

Abschätzung der Plutonium-241 Aktivität in der Umwelt aus der spezifischen Aktivität des Americium-241 bei einer Freisetzung von Plutonium während der Wiederaufarbeitung von Brennelementen

Bernd Laquai, 22.7.2021, Update 24.7.2021

Wie bei anderen nukleartechnischen Prozessen kann es auch bei der Wiederaufarbeitung von abgebrannten Brennelementen zu Unfällen kommen. Insbesondere das Auflösen der zerkleinerten Brennelemente gilt als besonders störanfällig. Dabei werden die zerkleinerten Brennelemente im sogenannten Auflöser in kochender Salpeterlösung aufgelöst, wobei eine hochaggressive und hochaktive Lösung entsteht, die neben unzähligen Spaltprodukten auch Transurane enthält, welche beim Abbrand im Reaktor durch Neutroneneinfang aus Uran über mehrere Stufen entstanden sind /1/. Unter diesen Transuranen befinden sich auch wieder spaltbare Substanzen, wie z.B. das Plutonium, deren Gewinnung das Ziel bei der Wiederaufarbeitung sind. Die Entstehung von spaltbaren Materialien aus dem Uran-238 durch Neutroneneinfang über eine Kette von Zwischennukliden bezeichnet man auch als Brutreaktion. Die Aggressivität der hochkonzentrierten salpetersauren Lösung im Auflöser führt unter anderem zu Korrosionsproblemen, daher gilt dieser Prozessschritt als besonders kritisch. In der Vergangenheit kam es immer wieder zu Unfällen mit Freisetzungen solcher hoch-radioaktiven Lösungen aus dem Auflöser von Wiederaufarbeitungsanlagen /6/, /7/.

Ein solcher Auflöser-Störfall wurde auch von der Wiederaufarbeitungsanlage in Karlsruhe (WAK) des dort beheimateten Kernforschungszentrums Karlsruhe (KfK) aus dem Jahre 1980 berichtet. Da erst kürzlich in der Umgebung des Kernforschungszentrums Americium-241 nachgewiesen wurde besteht der Verdacht, dass dieses Americium nicht unmittelbar freigesetzt wurde, sondern erst in der Umwelt aus dem bei dem Auflöser-Störfall freigesetztem Plutonium-241 entstand. Ziel dieser Betrachtung ist die rechnerische Abschätzung der Aktivitätskonzentration des ursprünglich freigesetzten Plutonium-241 aus dem heute noch nachweisbaren Americium-241 sowie die heute noch vorhandene Aktivität des Plutonium-241, das nur schwer nachweisbar ist.

Während die Spaltprodukte im Auflöser-Konzentrat oft sehr kurzlebige Radionuklide sind, die zwar hoch-aktiv und damit auch sehr radiotoxisch sind, aber doch auch relativ schnell wieder zerfallen, enthält die salpetersaure Lösung auch Radionuklide, welche über Zerfallsketten sehr langlebige und ökologisch sehr problematische Zerfallsprodukte generieren. Ein solches Zerfallsprodukt ist das Americium-241 (Halbwertszeit 432 Jahre), welches aus dem Plutonium-241 (Halbwertszeit 14,5 Jahre) durch einen Beta-Minus Zerfall entsteht. Wird also das sehr schwer nachweisbare Plutonium-241 in die Umwelt freigesetzt, besteht die Gefahr, dass sich nach der Freisetzung in die Umwelt das Plutonium-241 in das viel längerlebige Americium-241 umwandelt. Das Plutonium-241 ist ein reiner Betastrahler mit einer sehr schwachen mittleren Strahlungsenergie von nur 5,2keV. Es kann daher nur mit aufwändigen Methoden wie beispielsweise einer Flüssigszintillationsspektrometrie nachgewiesen werden /2/. Das Plutonium-241 entsteht in Kernreaktoren aus dem Uran-238 im angereicherten Natururan durch den fortlaufenden Einfang von Neutronen. Über das Neptunium-237 bis Neptunium-240 und das Plutonium-238 bis zum Plutonium-240 entsteht es auf verschiedenen Pfaden durch n, γ -Reaktionen /3/. Das Americium-241 hat eine hohe Radiotoxizität, da es sowohl ein Alphastrahler ist als auch eine durchdringende Gammastrahlung abgibt.

Das Tochternuklid Am-241 steht während seines Zerfalls auf Grund der sehr viel längeren Halbwertszeit nicht in einem Gleichgewicht zu seinem Mutternuklid Pu-241. Dennoch können die verketteten Zerfallsgleichungen ähnlich wie bei Gleichgewichtsberechnung verwendet werden um so

die Aktivität des schwer nachweisbaren Pu-241 indirekt aus dem über die Gammastrahlung leicht nachweisbaren Am-241 abzuschätzen. Dazu wird aus der einfach messbaren momentanen Aktivität des Am-241 mit Hilfe der verketteten Zerfallsgleichungen zunächst die momentane Aktivität des Pu-241 bestimmt werden. Damit kann dann auch mit Hilfe der normalen Zerfallsgleichung auf die ursprünglich freigesetzte Pu-241 Aktivität zurückgerechnet werden.

Die Lösung von über Zerfallsketten verknüpften Zerfallsgleichungen verschiedener Generationen von Radionukliden ist beispielsweise in /4/ beschrieben. Ein einfacher Fall entsteht bei nur einem instabilen Tochternuklid. Ist $A_0(t)$ die Aktivität des Mutternuklids und $A_1(t)$ die Aktivität des Tochternuklids, dann ergibt sich für die Lösungen der Zerfallsgleichungen:

$$A_0(t) = A_0 \cdot e^{-\lambda_0 \cdot t}$$

$$A_1(t) = A_0(t) \cdot \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} \cdot (1 - e^{-(\lambda_1 - \lambda_0) \cdot t})$$

Hierin sind λ_0 und λ_1 die Zerfallskonstanten von Mutter- und Tochternuklid. Die Zerfallskonstante λ kann auch mit der Halbwertszeit angegeben werden: $\lambda = \ln(2) / T_{1/2}$. Umgekehrt kann man mit der Aktivität des Tochternuklids $A_1(t)$ zu einem Zeitpunkt auch die die Aktivität des Mutternuklids $A_0(t)$ bestimmen:

$$A_0(t) = \frac{A_1(t)}{\frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} \cdot (1 - e^{-(\lambda_1 - \lambda_0) \cdot t})}$$

Mit der Halbwertszeit des Pu-241 von 14.3 Jahren und der Halbwertszeit des Am-241 von 432.6 Jahren kann nun beispielsweise ausgehend von einer momentan gemessenen Am-241 Aktivität von beispielsweise $A_1(t=40 \text{ Jahre}) = 500 \text{ Bq/kg}$ 40 Jahre nach Freisetzung eine Aktivität des Mutternuklids von $A_0(t=40 \text{ Jahre}) = 2650 \text{ Bq/kg}$ bestimmt werden.

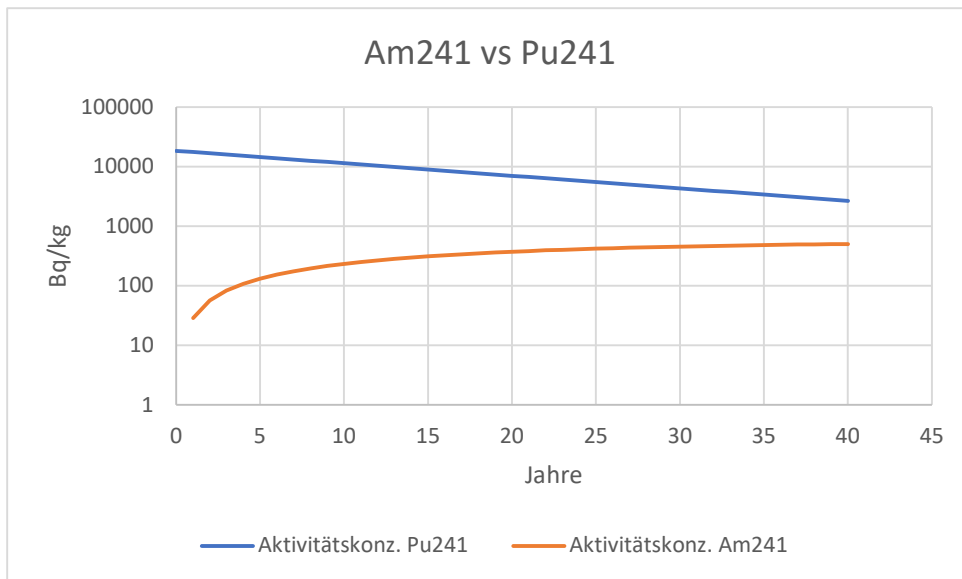
Mit:

$$A_0 = \frac{A_0(t)}{e^{-\lambda_0 \cdot t}}$$

kann dann schließlich auch die Anfangsaktivität A_0 bei Freisetzung des Pu-241 in Höhe von $A_0 = 18419 \text{ Bq/kg}$ von bestimmt werden.

Mit einem Excel Spreadsheet kann der Sachverhalt auch grafisch über der Zeit dargestellt werden. Man erkennt daran, wie sich die Am-241 Aktivität allmählich aufbaut, während die Aktivität des Pu-241 abnimmt. Eine messbare Aktivität von 500 Bq/kg an Am-241 infolge eines Störfalls, bei dem Pu-241 freigesetzt wurde folgt also, dass auch noch eine Pu-241 Rest-Aktivität von 2650 Bq/kg vorhanden sein muss, wenn der Störfall vor 40 Jahren eingetreten ist und damals 18419 Bq/kg an Pu-241 freigesetzt wurden.

Allerdings setzt diese Annahme voraus, dass ursprünglich kein Am-241 freigesetzt wurde (Anfangskonzentration des Am-241 = 0) und das Am-241 ausschließlich nach der Freisetzung aus dem Pu-241 entstand. War dies nicht der Fall müsste der Zerfall dieser Anfangskonzentration an Am-241 separat behandelt werden und die Rest-Aktivität nach 40 Jahren bei der obigen Rechnung entsprechend berücksichtigt werden.



Kennt man nun die Anfangskonzentration des Pu-241 bei Freisetzung, können im Falle eines Auflöser-Störfalls die übrigen Pu-Isotope aus dem typischen Isotopenverhältnis eines abgebrannten Brennelements, das der Wiederaufbereitung zugeführt wird, bestimmt werden. In /2/ ist das charakteristische Aktivitätsverhältnis der Plutoniumisotope für ein abgebranntes Brennelement genannt:

Pu-241 : Pu-240 : Pu-239 : Pu-238 haben die Aktivitäten von:

103000Ci : 48Ci : 32Ci : 307Ci . Dabei entspricht 1Ci 37GBq. Über die spezifischen Aktivitäten der jeweiligen Plutoniumisotope von:

3.83298E+12Bq/kg : 8.41E+09Bq/kg : 2.30E+09Bq/kg : 6.34E+11Bq/kg

lässt sich daraus ein auf das Pu-241 normiertes Massenverhältnis der Isotope bestimmen:

1.00 : 2.15 : 5.23 : 0.18

Ist daher die Aktivität des Pu-241 bei der Freisetzung bekannt, können so auch zunächst die einzelnen Massen und damit dann auch die Aktivität der übrigen Pu-Isotope zum Zeitpunkt der Freisetzung bestimmt werden. Die Aktivitäten zum Zeitpunkt der Freisetzung bei einer Anfangsaktivität des Pu-241 von 18419Bq/kg betragen im obigen Beispiel bei dem genannten Massenverhältnis der Isotopen dann für Pu-241 : Pu-240 : Pu-239 : Pu-238

18419Bq/kg : 86.7Bq/kg : 57.8 Bq/kg : 549Bq/kg zum Zeitpunkt der Freisetzung und

2660.6Bq/kg : 86.4Bq/kg : 57.7Bq/kg : 400.2Bq/kg nach 40 Jahren.

Bei dieser Betrachtung wird klar, dass auf Grund der kurzen Halbwertszeit des Pu-241 die Aktivität dieses Isotops im Vordergrund steht, besonders in Anbetracht der Tatsache, dass sich dieses Pu-241 in der Umwelt allmählich in das ökologisch weitaus kritischere Am-241 umwandelt.

Es muss aber erwähnt werden, dass im Falle des in Karlsruhe am Hirschgraben gefundenen Am-241, die Annahme des Auflöser-Störfalls eine Worst-Case Annahme darstellt und nur gerechtfertigt ist, solange die Ergebnisse der vollständigen Pu-Analyse inklusive des Pu-241 nicht vorliegen. Es wäre ebenso eine andere Ursache für das Auftreten des Am-241 am Hirschgraben möglich, bei dem zum Beispiel nur sehr wenig Plutonium freigesetzt wurde, sondern vor allem das Am-241, das dann in 40 Jahren auf Grund seiner langen Halbwertszeit nur sehr wenig zerfallen ist. Die Mobilität des

Americiums (und auch des Plutoniums) in der Umwelt spielt natürlich auch eine Rolle und müsste bei einer genaueren Betrachtung ebenfalls eine Berücksichtigung finden.

/1/ E. Merz und R. Nowak; Entsorgung radioaktiver Abfälle, Verwaform hochaktiver Abfälle aus der Wiederaufarbeitung, Gesellschaft für Reaktorsicherheit, GRS-66; Oktober 1987

/2/ J. M. Godoy, H. Schüttelkopf, M. Pimpl; Die Bestimmung von Pu-241 durch Flüssigszintillationsspektrometrie in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe; KfK 3531 April 1983

/3/ Tanja Bisinger; Bestimmung von Plutonium-Isotopen in der Umwelt mittels Alphaspektrometrie und AMS; Dissertation an der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover; 2009

/4/ Hanno Krieger, Grundlagen der Strahlungsphysik und des Strahlenschutzes, Springer Verlag; 2012

/5/ Opegeiger.de Die Causa Hirschgraben

<http://opengeiger.de/GeigerCaching/Hirschgraben/Hirschgraben.html>

/6/ Report of the investigation into the leak of dissolver product liquor at the Thermal Oxide Reprocessing Plant (THORP), Sellafield, notified to HSE on 20 April 2005; Health and Safety Executive, Sheffield, UK

/7/ The Radiological Accident in the Reprocessing Plant At Tomsk; IAEA 1998