

p. B. 51.20.13.

Herrn Minister ^{13/10/69} dodis.ch/33337

caj
z.

Bericht über den Reaktorunfall Lucens, 21.1.69

Bericht Nr. 1, 1969 an KUER und Alarmausschuss

Sitzung vom
21.4.69

Freiburg, 31.3.69

O.Huber, J.Halter, P.Winiger

Kap. I. Erste Massnahmen

Die Messstelle Freiburg der KUER erhielt am 21.1.69 um 1900 Uhr telefonisch von der Ueberwachungszentrale des Alarmausschusses die Mitteilung, dass sich im Centre Nucléaire Lucens (CNL) ein Unfall ereignet habe, bei welchem Radioaktivität aus dem Kamin entwichen sei. Nähere Einzelheiten waren noch nicht erhältlich.

Gemäss Artikel 7 / 3 der Verordnung über die Alarmorganisation hat diese bei Reaktorunfällen mit der KSA zusammenzuarbeiten. Dabei hat sich der Alarmausschuss (AA) speziell um die Radioaktivität zu kümmern, welche in allgemein zugängliches Gebiet gelangt und eventuell Massnahmen zum Schutz der Bevölkerung vorzuschlagen.

Unter diesem Gesichtspunkt wurde von Payerne sofort telefonisch die Umstellung der Luftüberwachungsanlagen in Morges und Saignelégier auf doppelte Ansauggeschwindigkeit angeordnet. Um 1920 h wurde von Freiburg aus das CNL veranlasst, eine Mess-équipe zur Kontrolle der Luftaktivität in der Umgebung von Lucens einzusetzen.

Anschliessend begaben sich von Freiburg zwei Experten des AA nach Lucens, während der dritte die Messapparaturen vorbereitete und überprüfte.

Kurz nach der Ankunft in Lucens traf die Meldung ein, dass in Bussy um 2050 h eine Luftaktivität von 3000 pCi/m^3 gemessen



wurde. Eine Ueberschlagsrechnung zeigte, dass selbst im schlimmsten Fall, wenn die ganze Aktivität von I-131 stammte, durch Einatmen während einer Stunde in der Schilddrüse eine Dosisleistung von $3 \cdot 10^{-2}$ rad/h resultierte. Selbst bei relativ stagnierender Luft wäre unter diesen Umständen die Schilddrüsenbelastung der Bevölkerung unwesentlich geblieben. Schon bei der Rückkehr der Messequipe des CNL um 2230 h zeigte sich, dass der überwiegende Teil der Luftaktivität nicht dem I-131 zuzuschreiben war und damit war jede Gefahr für die Bevölkerung ausgeschlossen. Zudem steht nicht fest, welcher Teil der 3000 pCi/m^3 auf natürliche Radioaktivität zurückzuführen ist. Die Luftproben der übrigen Stellen zeigten Aktivitätswerte, welche sich im Rahmen der natürlichen Aktivität hielten.

Nachdem also feststand, dass der Unfall für die Allgemeinbevölkerung keine Gefahr bedeutete und dass das Ausland in keiner Weise in Mitleidenschaft gezogen würde, konnte eine Anfrage von Payerne betr. eventuelle Mitteilung des Unfalls an die Nachbarstaaten und die OECD dahin beantwortet werden, dass diese nicht dringend sei. Sie wurde einige Tage später ausgeführt.

Nach der Ankunft der Vertreter der KSA fand um 2300 h eine Orientierung über die Lage statt. Für die Arbeiten der KUER waren dabei nur folgende Punkte wichtig :

- 1) Die Iodfilter im Karin müssen vom Kommandoraum aus eingeschaltet werden, was erst ca. 20 Minuten nach dem Unfall ausgeführt wurde.
- 2) Es war anzunehmen, dass ein Verlust von D_2O durch Auslaufen entstanden sei ; allerdings bestehe keine Gefahr, dass unkontrolliert Tritium-verseuchtes Abwasser das Reaktorgelände verlassen könnte.

Zwischen 2330 und 2400 h entnahm eine Equipe vom CNL unter

Anwesenheit von J. Halter noch einmal in Bussy verschiedene Proben, darunter eine Luftprobe von 1 m^3 . Ihr mit dem tragbaren Gerät sofort gemessener Aktivitätswert ergab 1500 pCi/m^3 , also ungefähr die Hälfte der ersten Probe. Ausserdem wurden Abstrichproben (Hausmauer, Treppengeländer, Wohnwagen) erhoben, welche keine Aktivität zeigten. Da sich der Unfall im Winter, also während der Trockenfütterungszeit, ereignet hat, war keine Kontamination der Milch zu erwarten. Für die Aufnahme von Aktivität mit der Nahrung kamen nur Wintergemüse in Frage. Eine Lauchprobe, ebenfalls in Bussy entnommen, und zur Vollständigkeit des Ueberblicks eine Grasprobe von ca. 300 m Entfernung vom Kamin des Reaktors konnten erst in Freiburg gemessen werden, wobei keine Aktivität festgestellt wurde.

Ein Teil der kontaminierten Luft war aus der Reaktorkaverne in die übrigen Räume der Anlage und durch die Eingangstüre ins Freie gedrungen. Eine vor dem Gebäudeeingang um 2300 h erhobene Luftprobe hatte eine Aktivität von 45000 pCi/m^3 . Um die gleiche Zeit zeigten Luftproben aus der Eingangshalle und dem Kommandoraum Aktivitäten, welche den Endausschlag des Messinstrumentes und damit 150000 pCi/m^3 Luft überstiegen. Von diesen starken Proben wurde noch in der Nacht in Freiburg das "Unfallsspektrum" aufgenommen.

Nach einer Abmachung über weitere von der Unfallequipe des EIR oder dem CNL während der Nacht zu erhebende Proben verliess die Equipe von Freiburg das CNL. In Freiburg wurde unmittelbar (22.1.69, ab 0140 h) festgestellt, dass nur noch die Luftproben aus dem Innern der Reaktoranlage für eine Gammaanalyse brauchbar waren. Diese ergab unter anderem Aktivitäten verschiedener Iodisotope (I 132 / 133 / 135) in der Grössenordnung von 1000 pCi/m^3 Luft. Daraus konnte erhärtet werden, dass die noch bedeutend kleinere Iodaktivität der Luft ausserhalb der Eingangstüre des CNL zu keinen gesundheitlichen Schädigungen für Personen ausserhalb des Reaktorareals geführt haben kann.

Für die bei allen Luftfiltern auftretende rasch abnehmende Aktivitätskomponente gab es zwei Möglichkeiten, entweder rührte sie von einer kurzlebigen Aktivität, (ev. auch Ra-Emanation Bussy) oder von einem Gas her, welches in den Filtern nur kurze Zeit zurückgehalten wurde (da es sich um Iodfilter handelte, kam dieses Element dafür nicht in Frage). Eine Entscheidung wurde getroffen, indem ein weiteres Luftfilter aus dem Innern der Anlage luftdicht abgeschlossen, sofort zur γ -Analyse nach Freiburg gebracht wurde. Eine solche Probe, entnommen im Maschinenraum um 0435 h (22.1.69), brachte E. Nagel um 0610 h. Diese Probe wurde mit dem Na I-Kristall und der Ge-Diode gemessen. Die weitaus überwiegende Aktivität konnte dem 17,8 min Rb-88 zugeschrieben werden, einem Nachfolgeprodukt von Kr-88 (2,8 h). Dieses Ergebnis lässt folgende Schlussfolgerungen zu :

- a) Die vor der Eingangstüre entnommene Probe (45000 pCi/m^3) ist ebenfalls schnell abgeklungen, was damit erklärt werden kann, dass auch deren Aktivität hauptsächlich von Rb-88 stammte.
- b) Wenn die Luftaktivität von Bussy (3000 pCi/m^3) nicht einer relativ hohen natürlichen Emanation zuzuschreiben ist, kann ihr Abklingen leicht durch das Vorherrschen von Rb-88 erklärt werden.
- c) Die Aktivität der zweiten Luftprobe von Bussy (1500 pCi/m^3) betrug ungefähr die Hälfte der ersten Probe. Die Zeitdifferenz der beiden Probenahmen entspricht gerade der Halbwertszeit des Mutterisotops von Rb-88. Wenn die Luftaktivität in Bussy nicht von natürlicher Radioaktivität stammt, lassen sich die beschriebenen Tatsachen in Uebereinstimmung bringen durch die Annahme, dass beim Unfall vor allem Kr-88 entwichen ist.

Damit war sicher, dass der Unfall für die Bevölkerung der Umgebung absolut ungefährlich war, sodass keine speziellen Massnahmen ergriffen werden mussten.

Kap. II Messungen

Im folgenden sind alle Messresultate aufgeführt, welche im Zusammenhang mit dem Unfall Lucens in Freiburg gewonnen worden sind.

1. Proben aus der Umgebung des Reaktorgebäudes

Mit Staplex-Filtern wurde je 1 m³ Luft gesammelt.
(Sammelzeit 3 Minuten) :

<u>Entnahmeort</u>	<u>Sammelzeit</u>		<u>Messung</u> (Totalaktivität)		
Lucens	21.1.69	2030	2030	500pCi	2240 < 250pCi
Bussy	21.1.69	2050	2050	<u>3000</u> "	2240 250 "
Moudon	21.1.69	2105	2105	750 "	2240 250 "
Forel Dessus	21.1.69	2140	2140	600 "	2240 250 "
Marnand Croisé	21.1.69	2200	2200	250 "	2240 < 250 "
Sarzens	21.1.69	2220	2220	500 "	2240 250 "
Bussy	21.1.69	2340	2340	<u>1500</u> "	

Schmierproben

Hausmauer Bussy	21.1.69	2340	2340	500pCi
Treppengeländer Bussy	21.1.69	2345	2345	500 "
Wohnwagen Moudon	21.1.69	2400	2400	500 "

Aus diesen Messungen ergibt sich, dass der natürliche Untergrund inklusive die kurzlebigen Nachfolgeprodukte der Ra-Emanation in der Grössenordnung 200 - 800 pCi/m³ lag.

Nur die Luftmessungen in Bussy ergaben höhere Aktivitätswerte, welche eventuell vom Unfall stammen.

Je eine Gras- und Lauchprobe, entnommen um 2330 in Bussy, wurden mit dem Na I-Kristall am 22.1.69 0330 gemessen und zeigten keine Aktivität.

Alle bisher erwähnten Proben wurden zu Spezialuntersuchungen nach Basel (Filter ; α) resp. Bern (Gras, Lauch ; I) geschickt.

2. Luftfilter aus dem CNL

Eine erste Gruppe umfasst die um 2300 im CNL erhobenen Luftproben (1 m^3).

L 1 Luft aus dem Kommandoraum, Aktivität direkt nach der Sammlung $> 150000 \text{ pCi/m}^3$

L 2 Luft aus der Eingangshalle, Aktivität $> 150000 \text{ pCi/m}^3$

L 3 Luft im Freien, ausserhalb des Haupteingangs, Aktivität direkt nach der Sammlung 45000 pCi/m^3

Diese Proben wurden sofort nach der Rückkehr in Freiburg (22.1.69 ab 0200 h) mit dem Na I-Kristall gemessen.

Ihre β -Aktivität war um 0200 h ^{um} ~~war~~ mehr als einen Faktor 200 gegenüber der Messung in Lucens zurückgegangen. L 1 wurde mit dem Ge-Li-Halbleiter und dem Na I-Kristall gemessen, L 2 mit dem Na I-Kristall, L 3 war schwach.

Analyse :

L 1 : Alle im Ge-Li-Diode-Spektrum auftretenden Linien sind dem Te-I-132 zuzuschreiben, ausser derjenigen bei 530 keV, welche I-135 (Xe-135^m) oder I-133 sein kann und kleinen Spit-

zen von Te-131^{m} und I-131 .

Die Messungen mit dem Na I-Kristall am 22.1. ergaben als Aktivität der einzelnen Isotope, bezogen auf die Sammelzeit 21.1. 2300 :

<u>Isotop</u>	<u>HWZ</u>	<u>Luftaktivität pCi/m³</u>
Te-132	78 h	870
↓	↓	
I -132	2,3h	600
I -133	21 h	1500
(I-135) → Xe-135 ^m (6,7 h) 15 min		850

Die Aufspaltung der Linie bei 530 keV in I-133 und Xe-135^m erfolgte auf Grund des Abfalls der Linie in zwei Spektren (22.1. 0735 und 22.1. 2030). Der grösste Teil der Spitze stammt von I-133 ; entsprechend ist die angegebene Aktivität von Xe-135^m mit grossen Fehlergrenzen behaftet.

L 2 : 3 Na-I-Messungen zwischen 0200 und 0545 am 22.1.69 ergaben die Aktivitäten, bezogen auf 21.1.69 2300 :

Te-132	78 h	110 pCi/m ³ Luft
I -133	21 h	550 " "

Weitere Linien konnten nicht ausgewertet werden. Die Linie bei 530 keV zeigte in allen 3 Spektren praktisch eine konstante Intensität, was darauf schliessen lässt, dass Xe-135^m (I-135 6,7h → Xe-135^m) nur in kleinem Mass zu dieser Linie beigetragen haben kann.

Auch die Filter L 1 bis L 3 wurden zur α -Untersuchung nach Basel geschickt.

Da die Vermutung bestand, der schnelle Abfall der Filteraktivität zwischen Sammlung und Aufnahme der Spektren (≈ 3 h) könne durch Ausgasen eines radioaktiven Isotops entstanden sein, liessen wir alle spätern Proben luftdicht abgeschlossen nach Freiburg bringen.

Als nächste Probe erhielten wir L 4, ein "Iodfilter" mit 10 m^3 Luft aus dem Maschinenraum, entnommen am 22.1.69 0430 h und sofort von Dr. Nagel nach Freiburg gebracht. Mit diesem Filter wurden mehrere Messungen ausgeführt, Spektren mit dem Na-I-Kristall und der Ge-Diode aufgenommen.

L 4 : Ge-Dioden-Spektrum :

Eine erste Messung von 30 Min. Dauer ab 0630 zeigte Spitzen bei 228 keV (Te-132, 78 h), 530 keV (I-133, 21 h) und neu 898 keV (Rb-88, 18 Min.) und 1838 keV (Rb-88). Diese Messung gestattete einen Vergleich zwischen der Aktivität des Rb-88 und derjenigen der andern Radioisotope.

Von 1030 Uhr an wurde ein Spektrum während 6,5 Stunden aufgenommen. Darin waren die Rb-88-Linien verschwunden. Die hauptsächlich vorkommenden Isotope waren Te-131^m (30 h) \rightarrow I-131 (8,1 h), Te-132 (78 h) \rightarrow I-132 (2,3 h), I-133 (21 h), I-135 (6,7 h) \rightarrow Xe-135 (9,2 h).

Ein weiteres Ge-Dioden-Spektrum 22.1.69, ab 2030 h, 21,5 Stunden aufgenommen, erlaubte die Zuordnung verschiedener Linien gemäss ihrer Halbwertszeit zu I-135 (6,7 h) oder I-133 (21 h).

Diese Ge-Dioden-Spektren erlaubten das Aufspalten von unaufgelösten Spitzen bei den Na I-Messungen in ihre einzelnen Komponenten und damit die Auswertung von Linien, welche sonst weder identifizierbar noch quantitativ bestimmbar gewesen wären.

L 4, Na I-Spektren :

Ein erstes Spektrum um 0610 zeigte hauptsächlich die Rb-88-Photospitzen (aus Ge-Diode zugeordnet) und diejenige von I-133 bei 530 keV. Weitere Spektren um 0940 und 1835 am 22.1.69 und 1930 am 23.1.69 erlaubten die Bestimmung der Aktivitäten einzelner Isotope. Diese betragen, bezogen auf den Zeitpunkt der Probenahme 0430 am 22.1.69 :

<u>Isotop</u>	<u>HWZ</u>	<u>Aktivität in pCi/m³</u>
(Kr-88) → Rb- 88	(2,8h) 18min	1,4.10 ⁶
I -131	8,1 d	125 (inkl. dem zur Zeit
Te-132	78 h	200 der Messung aus Te-
↓		131 ^m nachgeliefer-
I -132	2,3 h	205 ten)
I -133	21 h	1600
I -135	6,7 h	1000

Die Hälfte des Filters wurde nach Basel geschickt, mit der andern Hälfte nahmen wir am 19.2.69 noch einmal ein Na I-Spektrum auf. Dabei traten die Linien von I-131, La-140 (13 d) neu und Cs-137 neu auf. Die Rückrechnung auf 22.1.69 ergab folgende Aktivitäten :

<u>Isotop</u>	<u>Akt. pCi/m³ Luft am 22.1.69</u>
I -131	130
Cs-137	15
(Ba-140) → La-140	150

Während in den Ge-Dioden-Spektren vom 22.1. eine schwache Spitze bei 660 keV (Cs-137) erkennbar ist, kann dort keine der La-140-Spitzen nachgewiesen werden. Dies deutet darauf hin, dass auf dem Filter ursprünglich nur Ba-140 gesammelt wurde

und das La-140 bis am 19.2.69 hineinwuchs. Nach dieser Messung schickten wir das Filter L 4 an Frau Bezzegh zur Sr-89-Analyse.

L 5 : Am 23.1.69 erhielten wir ein Luftfilter aus der Reaktor-kaverne, L 5, zur Bestimmung der Aktivität im Hinblick darauf, ob die Luft aus der Kaverne abgelassen werden könne. Diese Luft wurde nach einer Vorfilterung (gewöhnliches Filter) auf einem Iodfilter gesammelt. Dementsprechend war Te und kurzlebige I-132 (2,3 h, Tochter von Te-132, 78 h) abgereichert.

L 5, Ge-Dioden-Messungen :

Eine erste Messung mit der Ge-Diode wurde von 23.1.69 2000 h an gemacht (50000"), eine zweite (144000") von 25.1.69 1700 h an. Es zeigten sich hauptsächlich Linien von I-131 und I-133 (21 h), daneben in geringerem Mass Te-132, I-132 und ev. Te-131^m.

Die Messungen von L 4, L 5 und L 6 zusammen gestatten voraussichtlich, durch die verschiedene Belegung mit verschiedenen Iodisotopen in Verbindung mit deren Halbwertszeiten, mehrere γ -Linien zu identifizieren und in die Zerfallsschemen dieser Isotope neu einzuordnen.

L 5, Na I-Messungen :

Zur Bestimmung des Gehaltes an I-131 und I-133 in der Kavernenluft wurden zwei Na I- Messungen vorgenommen, die erste direkt nach Ankunft des Filters um 1910 am 23.1., die andere am 24.1. 0945. Beide gaben übereinstimmend für die Aktivitäten zur Sammelzeit (23.1.69 1700)

I -131	4800 pCi/m ³	Luft
I -133	23000	" "

Von L 5 wurde auch ein Spektrum in der L & G-Einkanalanapparatur vorgenommen. Nachher wurde der Filter zusammen mit L 6 bis L 9

an Dr. Miserez zur Zirkulation bei den Kantonschemikern geschickt.

Gleichzeitig mit L 5 trafen Abstrichproben der Vaselinplatten ein. Diese zeigten keine Aktivität.

Beim Ablassen der Luft aus der Reaktorkaverne wurde vom CNL eine Probe in der Fahne der Abluft entnommen. Diese erhielten wir am 25.1.69. Ein Na I-Spektrum vom 25.1. 1910 bis 27.1. 0910 = 38 Stunden ergab keinen über den Nulleffekt hinausgehenden Wert. Anschliessend wurde das Filter nach Basel geschickt. Broyewasser vom 25.1.69 zeigte keine γ -Aktivität.

3. Rückhaltevermögen Iodfilter (Brief an Dr. Courvoisier)

Zur Untersuchung der Durchlässigkeit der Iodfilter von Lucens wurde Luft aus dem Kamin durch Kartuschen mit Aktivkohlegranulat gesaugt, einmal vor dem Iodfilter, einmal nach dem Iodfilter. Jede Kartusche enthielt ein Eintrittsfilter (Glasfaserfilter), eine erste Kammer mit Granulat, ein Trennfilter, eine zweite Kammer mit Granulat und ein Abschlussfilter.

Die einzelnen Teile tragen im Folgenden die Bezeichnungen :

	<u>Kartusche vor dem Iodfilter</u>	<u>Kartusche nach dem Iodfilter</u>
Eintrittsfilter	L 6a	L 8a
Granulat 1.Kammer	L 6	L 8
" 2. "	L 7	L 9
Zwischen-und Endfilter	L 7a	L 9a

Die beiden Kartuschen trafen am Vormittag des 25.1.69 in Freiburg ein. Von jedem Einzelteil (L 6 - L 9a) wurde die Gesamtgammaaktivität mit dem Na I-Kristall gemessen, von den Stärkern auch γ -Spektren mit dem Na I-Kristall und von L 6 ein solches mit Ge-Diode aufgenommen.

L 6, Ge-Dioden Spektrum.

Alle stärkern Linien stammen von I-131 (8,1 d), I-132 (2,3 h), I-133 (21 h) \rightarrow Xe-133^m (2,3 d) \rightarrow Xe-133 (5,3 d) und neu Xe-135 (9,2 h). Die relativen Intensitäten der unaufgelösten Photospitzen könnten gut bestimmt werden und ermöglichten damit die Aufspaltung der Spitzen im Na I-Spektrum. Erst damit konnten die relativen Intensitäten der einzelnen Isotope in den starker aktiven Teilen der Probe miteinander verglichen werden.

Na I-Spektren.

Da es sich in erster Linie um den Vergleich der Aktivitäten der verschiedenen Isotope in den Einzelteilen des Kartuscheninhaltes handelte, musste für jedes Isotop eine möglichst isolierte Photospitze gefunden werden.

Das Na I-Spektrum von L 6 ergab unter Berücksichtigung der Resultate aus dem Ge-Diodenspektrum die folgende Analyse :
(siehe nächste Seite)

Daraus ist zu ersehen, dass als "Leitlinien" für Xe 250 keV, I-131 365 keV, I-133 530 keV und I-132 670 keV gebraucht werden können.

In der Kartusche vor dem Iodfilter ergab der Vergleich der Aktivitäten der einzelnen Teile (normiert auf L 6) :

<u>Photospitze</u>	<u>L 6</u>	<u>L 7</u>	<u>L 6a</u>	<u>Isotop</u>
250 keV	1	0,95	----	Xe-133 ^m , Xe-135
365 "	1	0,033	0,007	I -131
530 "	1	0,031	0,0065	I -133
670 "	1	0,040	0,0067	I -132

L 7a zeigte bei gleicher spektraler Verteilung, eine Intensität von 0,75 mal derjenigen von L 6a.

PhotospitzeEinzellinien

(Aufspaltung nach Diodenspektrum)

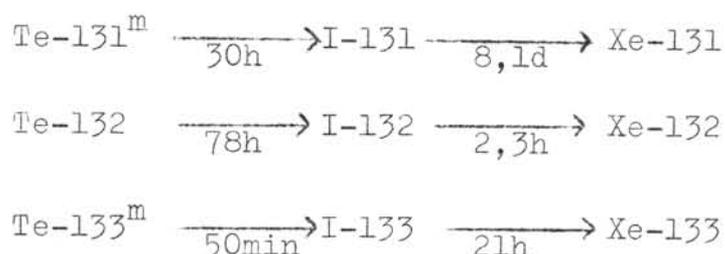
<u>Energie</u>	<u>Photo-</u> <u>ausbeute</u> <u>(w.r.ε Photo)</u>	<u>Γ s⁻¹</u>	<u>δ tot s⁻¹</u>	<u>δ s⁻¹</u>	<u>Energie</u> <u>keV</u>	<u>Isotop</u>
250 keV	0,98%	182	18600	2250 13700 2250 +kleine	232,8 250,0 284,3	Xe-135 ^m Xe-135 I -131
365 keV	0,92%	770	83500	83500	364,5	I -131
530 keV	0,65%	525	81000	10500 70500	521,0 529,0	I -132 I -133
670 keV	0,54%	635	117000	14800 6900 85500 +kleine	630,2 637,0 667,8	I -132 I -131 I -132
770 keV	0,47%	355	76000	69300 5700 +kleine	772,9 813,0	I -132 I -132
950 keV	0,38%	95	25000	25000	954,7	I -132
1390 keV	0,24%	40	16700	4000 10700 2000	1373,0 1399,0 1441,0	I -132 I -132 I -132

Rückschlüsse auf das Iodfilter im Kamin lassen sich aus dem Vergleich von L 8 mit L 6 ziehen. Im Folgenden sind die Aktivitäts-Verhältnisse aus den Messdaten (also ohne Berücksichtigung der verschiedenen Luftdurchflussmenge) angegeben :

<u>Photospitze</u>	<u>L 6</u>	<u>L 8</u>	
250 keV	1	0,0015	Xe-133, Xe-135 ^m
365 "	1	0,0100	I -131
530 "	1	0,0135	I -132 + I -133
davon I-133	1	0,0146	I -133

Bei 670 keV war kein Vergleich möglich. Die entsprechende Photospitze lag bei L 8 deutlich tiefer, nämlich bei der I-131-Linie von 637 keV. Auch die übrigen I-132-Linien erschienen im L 8-Spektrum nicht. Dies lässt darauf schliessen, dass I-132 im Iodfilter mindestens zehnmal stärker zurückgehalten wurde als die andern I-Isotope. Auch der Unterschied zwischen I-131 und I-133 im Rückhaltervermögen des Filters liegt ausserhalb der Messgenauigkeit und ist demgemäss reell.

Dieses unterschiedliche Verhalten der verschiedenen Iodisotope muss auf der chemischen Form beruhen, in welcher das Iod vorliegt. Es ist anzunehmen, dass die Mutteratome Te eine chemische Verbindung eingegangen sind, welche auch mit dem Iod bestehen bleibt und die im Iodfilter starker zurückgehalten wird als das freie Iod. Der Zerfall erfolgt bei den verschiedenen Massenzahlen folgendermassen :



Diese Zusammenstellung zeigt, dass das Rückhaltervermögen des Iodfilters umso grösser ist, je länger die Halbwertszeit des entsprechenden Te-Isotops ist.

Das Verhältnis der Xe-Aktivitäten in L 6 und L 8 lässt keine Rückschlüsse auf das Iodfilter zu. Wie sich gezeigt hat, gaben die Granulate Xe ab, womit ein Vergleich zwischen den beiden Kartuschen illusorisch wird.

Nach den Angaben von Lucens verhalten sich die durch die beiden Kartuschen gesaugten Luftmengen wie 1 : 5,5. Damit berechnet sich das Rückhaltervermögen des Iodfilters zu :

I-131	99,83%
I-132	> 99,96%
I-133	99,73%

Das Luftdurchflussverhältnis wird gegenwärtig in Würenlingen noch genauer untersucht.

Die starken Proben aus den Kartuschen boten eine gute Gelegenheit für eine Kontrolle der Landis und Gyr-Einkanalspektrometer der Arbeitsgemeinschaft zur Ueberwachung der Radioaktivität der Lebensmittel. Wir schickten sie an Dr. Miserez und von dort machten sie die Runde in den verschiedenen Laboratorien. Es zeigte sich, dass die I-131-Bestimmung in L 6 an allen Stellen innerhalb von 20% dasselbe Resultat gab. Für L 7 traf dies für Messungen bis zum 2.2.69 ebenfalls zu. Bei den spätern Messungen traten Abweichungen bis zu 30% auf. Auch die Messresultate von I-133 (530 keV) in L 6 bis am 29.1.69 stimmten gut überein. Die schwächern Proben zeigten erwartungsgemäss starke Streuungen.

4. Abstrichproben in der Reaktorkaverne. L 10 - L 15

Die Gammaanalyse der Abstrichproben von den verschiedenen Stellen der Reaktorkaverne Lucens wurde von uns auf Grund der Na I-Kristall-Messungen durchgeführt und erstreckte sich auf die Proben :

<u>Bezeichnung</u>	<u>Entnahmeort</u>	<u>Datum</u>	
		<u>Entnahme</u>	<u>Messung</u>
L 10 "Clapet"	Klappenventil	27.1.69	29.1.69
L 11 "M"	Reaktorhalle oben	27.1.69	29.1.69
L 12 "P"	" mittlere Etage	27.1.69	29.1.69
L 13 "R"	" unterste "	27.1.69	29.1.69
L 14 "RKL"	Reaktorkaverne	28.1.69	30.1.69
L 15 "RK2"	"	31.1.69	31.1.69

Absolutaktivitäten haben wegen mangelnden Informationen über Abwischfläche usw. keine Signifikanz ; die relativen Aktivitäten der hauptsächlichen Isotope (auf Zerfälle / Zerfälle Zr-95-Nb-95 umgerechnet, bezogen auf das Messdatum) ergeben für die Proben folgende Werte :

<u>Isotop</u>	<u>L 10</u>	<u>L 11</u>	<u>L 12</u>	<u>L 13</u>	<u>L 14</u>	<u>L 15</u>	<u>HWZ</u>
Ce-144	0,44	0,53	(0,44)	0,44	(0,47)	(0,34)	285 d
Ce-141	0,27	0,28	(0,26)	0,26	(0,28)	(0,21)	33 d
Te-132	0,10	0,11		0,20			78 h
I -131	0,11	(0,02)	0,10	0,19			8,1d
Ru-103	0,29	0,26	0,26	0,24	0,19	0,22	40 d
Cs-137	0,15	(0,01)		0,15			27 a
I -132	0,08	(0,03)		0,13			78 h
Zr+Nb-95	1	1	1	1	1	1	65d, 35d
Ba+La-140	0,17	0,09	0,12	0,16	0,32	0,46	12,8d

Von L 10, L 11 und L 13 konnten Ge-Li-Dioden-Messungen gemacht werden. Diese gestatteten erst die Peaks des Na-I-Spektrums

quantitativ in verschiedene Komponenten aufzuspalten. Die eingeklammerten Werte bei L 11 wurden durch Vergleich der Intensitätsverhältnisse der betreffenden Spitzen in den Diodenspektren von L 10 und L 11 gewonnen. Neben den angeführten Radioisotopen zeigten sich im Diodenspektrum kleine Mengen von Nd-147, Np-239, Tc-99^m.

Bei L 12, L 14 und L 15 wurden keine Diodenspektren aufgenommen, weshalb eine Aufspaltung zusammengesetzter Photolinien nicht direkt möglich war. Immerhin zeigte sich das Verhältnis von Ce-144 / Ce-141 in allen 3 Ge-Spektren (L 10, L 11, L 13) praktisch konstant. Wir spalteten demgemäss die Spitze von 134 keV / 145 keV im Na I-Spektrum der Proben L 12, L 14 und L 15 in diesem Verhältnis unter Ce-144 und Ce-141 auf (eingeklammerte Werte). Bei L 12, L 14 und L 15 war auch die Linie bei 230 keV vorhanden, jedoch war es unmöglich, sie in ihre Komponenten Fe-132 (78 h) und Np-239 (56 h) aufzuspalten. Der Peak bei 660 keV (Cs-137 + I-132) erschien bei L 12 etwas schwächer als bei L 10 und L 13 und konnte bei L 14 und L 15 nicht nachgewiesen werden.

Für Zr-95 + Nb-95 wurden die Aktivitäten der Abstrichproben abgeschätzt unter der Annahme, dass es sich um Punktquellen handle. Die Entfernung vom Kristall betrug in den beiden verwendeten Geometrien 12 cm bzw. 50 cm, sodass diese Annahme gerechtfertigt erscheint. Die Zr-Nb-95-Aktivitäten ergaben sich zu

L 10	L 11	L 12	L 13	L 14	L 15	
35	5,5	0,62	0,67	6,9	35	μ Ci.

5. Abwasser L 16 - L 19

Am 7.2.69 nahmen wir Wasserproben in Lucens.

L 16 30 cm³ aus einem Abwassertank, der am 3.2. entleert wurde, enthielt nach Angaben von Lucens 6,1 mCi T/m³H₂O.

L 17 30 cm³ aus einem frisch gefüllten Abwassertank mit verdünntem Wasser aus dem Pumpensumpf enthielt nach Angabe ca. 1,2 Ci T/m³ H₂O.

L 18, 19 Je 4,5 Liter Abwasser beim Einlauf in die Broye bzw. 50 m unterhalb des Einlaufs, während ein Tank abgelassen wurde.

Von allen Proben wurden 30 cm³ an Prof. Oeschger zur T-Bestimmung geschickt.

Von L 18 und L 19 wurde je ein Liter in der Standardgeometrie mit dem Na I-Kristall gemessen. Das Broyewasser enthielt eine stärkere Gammaaktivität als das direkt entnommene Abwasser. Die wichtigste Komponente war Cs-137 mit 450 pCi Cs-137/l Wasser (erlaubt 10000 pCi/l). Daneben traten noch kurzlebige, nicht identifizierte, Aktivitäten auf.

6. Abluft Kamin L 20 - L 21

Schliesslich erhielten wir am 20.2.69 die Luftfilter der Landis und Gyr-Apparatur, welche die Abluft im Kamin überwacht. Der erste Streifen L 20 enthält die Luft vom 11. - 30.1.69, der zweite L 21 diejenige vom 1. - 18.2.69.

L 20 mit Na I-Kristall liess die Aktivitäten von Cs-137 und Ba-La-140 berechnen. Sie ergaben sich zu :

Cs-137	160000 pCi	
La-140	16000 pCi	zur Zeit der Messung 21.2.69

Alle andern Linien sind zusammengesetzt. Aus dem Ge-Dioden-Spektrum liessen sich viele Isotope bestimmen. Sie zeigten

unter Angleichung an die mit Na I gefundene Cs-137-Aktivität folgende Aktivitäten zur Zeit der Messung (24.2.69)

<u>HWZ</u>	<u>Isotop</u>	<u>Aktivität</u>		
78 n	Te-132	1,3	nCi	
8,1 d	I -131	10	"	
34 d	Te-129 ^m	15	"	(neu)
12,8 d	Ba-140	18	"	
32,5 d	Ce-141	11	"	
35,8 d	Ru-103	19	"	
65,2 d	Zr- 95	2	"	
35 d	Nb- 95	11	"	
285 d	Ce-144	25	"	
2,7 a	Sb-125	16	"	
30 a	Cs-137	160	"	
2,05 a	Cs-134	2,6	"	(neu)

Auffallend ist das starke Vorherrschen von Cs-137, welches nicht allein auf die lange HWZ zurückzuführen ist, sondern offenbar mit den Verdampfungsbedingungen und dem Rückhaltevermögen der Filter (Kamin und Landis und Gyr) zusammenhängt. In diesem Zusammenhang ist auch das Auftreten von Cs-134 zu erwähnen. Dieses entsteht durch Neutroneneinfang aus dem stabilen Cs-133, von welchem von den frühern Runs des Reaktors rund 40 g (Endprodukt der Te-I-Xe-133-Reihe) vorhanden gewesen sind. Eine Abschätzung der Wirkungsquerschnitte für Cs-137-Produktion im U-235 und für (Cs-133, n) Cs-134 zeigt, dass das gefundene Aktivitäts-Verhältnis der beiden Isotope stimmt. Ebenso ist es das erste Mal, dass wir Te-129^m feststellen konnten.

Dass die Chemie (Zr verbindet sich mit Mg), die Temperatur und die Filter eine ausschlaggebende Rolle in den gefundenen Aktivitätsverhältnissen spielen, zeigt sich im Verhältnis Zr-95 / Nb-95, welche im normalen Spaltgemisch zu 1 : 1 vorhanden sind.

Aus dem Verhältnis 30 m^3 Luft /h in der Landis und Gyr-Apparatur zu 4 m^3 Luft pro Minute aus dem Kamin lässt sich die total durch das Kamin entwichene Cs-137-Aktivität auf $1,3 \mu\text{Ci}$ schätzen. Man darf annehmen, dass die austretenden Fissionprodukte (mit Ausnahme der Edelgase und von Iod) auf dem Filter quantitativ zurückgehalten wurden; Dann kann aus dem Verhältnis der Te-132- zur Cs-137-Spitze im Ge-Dioden-Spektrum unter Berücksichtigung von Ansprechwahrscheinlichkeit der Diode und Halbwertszeit des Te-132 die entwichene Menge Te-132 auf $15 \mu\text{Ci}$ geschätzt werden. Te-132 wurde aber auch im Iodfilter L 4 (Maschinenraum) zusammen mit den Iodisotopen und Rb-88 festgestellt. Auf diesem Filter verhalten sich die Aktivitäten zurückgerechnet auf die Unfallzeit wie :

<u>Te-132</u>	<u>I -131</u>	<u>I -133</u>	<u>I -135</u>	<u>Kr-Rb-88</u>
220pCi/m^3	130pCi/m^3	2300pCi/m^3	3200pCi/m^3	$2,2 \cdot 10^7 \text{pCi/m}^3$

Unter Annahme dieser Verhältnisse würde sich die totale entwichene Aktivität (praktisch rein Kr-Rb-88) auf $1,5 \text{ Ci}$ belaufen.

In dieser Abschätzung sind mehrere unbewiesene Hypothesen enthalten :

1. Dass das Verhältnis der von der Landis und Gyr-Apparatur angesaugten Luft zu der durch das Kamin ~~entweichenden~~ während des Unfalls trotz Ueberdruck sich nicht wesentlich geändert hat
2. Dass das Rückhaltervermögen des Landis und Gyr Membranfilters auch unter den gegebenen Umständen praktisch 100% war.
3. Dass die Isotopenverteilung in der Abluft im Kamin die gleiche war wie in der Luft des Maschinenraums (was im Fall Te-132 / Cs-137 durch die Messung von L 4 bestätigt ist).

Die Abweichungen dürften jedoch nicht mehr als eine Grössenordnung für die entstehende Aktivität ausmachen.

Unter den bei der Diskussion der Messung von L 20 getroffenen Annahmen sind von den festgestellten Isotopen 1 bis 2 Ci aus dem Kamin entwichen. Davon entfallen mehr als 999% auf das harmlose Kr-Rb-88. Alle übrigen Radioisotope zusammen machen ungefähr 1 mCi aus.

Diese Abschätzung wäre vereinbar mit der um 2050 h (nach 2 Halbwertszeiten von Kr-88) gefundenen Luftaktivität von 3000 pCi/m³ in Bussy, falls diese nicht von relativ hoher natürlicher Emanation stammt.

Auf L 21 war im Na I-Spektrum hauptsächlich I-131 nachzuweisen (760 pCi), welches durch das Intensitätsverhältnis der Linien von 284 keV, 364 keV und 637 keV eindeutig identifiziert werden kann. Eine weitere Linie tritt bei 520 keV auf. Welchem Isotop sie zuzuordnen ist bleibt zweifelhaft (Ru-103 ?).

Kap. III. Zusammenfassung

1. Abluft

Die Messanalysen der Proben L 1, L 2 und L 4 zeigten, dass die Aktivität der Luft in den Räumen des CNL (mit vorläufiger Ausnahme der Reaktorkaverne) unterhalb der Toleranz für ständigen Aufenthalt für Berufstätige lag.

Eine besondere Bedeutung kam den Messungen des Iodfilters L 5, Luft aus der Reaktorkaverne am 24.1.69 zu. Davon hing es nämlich ab, ob die Reaktorkaverne über das Kamin ventiliert werden dürfe. Auf Grund der Resultate, I-133 23000 pCi/m³ Luft (Toleranz für Berufstätige 10000 pCi/m³ Luft)

und I-131 4800 pCi/m^3 (Tol. 3000 pCi/m^3), war eine Ventilation ohne weiteres möglich, selbst unter der sehr vorsichtigen Annahme, dass im Iodfilter nur 90% des Iodes zurückgehalten werden. Die Luftprobe aus der Abluftfahne zeigte denn auch keine Aktivität.

Damit war auch die letzte Möglichkeit einer unzulässigen Luftkontamination ausserhalb des Reaktorareals ausgeschlossen.

2. Abwasser

Nachdem die Sofortmassnahmen abgeschlossen waren stellte sich das Problem der Abwasserbeseitigung. Nach Abschätzungen des CNL waren etwa 500 Ci T nicht zurückgewinnbar.

Nach den Vorschriften für die Ueberwachung des CNL beträgt die maximal an die Broye abzugebende Aktivität pro Jahr 0,5 Ci. Die übrigen Bedingungen waren im vorliegenden Fall ohne Schwierigkeiten zu erfüllen.

Falls das T durch Verdampfen oder Elektrolyse in gasförmigem Zustand abgeführt wird, darf in der Umgebungsluft die Kon-

zentration $1/10$ der Toleranz für Berufstätige betragen. Nach A. Doury, Seminar Vesinet, 16. - 18.4.64, dürfen auf diese Weise täglich 75 Ci T durch Verdampfen von tritiiertem Wasser oder 3900 Ci T durch Elektrolyse an die Luft abgegeben werden. Wir machten das CNL auf diese Möglichkeiten aufmerksam ; vom Standpunkt der KUER aus ist allein ausschlaggebend, dass die festgesetzten Limiten nicht überschritten werden; welche Beseitigungsart gewählt wird ist Sache des Delegierten.

Die KSA richtete am 24.1.69 eine Anfrage betr. die Abgabe von T mit dem Abwasser an die KUER. Bei sinngemässer Interpretation, dass total 0,5 Ci / Jahr an die Broye auf ein un-

bekanntes Gemisch von Radioisotopen anzuwenden sei, ist für reine Tritiumaktivität eine jährliche Abgabemenge von 15000 Ci zulässig. Somit konnte die Erlaubnis zur Beseitigung der 500 Ci Tritium mit dem Abwasser unter Vorbehalt der Einhaltung der andern Bestimmungen erteilt werden. Ueber die Kontrolle der KUER über das Ablassen des T konnte mit der KSA ebenfalls eine Uebereinkunft erzielt werden.

Damit ist Gewähr dafür geboten, dass die normalen Abwasservorschriften erfüllt sind.

3. Aktivität im Innern der Anlage

Obschon die Ueberwachung der Radioaktivität im Innern von Atomanlagen nicht in den Arbeits-Bereich der KUER gehört, stellten wir uns für eine Reihe von Messungen dieser Art zur Verfügung. Einerseits liegt es im allgemeinen Interesse der KUER, aus dem Unfall möglichst viele Erkenntnisse zu gewinnen. Andererseits verfügt das Physikinstitut Freiburg über günstige Messmöglichkeiten und ist von Lucens rasch zu erreichen.

Eine erste Reihe von Proben (L 6 - L 9) diente zur Bestimmung des Rückhaltevermögens der in Lucens verwendeten Iodfilter. Die Messresultate zeigten, dass die verschiedenen Iodisotope im Filter verschieden stark zurückgehalten werden, was auf der chemischen Form, in welcher das Iod vorhanden ist, beruhen muss. Diese wird offenbar weitgehend durch die Halbwertszeit der Muttersubstanz Te und / oder durch deren Zerfallsenergie bestimmt. Für alle I Isotope beträgt das Rückhaltevermögen des Filters über 99%.

Eine zweite Messreihe betraf Abwischproben von verschiedenen Stellen der Reaktorkaverne (L 10 bis L 15). Die Gammaspektren zeigten vorwiegend Isotope mittlerer Halbwertszeit, wobei die

Intensitätsverhältnisse der einzelnen Linien erhebliche Unterschiede aufwiesen. In jedem Fall war Zr-Nb-95 das häufigste Isotop. Neben dem Fissionprodukten fand sich auch Np-239 ($[U-238, n] \rightarrow U-239 \xrightarrow[23,5 \text{ min}]{\beta} Np-239 \xrightarrow[2,3 \text{ d}]{\beta} Pu-239.$) Diese Messungen dienten zur Abklärung über das Vorgehen bei der Dekontamination der Kaverne.

Kap. IV. Folgerungen

Die Feststellungen und Folgerungen welche sich unsererseits aus diesem Unfall ergeben, lassen sich in fünf Punkten zusammenfassen :

1. Der Einsatz aller beteiligten Stellen hat gut gespielt ; die Umstände lagen allerdings günstig, da die meisten Beteiligten noch an ihrem Arbeitsplatz erreicht werden konnten.
2. Die Experten und Equipen des Alarmausschusses werden bei ihrem Einsatz immer unter äusserstem Zeitdruck stehen. Ihre dringendste Aufgabe besteht darin, erste Informationen zu gewinnen, welche genügend sicher sind, um als Entscheidungsgrundlage für rasche Massnahmen zu dienen. Eine solche ist der vorgesehene Einsatz der A-Freiwilligen ; die Frist bis zu deren Eingreifen ist allerdings lang und muss überbrückt werden. Die ersten Informationen sollten deshalb aus zwei Gründen mit eigenen Mitteln beigebracht werden können. Die für eine Anlage verantwortlichen Stellen werden unter Umständen bei einem Unfall derart überfordert, dass sie nicht, oder nur in geringem Mass zu Messaufgaben des Alarmausschusses zugezogen werden können. Zum zweiten sollen die Messungen, welche der Alarmausschuss als Kontrollorgan durchführt, unabhängig sein.

3. Wegen dieser Notwendigkeit wäre es günstig, wenn die Messstelle Fribourg über zwei Equipen verfügen würde, welche bei einem Notfall eingesetzt werden können. Diese Equipen benützen Privatfahrzeuge und sollten wie folgt ausgerüstet sein :

- a) notwendige Dokumente und schriftliche Unterlagen in vorbereiteter Verpackung (Aktentasche)
- b) Utensilien zur Probenahme ; besonders zu erwähnen ein Luftansauggerät (Staplex od. dgl.) mit Anschluss an das Netz und an Autobatterie
- c) Dosisleistungsmesser (z.B. F.H.40 TLS)
- d) Schutzpelerinen

Die Kosten dieser Ausrüstung sind bescheiden.

4. Ueberraschungen, welche bei einem Unfall immer auftreten können und damit Unsicherheit erzeugen, welche notwendige Entscheidungen hinauszögert, muss begegnet werden können. Eine solche Ueberraschung war für uns das Rb-88 (18 min), Folgeprodukt von Kr-88 (2,7 h), welches in 1000 mal grösserer Konzentration als die Iod- und Tellurisotope auf den Filtern gesammelt wurde. Der schnellen Identifizierung des "Unfallspektrums" kommt deshalb grosse Bedeutung zu. Wir müssen deshalb erneut betonen, dass die Messstelle Fribourg neben der Messanordnung der Na I-Detektoren mit dem RCL-512-Kanal über einen unabhängigen Messplatz mit Ge (Li)-Dioden verfügen sollte. Für diesen ist ein weiterer, angemessener Vielkanal vorzusehen.

5. Es muss die Frage abgeklärt werden, an welches oder welche Laboratorien (die der KUER oder dem AA angeschlossen sind) wir bei einem Unfall Proben zur sofortigen Analyse auf Tritium einsenden können.