

# **Verfahren zur alphaspektrometrischen Bestimmung von Plutoniumisotopen in Trinkwasser und Grundwasser**

H- $\alpha$ -SPEKT-TWASS-03

Bearbeiter:

Th. Bünger  
H. U. Fusban  
I. Gans  
H. Rühle

Leitstelle für Trinkwasser, Grundwasser, Abwasser, Klärschlamm,  
Reststoffe und Abfälle, Abwasser aus kerntechnischen Anlagen

ISSN 1865-8725

Version September 1992

Messanleitungen für die „Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und externer Strahlung“

# 6 Verfahren zur alphaspektrometrischen Bestimmung von Plutoniumisotopen in Trinkwasser und Grundwasser

## 1 Anwendbarkeit

Die Methode dient zur Bestimmung der Plutoniumisotope Pu-238 und Pu-239 + Pu-240 nebeneinander in Trink- und Grundwasser. Sinngemäß läßt sich das Verfahren auch auf andere Wässer, wie z. B. Rohwasser in Wasserwerken, Quell- und Sickerwasser, usw. übertragen. Diese Vorschrift entspricht im wesentlichen der Vorschrift H- $\alpha$ -SPEKT-AWASS-03 für Abwasser. Bei sehr elektrolytreichen Wässern (z. B. Sickerwässer von Deponien mit spezifischen Leitfähigkeiten  $> 2000 \mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$ ) ist mit geringeren chemischen Ausbeuten gegenüber Trinkwasser zu rechnen.

## 2 Probeentnahme

Ein hinreichendes Volumen des Probenwassers (im Normalfall 1 bis 5 l) wird repräsentativ entnommen. Nähere Angaben zur Probenauswahl und zur Probeentnahme sind der Vorschrift H- $\gamma$ -SPEKT-TWASS-01 zu entnehmen. Die Wasserproben werden zur Stabilisierung mit etwa 1 ml Salpetersäure ( $14 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) pro Liter Wasser angesäuert und können in verschlossenen Polyethylenbehältern bis zur Weiterverarbeitung gelagert werden.

## 3 Analytik

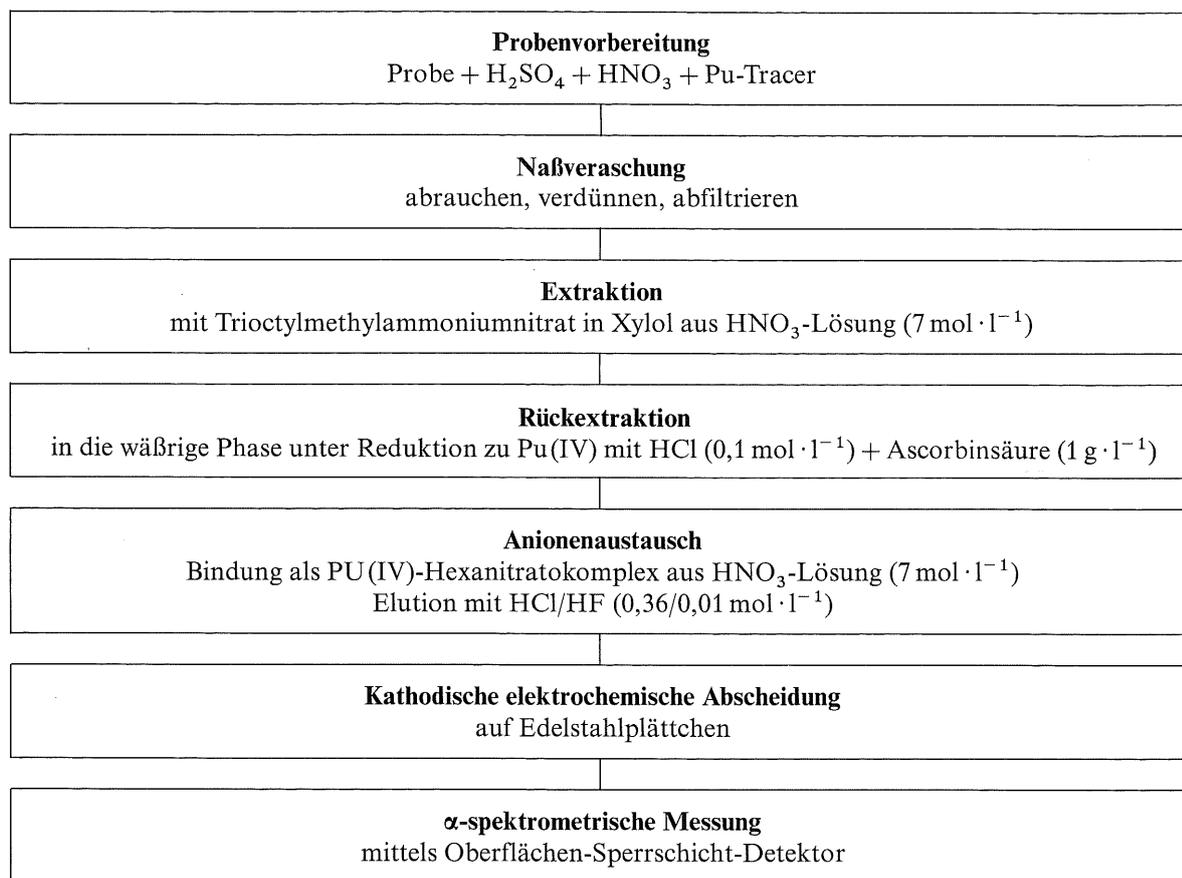
### 3.1 Prinzip der Methode

Das Prinzip der Methode ist schematisch in Abb. 1 dargestellt. Plutonium wird zusammen mit Uran aus salpetersaurer Lösung mittels Trioctylmethylammoniumnitrat extrahiert, anschließend durch Anionenaustausch als Hexanitratokomplex isoliert und von Begleitelementen (z. B. Uran, Thorium, Eisen) befreit. Die Aktivität wird durch  $\alpha$ -spektrometrische Messung von Dünnschichtpräparaten, die durch elektrochemische Abscheidung des Plutoniums in hydroxidischer Form auf Edelstahlplättchen erhalten werden, ermittelt. Zur Bestimmung der chemischen Ausbeute an Plutonium wird als Tracer Pu-236 oder Pu-242 bekannter Aktivität zugesetzt.

### Anmerkungen

Aufgrund des begrenzten Energieauflösungsvermögens bei der  $\alpha$ -Spektrometrie (Halbwertsbreite etwa 50 keV) ist es nicht möglich, die Linien der Plutoniumisotope Pu-239 ( $E_{\alpha} = 5,157 \text{ MeV}$ ) und Pu-240 ( $E_{\alpha} = 5,168 \text{ MeV}$ ) getrennt auszuwerten. Angegeben wird deshalb stets die Summe aus Pu-239 und Pu-240.

Steht Pu-242 als Tracer zur Verfügung, so ist dieses dem Pu-236 vorzuziehen, da die Pu-242-Linie bei niedrigerer Energie als die  $\alpha$ -Energie sowohl des Pu-238 als auch des



**Abb. 1:** Prinzip der Bestimmung von Plutoniumisotopen im Trinkwasser

Pu-239 + Pu-240 liegt und somit ein störender Einfluß der Pu-236-Linie infolge von Tailing-Effekten ausgeschlossen werden kann.

Pu-236 enthält als Verunreinigung häufig Pu-238 in geringer Aktivitätskonzentration, dessen Anteil bei der Ermittlung des Pu-238-Gehaltes der Probe gegebenenfalls rechnerisch korrigiert werden muß.

### 3.2 Probenvorbereitung

Die Probe wird mit etwa 0,3 Bq Pu-236-Tracer, 5 ml Schwefelsäure (18 mol · l<sup>-1</sup>) und 10 ml Salpetersäure (14 mol · l<sup>-1</sup>) versetzt, eingedampft und bis zur Trockene abgeraucht. Der abgekühlte Rückstand wird mit 2 ml Schwefelsäure (18 mol · l<sup>-1</sup>) und 5 ml Salpetersäure (14 mol · l<sup>-1</sup>) versetzt und erneut zur Trockene abgeraucht. Dieser Schritt ist so oft zu wiederholen, bis der Rückstand keine organischen Bestandteile mehr enthält. Die Weiterverarbeitung erfolgt nach H- $\alpha$ -SPEKT-AWASS-03.

## 4 Messung der Aktivität

Zur Messung der Aktivität wird auf die Vorschrift H- $\alpha$ -SPEKT-AWASS-03 verwiesen.

## 5 Berechnung der Analysenergebnisse

Die Berechnung der Aktivitätskonzentration der einzelnen Plutoniumisotope  $c_r$  erfolgt nach Gleichung (1):

$$c_r = \frac{\varphi_A}{V \cdot \eta \cdot p_{\alpha r}} \cdot (R_b - R_o) \quad (1)$$

Darin bedeuten:

$c_r$  = Aktivitätskonzentration des Pu-Isotops r in  $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$

$\varphi_A$  = Kalibrierfaktor in  $\text{Bq} \cdot \text{s}$

V = eingesetztes Probenvolumen in l

$\eta$  = chemische Ausbeute; Zahl < 1

$p_{\alpha r}$  = Emissionswahrscheinlichkeit der  $\alpha$ -Strahlung des Nuklids r

$R_b$  = Bruttozählrate im Bereich der Linie bei  $E_\alpha$  in  $\text{s}^{-1}$

$R_o$  = Mittlere Nulleffektzählrate im Bereich der Linienfußbreite bei  $E_\alpha$  in  $\text{s}^{-1}$

### 5.1 Rechenbeispiel

Bei der Bestimmung des Plutoniumgehaltes einer Wasserprobe liegen folgende Daten vor (konstruiertes Beispiel):

$$\varphi_A = 5,46 \text{ Bq} \cdot \text{s}$$

$$\eta = 0,581 \text{ (58,1 \%)}$$

$$V = 51$$

$$p_{\alpha r} = 1,0$$

$$t_m = 72\,370 \text{ s}$$

$$R_o = 1,03 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1} \text{ im Bereich der Pu-238-Linie}$$

$$R_o = 8,83 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1} \text{ im Bereich der Pu-239 + Pu-240-Linie}$$

$$R_b = 1,603 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1} \text{ im Bereich der Pu-238-Linie}$$

$$R_b = 5,11 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1} \text{ im Bereich der Pu-239 + Pu-240-Linie}$$

$$R_n = 1,50 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1} \text{ im Bereich der Pu-238-Linie}$$

$$R_n = 4,23 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1} \text{ im Bereich der Pu-239 + Pu-240-Linie}$$

Damit ergeben sich für die Pu-Isotope nach Gleichung (1) folgende hypothetischen Aktivitätskonzentrationswerte:

$$c_{\text{Pu-238}} = 2,8 \cdot 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$$

$$c_{\text{Pu-239 + Pu-240}} = 7,9 \cdot 10^{-4} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$$

### 5.2 Fehlerbetrachtung

Zur Fehlerbetrachtung wird auf die Vorschrift H- $\alpha$ -SPEKT-AWASS-03, Abschnitt 5.2, verwiesen.

## 6 Nachweisgrenzen des Verfahrens

Zur Berechnung der Nachweisgrenzen G wird auf das Kapitel IV.5, Gleichung 2.4 der Meßanleitungen und die Vorschrift H- $\alpha$ -SPEKT-AWASS-03 verwiesen. Bei einer Meß-

zeit des Nulleffektes und der Probe von  $t_0 = 84\,600$  s, einem Wert von  $k = 4,65$  ( $k_{1-\alpha} = 3,00$  und  $k_{1-\beta} = 1,65$ ), einem Probevolumen von 5 l Trinkwasser und einer chemischen Ausbeute von 58 % entsprechend den Bedingungen im Beispiel in Abschnitt 5.1 erhält man für die Nachweisgrenze der Aktivitätskonzentrationen nach Gleichung (2)

$$g = \frac{G}{V \cdot \eta} \quad (2)$$

Werte von  $g = 0,6 \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1}$  bzw.  $0,5 \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1}$  für die Plutoniumisotope Pu-238 bzw. Pu-239 + Pu-240.

Die in den Meßprogrammen nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (StrVG) geforderte Nachweisgrenze für Trinkwasser von  $10 \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1}$  kann unter sonst gleichen Bedingungen bei der Aufarbeitung von etwa 0,5 Liter Trinkwasser erreicht werden.

## 7 Verzeichnis der erforderlichen Chemikalien und Geräte

Die für dieses Verfahren benötigten Chemikalien und Geräte sind in der Vorschrift H- $\alpha$ -SPEKT-AWASS-03, Abschnitt 7 aufgeführt.

### Literatur

Auf Literatur wird in der Vorschrift H- $\alpha$ -SPEKT-AWASS-03 verwiesen.