahlenunfallambulanz.

5.2.2 Stufe II des Dreistufenplans

Die zweite Stufe sieht die erste ausführliche strahlenschutzärztliche Betreuung der am Zwischenfall beteiligten Personen vor. Die Maßnahmen beginnen mit der Erhebung einer genauen Zwischenfallanamnese, in der Ort und Zeitpunkt des Geschehens sowie die Ankunft in der Strahlenunfallambulanz aufgezeichnet werden.

Daran anschließend folgt die Ausmessung der Körperoberfläche mit einem Großflächenproportionalzähler. Bei Gesichtskontaminationen wird zusätzlich ein Nasen- und Rachenabstrich erforderlich, der zunächst mit Hilfe des Großflächenproportionalzählers direkt ausgemessen wird. Bei Verdacht auf ein positives Meßergebnis schließt sich eine Untersuchung unter dem Ganzkörper- und Lungenstrahlungsmeßgerät an. Darüber hinaus wird eine radiochemische Aufarbeitung des Tupfermaterials unverzüglich veranlaßt. Ein Vorabergebnis ist günstigenfalls nach etwa drei bis vier Stunden möglich.

Zur weiteren Abklärung einer Inkorporation mit Plutoniumisotopen erfolgen Plutoniumanalysen in 24-Stunden-Urin- und -Fäzesproben. Analysen von Gewebsexzidaten und Blut auf Plutonium können zusätzlich indiziert sein.

Die am Zwischenfall beteiligten Personen werden bis zur Fertigstellung dieser Analysen für den weiteren Umgang mit offenen radioaktiven Substanzen gesperrt, um erneute Aktivitätszufuhren, die zu einer erschwerten Abschätzung der Inkorporation führen, zu vermeiden.

5.2.3 Stufe III des Dreistufenplans

Die dritte Stufe ist vorgesehen für schwer Strahlenbelastete, die zur Abklärung der Diagnose und Durchführung einer länger dauernden Behandlung stationär

aufgenommen werden müssen. Zu diesem Zweck wurden spezielle Krankenhäuser benannt, die sowohl die räumlichen als auch personellen Voraussetzungen zu einer stationären diagnostischen Abklärung mit anschließender Therapie erfüllen. Die Inanspruchnahme dieser Einrichtungen durch schwer Strahlenbelastete nach massiver Plutoniuminkorporation ist in der Bundesrepublik bisher nicht notwendig gewesen.

Der Dreistufenplan wurde 1979 von den Berufsgenossenschaften übernommen und überregional bundesweit realisiert [BG 79]. Der Plan sieht vor, daß die Erste Hilfe bei Zwischenfällen, die sich beim Umgang mit offenen radioaktiven Substanzen ereignen, von dem für die Institution zuständigen Vertragsarzt (ermächtigter Arzt für Strahlenschutz) und seinen Mitarbeitern vorgenommen wird.

Zur Klärung weitergehender Fragen, z. B. im Rahmen der Inkorporationsdiagnostik und Therapie von Inkorporationen, haben die Berufsgenossenschaften als Stufe II ihres Planes insgesamt acht regionale Strahlenschutzzentren in der Bundesrepublik Deutschland benannt.

5.2.4 Regionale Strahlenschutzzentren

Regionales Strahlenschutzzentrum
Abt. Strahlentherapie und Abt. Nuklearmedizin
im Allgemeinen Krankenhaus St. Georg
2000 Hamburg 1, Lohmühlenstr. 5
Telefon: 040/2488-2371 von 8.00 Uhr bis 16.00 Uhr
040/2488-2362 "
040/2488-2256 von 16.00 Uhr bis 8.00 Uhr

Regionales Strahlenschutzzentrum
Klinikum Steglitz der Freien Universität Berlin
Abteilung für Nuklearmedizin
1000 Berlin 45, Hindenburgdamm 30
Telefon: 030/798-3992 und -2845

Regionales Strahlenschutzzentrum
Medizinische Hochschule Hannover
Abt. IV: Nuklearmedizin und spezielle Biophysik
3000 Hannover 61, Konstanty-Gutschow-Str. 8
Telefon: 0511/532-3197

Regionales Strahlenschutzzentrum
Institut für Medizin der Kernforschungsanlage Jülich GmbH
5170 Jülich 1, Postfach 19 13
Telefon: 02461/61-5763, -5852, -5222

Regionales Strahlenschutzzentrum
Abteilung für Nuklearmedizin der Radiologischen Klinik
- Universitätskliniken im Landeskrankenhaus -
6650 Homburg/Saar, Postfach
Telefon: 06841/16-2201 Montag bis Freitag von 8.00 Uhr bis 17.30 Uhr
06841/16-3305 zu allen übrigen Zeiten

Regionales Strahlenschutzzentrum
Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
7500 Karlsruhe 1, Postfach 36 40
Telefon: 07247/82-3333

Regionales Strahlenschutzzentrum
Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung GmbH
8042 Neuherberg/München, Ingolstädter Landstraße 1
Telefon: 089/3187-333

Regionales Strahlenschutzzentrum
Städtisches Krankenhaus Schwabing
Abteilung Strahlentherapie
8000 München 40, Kölner Platz 1
Telefon: 089/3068-541, -444

Aufgrund ihrer personellen und apparativen Infrastruktur sind diese Zentren in der Lage, den vor Ort tätigen Strahlenschutzarzt beratend und, wenn erforderlich, auch bei der Durchführung diagnostischer und therapeutischer Maßnahmen zu unterstützen. Diese Vorgehensweise hat sich bewährt.

Für die Diagnostik und Therapie von schwer Strahlenbelasteten sieht der berufsgenossenschaftliche Plan in der Stufe III die Aufnahme dieser Patienten in ein für die Bundesrepublik zuständiges Krankenhaus vor. Hierfür wurde das Berufsgenossenschaftliche Krankenhaus, Spezialabteilung für Schwere Verbrennungen, in Ludwigshafen-Oggersheim, benannt. Am 1.7.1988 war die Grundsteinlegung für eine neue Spezialstation, die die Patientenversorgung nach einem begrenzten betrieblichen Störfall in der Nuklearindustrie weiter verbessert. Diese Spezialabteilung soll 1990 in Betrieb genommen werden [Ve 88].

Die bauliche Konzeption beinhaltet alle modernen Erkenntnisse, die für die Diagnostik, Therapie und Pflege von schwer Strahlenbelasteten erforderlich sind. Der Erweiterungstrakt wird neben 29 Zweibettzimmern einen Bereich für die Ausmessung und Nachmessung kontaminierter Personen, Personalschleusen, einen Operationsraum sowie ein bakteriologisches Labor enthalten. Eine Unter-

bringung der schwer Strahlenbelasteten in keimfreien Räumen ist vorgesehen. Ebenso wird die Möglichkeit, die Kontaminationen nach Nuklid und Intensität zu messen, zu analysieren, zu lokalisieren und zu dekontaminieren, bestehen. Entsprechend der komplexen Symptomatologie bei einer schweren Strahlenschädigung ist für Diagnostik und Therapie die ad hoc-Einberufung eines interdisziplinären Expertenteams geplant.

Nach Fertigstellung der Spezialstation sind in der Bundesrepublik alle Voraussetzungen für eine erfolgreiche Behandlung schwer Strahlenbelasteter durch Ausschöpfung aller diagnostischen und therapeutischen Maßnahmen geschaffen.

5.3 Bewertung der strahlenschutzmedizinischen Möglichkeiten bei Unfallsituationen

Die Erfahrungen haben gezeigt, daß bei Nutzung aller vorhandenen technischen und organisatorischen Potentiale eine optimale Prävention gegenüber einer unkontrollierten Plutoniumzufuhr erzielt werden kann. Damit wird dem Schutzgedanken vor der Gefahr einer gesundheitlichen Schädigung durch ionisierende Strahlen Rechnung getragen.

Strahlenschutzmedizin und Arbeitssicherheit haben zu einer erheblichen Steigerung des Sicherheitsbewußtseins und damit auch zu einer Verringerung der Zahl von Kontaminationen und Inkorporationen geführt. Tabelle 5.1 zeigt die Anzahl der im KfK in der Zeit von 1965 bis 1988 registrierten Vorkommnisse sowie der an Kontaminationen und Inkorporationen beteiligten Personen. Details der Ergebnisse der Inkorporationsüberwachung enthält in Kapitel 3.4 die Tabelle 3.4.16.

Aus der Tabelle 5.1 geht hervor, daß die Gesamtzahl der grenzwertüberschreitenden Inkorporationen (15 Fälle) bezogen auf die Gesamtzahl der aus den Jahren 1965 bis 1988 resultierenden Personen mit Inkorporationsverdacht (1031) 1,5 % beträgt. Bei zwölf Personen (1,2 %) lag die Überschreitung in einem Bereich von 100 bis 200 Prozent, bei drei Personen (0,3 %) ergab sich eine Überschreitung zwischen 200 und 300 Prozent des Grenzwertes der Jahresaktivitätszufuhr für inhaliertes Plutonium. Eine Überschreitung des Grenzwertes der Jahresdosis für beruflich strahlenexponierte Personen ist damit nicht verbunden (siehe Kapitel 3.4.3).

Die Anzahl der Personen, bei denen eine Überschreitung des Grenzwertes der Jahresaktivitätszufuhr für inhaliertes Plutonium festgestellt wurde, ist, bezogen auf ein Kollektiv von durchschnittlich 400 plutoniumexponierten Arbeitnehmern pro Jahr, als außerordentlich gering einzustufen.

	1965-1974	1975-1988
Vorkommnisse	223	488
Kontaminationen ⁺ (Zahl der Personen)	1451 *	443 *
Inkorporationsverdacht (Zahl der Personen)	445	586
davon Überschreitung des Grenzwerts der Jahresaktivitätszufuhr bis zum 2fachen	4 **	8
bis zum 3fachen	0	3

+ für Kontaminationen sieht die Strahlenschutzverordnung keine Grenzwerte vor

* einschließlich Mitarbeitern von Gastinstitutionen

** Inkorporationen, die nach der Strahlenschutzverordnung von 1976 als Überschreitungen einzustufen sind

Tab. 5.1: Plutonium-Kontaminationen und -Inkorporationen von 1965 bis 1988 bei Mitarbeitern des Kernforschungszentrums Karlsruhe (durchschnittlich 400 exponierte Personen/Jahr)

Die Anzahl der Personen mit Plutoniumkontaminationen ohne Inkorporation betrug für den Zeitraum von 1965 bis 1988 1894. Es handelte sich dabei überwiegend um geringfügige radioaktive Verunreinigungen der Körperoberfläche, die durch einfache Dekontaminationsmaßnahmen mit Wasser und pH-neutraler Seife nach im Mittel zwei bis drei Waschungen wieder beseitigt werden konnten.

Eine erste grobe Sichtung der klinischen und Laborbefunde des seit zwanzig Jahren mit Plutonium umgehenden Personenkreises läßt keine signifikanten Befundänderungen erkennen, die mit der speziellen Tätigkeit der Arbeitnehmer in Verbindung gebracht werden könnten. Diese Feststellung gilt nur für eine Bewertung der vorliegenden Befunde im Hinblick auf nicht stochastische Strahlenschäden nach langjährigem Umgang mit Plutonium. Die Kausalität zwischen stochastischen Strahlenschäden nach Umgang mit Plutonium bleibt in diesem Zusammenhang außer Betracht. Sie bedarf einer umfangreichen zusätzlichen epidemiologischen Untersuchung, welche sich auf eine nationale Plutoniumregistrator stützen müßte.

5.4 Literatur zu Kapitel 5

- [BG 79] Merkblatt Erste Hilfe bei erhöhter Einwirkung ionisierender Strahlen; herausgegeben vom Hauptverband der gewerblichen Berufsgenossenschaften e. V., Bonn (Oktober 1979); Carl Heymanns-Verlag KG, Köln, ZH 1/546
- [Ca 68] A. Catsch; Dekorporierung radioaktiver und stabiler Metallionen; Verlag Karl Thiemig KG, München (1968)
- [Ei 73] O. Eichler, A. Farah, H. Herken, A.D. Welch (Editorial Board); Handbook of Experimental Pharmacology, Heffter-Heubner New Series, XXXVI: H.C. Hodge; J.N. Stannard, J.B. Hursh (Eds.); Uranium, Plutonium, Transplutonic Elements; Springer-Verlag, Berlin (1973)
- [Mo 72] G. Möhrle (Hrsg.); Erste Hilfe bei Strahlenunfällen; Schriftenreihe Arbeitsmedizin, Sozialmedizin, Arbeitshygiene, Band 47; A.W. Gentner-Verlag, Stuttgart (1972)
- [Oh 68] L. Ohlenschläger; Beitrag zur chirurgischen Versorgung radioaktiv kontaminierter Wunden; Schriftenreihe Arbeitsmedizin, Sozialmedizin, Arbeitshygiene, Band 24; A.W. Gentner-Verlag, Stuttgart (1968)
- [Ve 88] C.M. von Velsen; Vorsorge für Strahlenverletzte; Neue Spezialstation in der BG-Unfallklinik Ludwigshafen; in: Zeitschrift "Rettungsdienst" 11 (1988) S. 349-351