

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

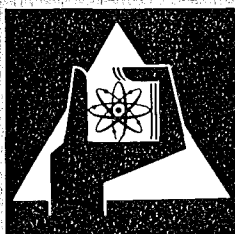
August 1974

KFK 2035

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
Projekt Nukleare Sicherheit

Erzeugung und Freisetzung von radioaktiven Krypton- und
Xenonisotopen durch Kernreaktoren und
Wiederaufarbeitungsanlagen und die voraussichtliche
radiologische Belastung bis zum Jahr 2000

F. Hilbert



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 2035

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
Projekt Nukleare Sicherheit

Erzeugung und Freisetzung von radioaktiven Krypton- und Xenon-
isotopen durch Kernreaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen und
die voraussichtliche radiologische Belastung bis zum Jahr 2000

von

F. Hilbert

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

Erzeugung und Freisetzung von radioaktiven Krypton- und Xenonisotopen durch Kernreaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen und die voraussichtliche radiologische Belastung bis zum Jahr 2000

Es wird die natürliche Produktion von radioaktiven Krypton- und Xenonisotopen angegeben, sowie die Produktion durch Kernwaffenexplosionen und kerntechnische Anlagen. Die spezifischen Produktionsraten im Brennstoff werden berechnet, der Aktivitätsfluß in den verschiedenen Typen von Kernkraftwerken beschrieben und die zur Zeit üblichen Abgaberraten zusammengestellt. In gleicher Weise werden die Abgaberraten der zugehörigen 1500 t/a-Wiederaufarbeitungsanlagen dargestellt. Dabei werden unter Zugrundelegung einer Dosisgrenze von 30 mrem/a die Mindest-Abscheidefaktoren und Mindest-Abklingzeiten angegeben. Ausgehend vom prognostizierten Einsatz von Kernenergieanlagen wird die bis zum Jahr 2000 zu erwartende globale Kr-85-Dosis unter Verwendung verschiedener Luftaustauschmodelle berechnet. Der Einfluß von Edelgasabtrennanlagen auf die zu erwartende Dosis wird untersucht.

Production and Release of Radioactive Krypton- and Xenon-Isotopes by Nuclear Power Plants and Reprocessing Plants and the Expected Radiological Burden till the Year 2000

The natural production of radioactive Krypton- and Xenon-isotopes is summarised in this report together with the yields from nuclear facilities and nuclear weapons tests. Specific production rates in nuclear power reactors are calculated. The activity flow in the different plants are described and the consequent release rates, representative of time are evaluated. Estimated release rates from 1500 t/a - fuel reprocessing plants are also included. With the condition that a dose of 30 mrem/a should not be exceeded for any release, the requisite minimum decontamination factors and cooling times are specified. Based on the forecasted growth of nuclear facilities till the year 2000, the time dependent global concentrations and radiation doses from Kr-85-releases are calculated using different atmospheric models. The effect of noble-gas separation from the plant off-gas streams in nuclear facilities on the exposure is investigated.

I N H A L T

	Seite
1. Einleitung	1
2. Natürliches Vorkommen und Eigenschaften der Elemente Krypton und Xenon	4
2.1. Natürliches Vorkommen	4
2.2. Chemische Eigenschaften	6
2.3. Physikalische Eigenschaften	7
2.4. Eigenschaften der Radioisotope	8
3. Grenzwerte und Richtlinien	12
4. Natürliche Krypton-85-Quellen	17
5. Krypton und Xenon aus Kernexplosionen	19
5.1. Militärische Zwecke	19
5.2. Friedliche Zwecke	24
6. Krypton und Xenon aus Kernkraftwerken	28
6.1. Erzeugung im Brennstoff	28
6.2. Freisetzung aus Brennelementen	29
6.2.1. Freisetzung aus stabförmigem Uranoxid	31
6.2.2. Freisetzung durch die Brennelementhülle	36
6.2.3. Freisetzungsmodelle	37
6.2.4. Freisetzung aus beschichteten Brennstoffteilchen	43
6.3. Aktivitätsfluß und Edelgasabgabe verschiedener Reaktortypen	48
6.3.1. Druckwasserreaktoren	48
6.3.2. Siedewasserreaktoren	63
6.3.3. Gasgekühlte Reaktoren	75
6.3.4. Natriumgekühlte Schnelle Brutreaktoren	87

7. Krypton und Xenon aus Wiederaufarbeitungsanlagen	93
7.1. Aktivitätsfluß	93
7.1.1. LWR- und LMFBR-Brennstoff	93
7.1.2. HTGR-Brennstoff	95
7.2. Edelgasabgaberate	98
7.2.1. Mathematischer Zusammenhang	98
7.2.2. Parameterstudie	101
7.2.3. Gemessene Kr-85-Abgaberraten	107
8. Lokale und globale radiologische Belastung	111
8.1. Lokale Belastung	114
8.2. Globale Belastung bis zum Jahr 2000	121
8.2.1. Globale Verteilung von Krypton-85	121
8.2.2. Voraussichtliche Kr-85-Produktion und momentane Kr-85-Konzentration	127
8.2.3. Parameterstudie	134
8.2.4. Weltweite Kr-85-Messungen	139
9. Zusammenfassung	141
10. Anhang	144
10.1. Rückhaltung, Abtrennung und Lagerung von Krypton- und Xenonisotopen	144
10.1.1. Verzögerung	144
10.1.2. Abtrennung	147
10.1.3. Zukunftsaussichten der Verfahren	151
10.1.4. Langzeitlagerung	153
10.2. Verwendungsmöglichkeiten für Krypton und Xenon	155
10.3. Berechnung der Kr-85-Produktion aus Kernwaffenexplosionen	158
Literatur	161

1. Einleitung

Radioaktive Krypton- und Xenonisotope entstehen in Kernreaktoren bei der Spaltung von Brennstoff als sog. Spaltprodukte. Durch nicht zu vermeidende Undichtigkeiten der Brennelemente entweicht ein Teil dieser gasförmigen Spaltprodukte und gelangt in den einzelnen Reaktortypen auf unterschiedlichen Wegen schließlich über den Abluftkamin in die Umgebung. Dort tragen die Edelgasisotope im wesentlichen über die Direktbestrahlung zur radiologischen Belastung bei. Da ein Großteil dieser Isotope relativ kurze Halbwertszeiten besitzt, läßt sich bereits durch eine einfache Verzögerung des Abgasstromes erreichen, daß nur relativ langlebige Nuklide an die Umgebung gelangen, was eine erhebliche Reduzierung der potentiellen Gesamtabgabe darstellt.

Die in den Brennelementen verbliebenen Edelgase gelangen mit den Brennelementen zur Wiederaufarbeitungsanlage und werden dort, soweit sie nicht während der Abklingzeit zerfallen sind, bei der Aufarbeitung zur Zeit noch vollständig über den Abluftkamin an die Umgebung abgegeben. Da man bisher nur sehr lang gelagerten Brennstoff aufarbeitete, in dem praktisch nur noch das Isotop Krypton-85 vorhanden war, und außerdem die vorhandenen Wiederaufarbeitungskapazitäten nur zum Teil ausnutzte, führten die Totalabgaben zu keinen unzulässigen radiologischen Belastungen.

Unter den Gesichtspunkten, daß

1. eine stark expandierende Kernenergiewirtschaft mit sich bringen wird:
 - a) den Übergang zu größeren Blockgrößen bei Kernkraftwerken - die Industrie hält 2000 MWe-Einheiten für realisierbar -
 - b) den Übergang zu wirtschaftlich großen Wiederaufarbeitungsanlagen mit hohem Ausnutzungsfaktor - in Westeuropa werden Anlagen der Größe von 1500 t/a angestrebt -

c) die Verkürzung der Abklingzeit aus wirtschaftlichen Aspekten - ein ins Auge gefaßtes Ziel, insbesondere der "Brüter"-Wirtschaft -

2. in den meisten Ländern mit nuklearer Industrie die Tendenz besteht, die Toleranzgrenzen für die von der Nuklearindustrie verursachten radiologischen Belastung, die bisher im wesentlichen auf den von der ICRP angegebenen Konzentrationswerten basierten, neu zu überdenken und eventuell restriktiver zu formulieren - deutscherseits bestehen die Absichten, der Kerntechnik als Ganzes 2 rem in 30 Jahren zuzubilligen /1/,

ergibt sich die Notwendigkeit einer kritischen Zusammenfassung und Darstellung des "Edelgasproblems", nicht zuletzt, um zuverlässige und gut fundierte Zahlenwerte für vorausschauende Studien zu gewinnen.

Zwar liegen für Krypton-85, das wegen seiner langen Halbwertszeit von 10,76 a eine Sonderstellung unter den Edelgasen einnimmt, bereits eine Reihe von Untersuchungen vor /2,3,4,5,6,7,8,9,10,11,12,13/, doch gehen die einzelnen Berechnungen von recht unterschiedlichen Energiebedarfsprognosen und zum Teil willkürlichen Annahmen aus. Es wurden z.B. nur thermische Reaktoren berücksichtigt oder nur die "Freie" Welt betrachtet, so daß sich auch hier die Forderung nach einer kritischen Durchsicht und Neuberechnung ergab.

Über die Freisetzung der übrigen Krypton- und Xenonisotope aus kerntechnischen Anlagen liegen bisher nur sehr wenige Messungen /14,15/, vereinzelte Berechnungen /16,17/ und grobe Abschätzungen vor /18,19/.

Im einzelnen werden in der vorliegenden Arbeit zunächst die Kenndaten von Krypton- und Xenonisotopen angegeben sowie die gültigen und zur Zeit diskutierten Grenzwerte der Strahlenbelastung dargestellt. Es werden die natürlichen Entstehungsprozesse radioaktiver Edelgase beschrie-

ben sowie die Erzeugung bei militärischen und friedlichen Kernexplosionen.

Anschließend werden die jährlichen Abgaberaten von Krypton- und Xenonisotopen für verschiedene 1000 MWe-Reaktortypen ermittelt. Zu diesem Zweck wird insbesondere auf die Erzeugung und Freisetzung im Brennstoff, auf den Weg im Reaktor und auf alle bisher zur Verfügung stehenden Erfahrungswerte im Betrieb befindlicher Reaktoren eingegangen.

In einem weiteren Abschnitt wird der Aktivitätsfluß in Wiederaufarbeitungsanlagen verfolgt. Für verschiedene Abklingzeiten und Abscheidefaktoren werden die daraus resultierenden Abgaberaten bei der Aufarbeitung von 1500 t/a Leichtwasser-, 1500 t/a Schnellbrüter- und 60 t/a Hochtemperaturreaktorbrennstoff berechnet. Unter Zugrundlegung einer Dosisgrenze von 30 mrem/a werden die Mindest-Abscheidefaktoren und Mindest-Abklingzeiten bestimmt.

Der Berechnung der bis zum Jahr 2000 zu erwartenden Kr-85-Dosis sind verschiedene globale Luftaustauschmodelle zugrunde gelegt, um ihren Einfluß zu studieren. Weiterhin wird der Einfluß der Installation von Edelgasabtrennanlagen in Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungsanlagen auf den zeitlichen Verlauf dieser Dosis untersucht.

Schließlich werden in einem Anhang die Wirkungsweise und Zukunftsaussichten der technischen Verfahren zur Rückhaltung von Krypton und Xenon dargestellt und die mögliche künftige Nutzung dieser Elemente diskutiert.

Zum Studium wurde die zugängliche Literatur herangezogen, soweit sie bis 1. September 1973 erschien.

2. Natürliches Vorkommen und Eigenschaften der Elemente Krypton und Xenon

2.1. Natürliches Vorkommen

Im Jahre 1898 wurde Krypton gleichzeitig mit Xenon von RAMSAY und TRAVERS bei der Fraktionierung flüssiger Luft entdeckt.

Krypton

Die Angaben über den natürlichen Kryptongehalt der Atmosphäre schwanken von $1,1 \cdot 10^{-4}$ Vol.-% /12/ bis $1,5 \cdot 10^{-4}$ Vol.-% /20/. Mit einem Gesamtvolumen der Atmosphäre von $4 \cdot 10^{18} \text{ m}^3$ /21/ im Normzustand (0°C , 760 mm Hg) ergibt sich ein gelöstes Kryptonvolumen von etwa $4,5 \cdot 10^{12} \text{ Nm}^3$. Der Partialdruck des natürlichen Kryptons bei Normalnull beträgt demnach ca. 10^{-6} atm. Bei diesem Druck beträgt die Löslichkeit im Ozeanwasser $6,2 \cdot 10^{-6}$ Vol.-% /12/. Pannetier /7/ errechnet deshalb bei einem Gesamtvolumen der Wassermassen auf der Erde von $1,4 \cdot 10^{18} \text{ m}^3$ ein gelöstes Kryptonvolumen von $8,6 \cdot 10^{10} \text{ Nm}^3$. Nach Hintenberger /22/ zeigten Messungen des Kryptongehalts der Ozeane bis in 4000 m Tiefe allerdings eine Zunahme mit der Tiefe bis zu $9,9 \cdot 10^{-6}$ Vol.-%. Somit kann angenommen werden, daß etwa 10^{11} Nm^3 Krypton in den Ozeanen gelöst sind. Das bedeutet, daß die Atmosphäre 97% des natürlichen Kryptons enthält.

Der Kryptongehalt der gesamten Erdkruste wird auf $2 \cdot 10^{-8}$ Vol.-% geschätzt, wobei die erfaßte Tiefe nicht ersichtlich ist und die Häufigkeit im Kosmos mit 51,3 Atome pro 10^6 Atome Silizium angegeben wird /20,23/.

Natürliches Krypton setzt sich zu folgenden Teilen aus den 6 stabilen Kryptonisotopen zusammen /24/:

Kr-78	0,35 %
Kr-80	2,27 %
Kr-82	11,56 %
Kr-83	11,55 %
Kr-84	56,90 %
Kr-86	17,37 %
	<hr/>
	100,00 %

Der Anteil natürlicher radioaktiver Kryptonisotope ist mit $2 \cdot 10^{-8}\%$ in dieser Bilanz vernachlässigbar. Auf sie wird speziell in Kapitel 4 eingegangen.

Xenon

Der Xenongehalt der Atmosphäre wird auf $8 \cdot 10^{-6}$ Vol.-% /20/ geschätzt. Daraus ergibt sich in der gesamten Atmosphäre ein gelöstes Xenonvolumen von etwa $3,4 \cdot 10^{11}$ Nm³ und ein Partialdruck bei Normalnull von $9 \cdot 10^{-8}$ atm. Nach den Messungen von Hintenberger /22/ zeigt der Xenongehalt der Ozeane ebenfalls eine Zunahme mit der Tiefe um etwa 50% bis zu $1,6 \cdot 10^{-6}$ Vol.-% in 3500 m Tiefe. Das gelöste Xenonvolumen in den Ozeanen wird deshalb zu $1,8 \cdot 10^{10}$ Nm³ angenommen, was etwa 5% des Gehalts in der Atmosphäre entspricht.

Die Erdkruste enthält $2 \cdot 10^{-9}$ Vol.-% Xenon, und die kosmische Häufigkeit beträgt 4 Atome pro 10^6 Atome Silizium /20,23/.

Im natürlich vorkommenden Xenon sind die 9 stabilen Xenonisotope mit folgenden Anteilen enthalten /25/:

Xe-124	0,098 %
Xe-126	0,092 %
Xe-128	1,94 %
Xe-129	26,62 %
Xe-130	4,09 %
Xe-131	21,20 %
Xe-132	26,84 %
Xe-134	10,36 %
Xe-136	8,76 %
	<hr/>
	100,00 %

Die Halbwertszeit der radioaktiven Xenonisotope ist so kurz, daß ihr Anteil vernachlässigbar klein ist. In der Literatur finden sich keine Angaben über natürlich vorkommende Xenonisotope.

2.2. Chemische Eigenschaften

Krypton und Xenon werden als Edelgase oder "inerte" Gase klassifiziert, da sie unter normalen Bedingungen infolge ihrer abgeschlossenen Elektronenschale im allgemeinen keine chemischen Bindungen eingehen können.

Seit 1962 werden jedoch zahlreiche Verbindungen der Edelgase Krypton und Xenon mit den stärksten elektronegativen Elementen Fluor und Sauerstoff hergestellt.

Die Edelgasfluoride XeF_4 , XeF_6 , KrF_2 , KrF_4 werden durch elektrische Entladung bzw. durch Einwirkung von UV-Strahlen auf die Mischung von Krypton oder Xenon mit F_2 erzeugt /20/.

Bei der Hydrolyse entstehen die Verbindungen mit Sauerstoff, z.B. das brisante XeO_3 oder die Salze XeO_2F_2 , XeOF_4 , Ba_3XeO_6 , $\text{KrF}_2 \cdot \text{SbF}_5$ /20/.

Krypton und Xenon bilden auch Clathrate mit Wasser, Hydrochinon ($\text{HO-C}_6\text{H}_4\text{-OH}$) u.a., die jedoch nicht als echte Edelgasverbindungen aufgefaßt werden können. Unter Clathraten versteht man Einschlußverbindungen, gebildet durch Einschluß kleiner Moleküle in den Hohlräumen eines Wirtsgitters, das aus anderen Molekülen aufgebaut ist, z.B. $\text{Xe}(\text{H}_2\text{O})_2$, $\text{Xe}(\text{H}_2\text{O})_{13}$, $\text{Kr}(\text{H}_2\text{O})_6$. Clathrate bilden sich bei einem Druck von 14,5 atm in Beisein von Wasserdampf /20/.

Edelgase sind in Flüssigkeiten nur schwach löslich. So löst sich Krypton z.B. in Wasser von 15 °C bei einem Teildruck von 1 atm zu 6 Vol.-% /26,27/. In einigen organischen Flüssigkeiten (z.B. Mesitylen, p-Xylol, 80% Paraffin) beträgt die Löslichkeit etwa das 10fache. Als besonders gute Lösungsmittel erwiesen sich die Freone: Im Kühlmittel R-12 (Refrigerant 12), das auch unter der Bezeichnung Frigen-12 (CF_2Cl_2) bekannt ist, löst sich Krypton z.B. bei -80 °C und 1 atm Teildruck zu 1260 Vol.-% /28/. Weitere Löslichkeitskoeffizienten von Krypton für verschiedene Temperaturen finden sich bei Kirk /29/

und Guber /28/. Die gute Löslichkeit in einigen Lösungsmitteln bietet u.a. die Grundlage für die Abtrennung radioaktiver Edelgase aus der Abluft kerntechnischer Anlagen (s. Kap.10.1.).

2.3. Physikalische Eigenschaften

Eine Übersicht über die physikalischen (mechanisch-thermischen) Eigenschaften der Elemente Krypton und Xenon gibt Tabelle 2-1. Beide Edelgase besitzen gegenüber Luft eine größere Masse. Daraus darf jedoch nicht geschlossen werden, daß sie sich in Bodennähe anreichern. Infolge Durchmischung und dauernder Luftbewegung ist die Zusammensetzung der Atmosphäre (natürlich vorkommende Edelgase eingeschlossen) bis in eine Höhe von 100 km konstant /30/; die Edelgase verteilen sich demnach mit der Höhe proportional der vorhandenen Luftmasse.

Tabelle 2-1 Physikalische Eigenschaften der Elemente Krypton und Xenon (nach /7,20,23,29/)

	Krypton	Xenon
Ordnungszahl	36	54
Rel. Atommasse	83,8	131,3
Atomradius [\AA]	1,97	2,18
Normdichte (0 °C) * [mg/cm^3]	3,744	5,896
Dichte bei 20 °C * [mg/cm^3]	3,488	
Dichte bei 25 °C * [mg/cm^3]		5,43
Siedepunkt * [°C]	-153,3	-108,12
Schmelzpunkt * [°C]	-157,2	-112
Krit. Temperatur [°C]	- 63,75	16,59
Krit. Druck [at]	56,0	57,64
Krit. Dichte [mg/cm^3]	0,9085	1,1
Triplepunkt [°C]	-157,17	-111,9
Druck am Triplepunkt [Torr]	549	612
Molvolumen * [Nm^3/Kmol]	22,382	22,269

* Angaben für Normaldruck bei 1 atm $\hat{=}$ 760 mm Hg

Außer den 6 natürlich vorkommenden, stabilen Isotopen gibt es von Krypton 18 radioaktive Isotope. Von Xenon sind neben den 9 stabilen Isotopen noch 17 radioaktive Isotope bekannt, die jedoch nicht alle in der Natur vorkommen.

2.4. Eigenschaften der Radioisotope

Radioisotope der Elemente Krypton und Xenon werden zu den Nukliden niedriger Radiotoxizität gezählt und zerfallen durch Negatronen (β^-) oder Positronen (β^+). Für die bei der Kernspaltung entstehenden Radioisotope mit einer Halbwertszeit größer als 30 Sekunden sind in Tabelle 2-2 die Zerfallsenergien und Halbwertszeiten angegeben.

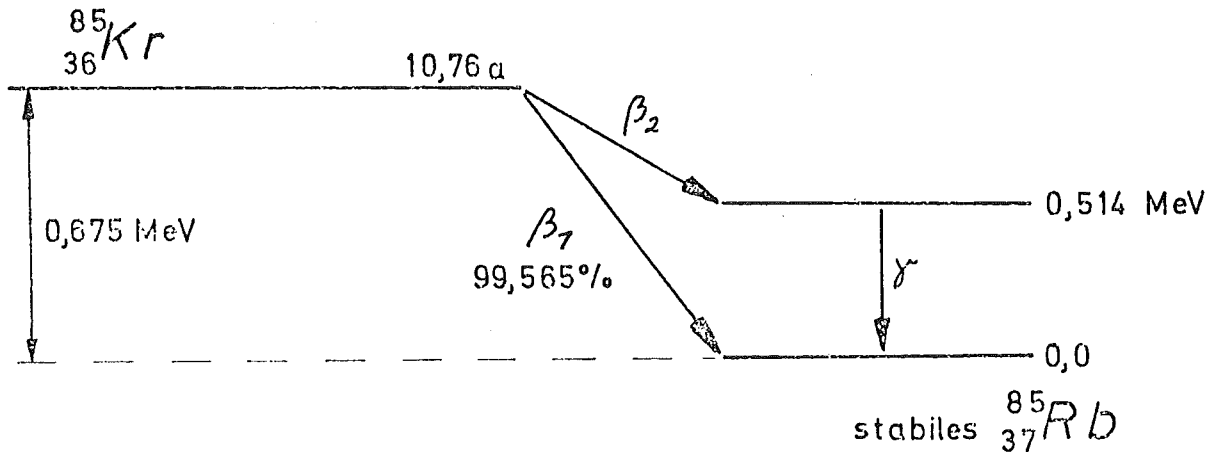
Tabelle 2-2 Halbwertszeiten und Zerfallsenergien für Krypton- und Xenonisotope mit $T_{1/2} > 30$ Sekunden /31,32/

Isotop	Halbwertszeit	Zerfallsenergie [MeV]		
		E_{eff}^{β}	E_{eff}^{γ}	E_{eff}
Kr 83 m	1,86 h	0,0	0,031	0,031
85	10,76 a	0,266	0,002	0,268
85 m	4,4 h	0,256	0,151	0,406
87	1,27 h	1,523	1,374	2,897
88	2,85 h /33/	0,444	1,743	2,187
89	2,97 m /33/	1,980	2,310	4,290
90	33 s	1,311	1,539	2,849
91	57 s	1,752	0,0	1,752
Xe 131 m	11,8 d	0,160	0,003	0,163
133	5,27 d	0,132	0,030	0,162
133 m	2,23 d	0,053	0,033	0,086
135	9,2 h	0,367	0,246	0,613
135 m	15,6 m	0,0	0,422	0,422
137	3,82 m /33/	1,365	0,150	1,516
138	17 m	1,099	1,195	2,294
139	41 s	2,664	0,0	2,664

Aufgrund ihrer chemischen Inertheit werden die Spaltedelgase Krypton und Xenon vom Körper nur geringfügig absorbiert. Radioaktive Edelgase gelangen zunächst in die Atemwege und in die Lunge. Entsprechend dem Konzentrationsgefälle werden sie im Körper verteilt und z.T. vorübergehend im Fettgewebe abgelagert, aber auch wieder ausgeatmet /34/. Die Gefährdung durch die Strahlung reduziert sich deshalb im wesentlichen auf die äußere Bestrahlung, wobei als kritisches Organ die Haut betrachtet wird, da diese die β -Strahlung fast total absorbiert. Siehe dazu Kapitel 3 sowie die Arbeiten von Hendrickson /35/, Dunster und Warner /36/.

Da im Rahmen dieser Arbeit die relativ langlebigen Nuklide Kr 85, Xe 131m und Xe 133 von besonderem Interesse sind, wird auf ihre Zerfallseigenschaften im folgenden genauer eingegangen.

Krypton-85



Wegen der größeren Genauigkeit der Werte von Denecke /37/ gegenüber anderen Angaben /12,37,38,39,40/ werden erstere hier für den Zerfall des Krypton-85 angegeben. Mit einer Wahrscheinlichkeit von 99,565% geht Kr 85 durch β -Zerfall mit einer maximalen Energie von 0,675 MeV direkt in den Grundzustand des Nachfolgenuklides Rubidium-85 über. Ein zweites β -Spektrum mit $E_{\text{max}}=0,158$ MeV tritt mit einer Wahr-

scheinlichkeit von $0,435\% \pm 0,013\%$ auf, wodurch Kr 85 in einen angeregten Zustand des Nachfolgekerns übergeht. Nach $1,05 \pm 0,2 \mu\text{sec}$ geht das angeregte Rb-85 unter Aussendung eines γ -Quants von 514 keV in den Grundzustand über. Das β -Spektrum mit $E_{\text{max}} = 0,158 \text{ MeV}$ wird üblicherweise nicht gesondert berücksichtigt, sondern die Energie dem nachfolgenden γ -Zerfall zugeschlagen.

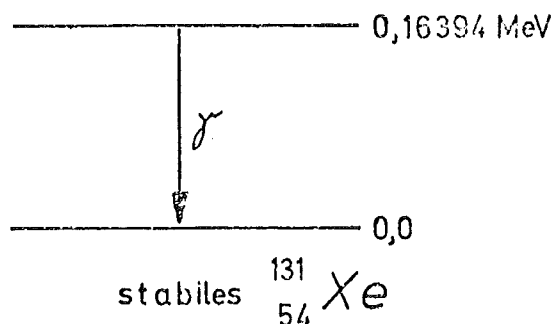
Die maximalen Reichweiten von β -Strahlen aus Kr 85 in verschiedenen Materialien betragen /12,41/:

in Wasser und Gewebe	2,2 mm
Luft	1,78 m
Blei	0,17 mm
Eisen	0,29 mm
Aluminium	0,83 mm
Glas	0,93 mm
Beton	1,09 mm
Plexiglas	1,70 mm

Die Absorptions- und Schwächungskoeffizienten für γ -Strahlen in Luft und Wasser sind /12/:

	$\mu_a \text{ [cm}^{-1}\text{]}$	$\mu_s \text{ [cm}^{-1}\text{]}$
Luft	$3,8 \cdot 10^{-5}$	$1,1 \cdot 10^{-4}$
Wasser u. Gewebe	0,032	0,1

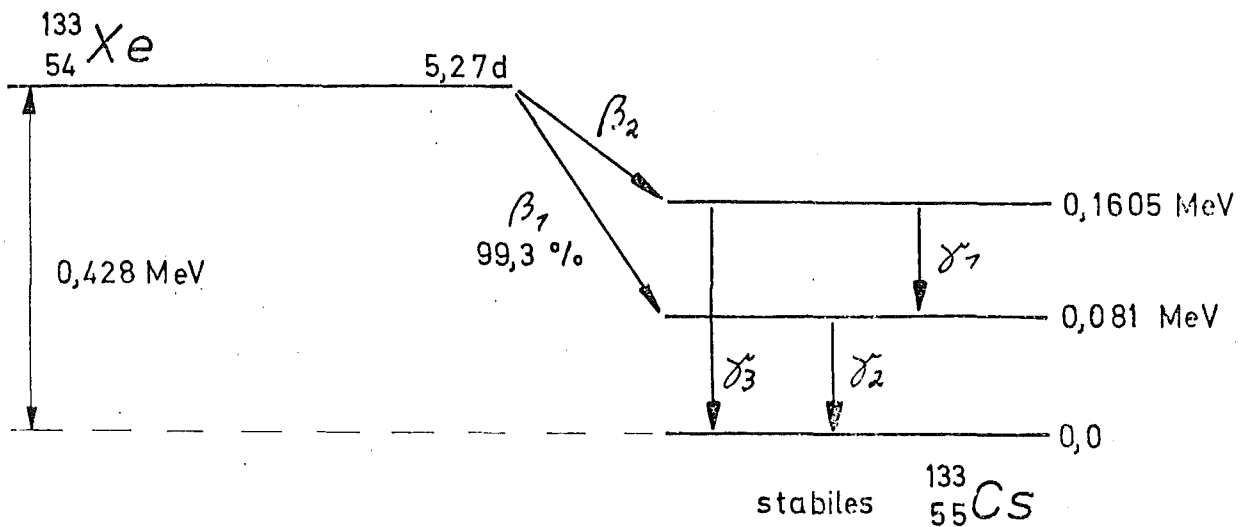
Xenon-131_m



Xenon-131 m wird unter Abgabe eines γ -Quants von 0,16394 MeV zum stabilen Xenon 131 /42/. Nach Schröder /43/ ergeben sich daraus folgende Absorptions- und Schwächungskoeffizienten:

	μ_a [cm ⁻¹]	μ_s [cm ⁻¹]
Luft	$3,2 \cdot 10^{-5}$	$1,7 \cdot 10^{-4}$
Wasser	0,028	0,14

Xenon-133



Nach den sehr detaillierten Angaben von Loken und Kush /44/ geht Xe-133 mit einer Wahrscheinlichkeit von 99,3% unter Aussendung eines β_1 -Teilchens mit einer maximalen Energie von $E_{\text{max}} = 0,347$ MeV und zu 0,7% unter Abgabe eines β_2 -Teilchens mit $E_{\text{max}} = 0,187$ MeV in die angeregten Zustände des Nachfolgekernes Cs-133 über. Auf diese Zerfälle folgt die Aussendung eines Photons oder eines inneren Konversionselektrons mit den Energien und Häufigkeiten: $\gamma_1 = 0,1524$ MeV (0,225%); $\gamma_2 = 0,081$ MeV (34,99%); $\gamma_3 = 0,1605$ MeV (0,07%).

3. Grenzwerte und Richtlinien

Die für die höchstzulässige Ableitung radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen maßgebenden Dosisgrenzwerte sind, ausgehend von den internationalen Strahlenschutzempfehlungen der ICRP /45,46/, für die BRD in der 1. Strahlenschutzverordnung /47/ und für die USA im Code of Federal Regulations (CFR) festgelegt. Die für die Ableitung von Edelgasen relevanten Grenzwerte, Richtlinien und Tendenzen in beiden Ländern werden im folgenden wiedergegeben.

Die Ganzkörper- und Gonadendosisgrenze für Einzelpersonen außerhalb kerntechnischer Anlagen beträgt nach §72 der ICRP 9 /46/ $500 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$. Die Hautdosisgrenze für Einzelpersonen ist zu $3 \frac{\text{rem}}{\text{a}}$ festgelegt /46/. Da den Richtlinien der ICRP /45/ zufolge angenommen wird, daß für Kr-85 die Ganzkörperdosisgrenze angewendet werden muß - $E_{\beta} > 0,1 \text{ MeV}$ -, ergibt sich bei $500 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ eine maximal zulässige Konzentration (MZK) von $3 \cdot 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ Kr-85 /29,35/. Die Methode der Berechnung der MZK-Werte wurde in die Verordnungen der BRD und der USA übernommen (siehe dazu Tabelle 3-1).

Hinsichtlich der Strahlenexposition der Bevölkerung gibt die ICRP /45/ zusätzlich eine über die Gesamtbevölkerung gemittelte Dosisgrenze an. Dabei hat sie sich überwiegend auf die vorsichtigen Abschätzungen der Genetiker abgestützt /1/. Demnach soll die genetisch wirksame (signifikante) Strahlenbelastung der Gesamtbevölkerung^{*)} so gering wie möglich sein und nicht mehr als 5 rem in 30 Jahren betragen, was $170 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ entspricht /45,46,52/. Bei einer Zwei-Kinder-Ehe - zur Zeit in Mitteleuropa üblich - entspricht dieser Grenzwert einer mittleren Gonadendosis der Einzelperson der Bevölkerung von ebenfalls 170 mrem/a. Dieser Mittelwert, der unter der individuellen Ganzkörper- und Gonadendosisgrenze von 500 mrem/a liegt, läßt entsprechende Überschreitungen für Einzelpersonen zu unter

^{*)} Die genetisch signifikante Dosis ist eine von der Gonadendosis abgeleitete Größe, in die die Anzahl der zu erwartenden Kinder als Wichtung eingeht. Die genaue Definition ist in /50/ zu finden.

der Voraussetzung, daß der Mittelwert eingehalten wird /41/.

In Sec.20.105 des CFR /48/ wird die maximale individuelle Ganzkörperdosis von 500 mrem/a und in Sec.20.106, Ziffer 7e wird die mittlere Bevölkerungsdosisgrenze von $170 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ für die USA übernommen.

In §22 der für die BRD gültigen 1. SSV0 /47/ wird die maximal zulässige Strahlenbelastung auf $150 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ festgelegt, damit außerhalb des KKW kein Überwachungsbereich eingerichtet werden muß. Danach beträgt die maximale genetisch signifikante Dosis in der BRD 5 rem/30 a.

Nach den Beratungen der Deutschen Atomkommission wird man in Zukunft wahrscheinlich von geringeren Dosisgrenzen ausgehen /1/. Als maximale Individualdosis, hervorgerufen durch die radioaktive Abluft, werden für die Genehmigungspraxis $30 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ vorgeschlagen, was einer Belastung von 1 rem in 30 Jahren entspricht. Diese Zahl ergibt sich aus den Überlegungen, daß von 5 rem/30a Gesamtbelastung 2 rem für medizinische Anwendung abgezogen werden und 1 rem für spezielle Belastungen (z.B. Flugzeug). Von den verbleibenden 2 rem/30a für die Kernenergie ist eine Hälfte (1 rem/30a) der Belastungsrichtwert für luftgetragene Radionuklide; die andere Hälfte stellt den Richtwert für mit den Abwässern abgegebene Radionuklide dar /52/. In Auslegung der Strahlenschutzgrundsätze und aufgrund der günstigen technischen Erfahrung wird der Wert von $1 \frac{\text{rem}}{30\text{a}} = 30 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$, bei dem vom Grenzwert für die Gesamtbevölkerung ausgegangen wurde, in der Genehmigungspraxis als maximale Individualdosis angenommen /1/.

Da die in der Tabelle der 1. SSV0 angegebenen MZK-Werte für Edelgase einer Strahlenbelastung von $5 \frac{\text{rem}}{\text{a}}$ entsprechen (bzw. $\frac{1}{10}$ der MZK-Werte = $500 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$), müßte die maximal zulässige Aktivitätskonzentration nach dem 30 mrem/a-Kriterium um den Faktor 150 niedriger liegen. Tabelle 3-1 gibt eine Übersicht der jeweiligen MZK-Werte für Krypton- und Xenonisotope in Luft.

Tabelle 3-1 MZK-Werte für Krypton- und Xenonisotope in Luft und entsprechende Strahlenbelastung (von ICRP-Berechnung /45/ ausgehend)

Nuklid	MZK-Werte in Luft $\left[\frac{\mu\text{Ci}}{\text{cm}^3} \right]$ bei einer max. zul. Strahlenbelastung von			
	$5 \frac{\text{rem}}{\text{a}}^{(1)}$ Dosis für berufl. strahlenexp. Personen	$500 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}^{(2)}$ Individualdosis	$150 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ mittlere Bevöl- kerungsdosis	$30 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ künftige In- dividualdosis
Kr 85 m	$1 \cdot 10^{-6}$	$1 \cdot 10^{-7}$	$3,3 \cdot 10^{-8}$	$6,6 \cdot 10^{-9}$
85	$3 \cdot 10^{-6}$	$3 \cdot 10^{-7}$	$1 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-8}$
87	$2 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-8}$	$6,6 \cdot 10^{-9}$	$1,3 \cdot 10^{-9}$
Xe 131 m	$4 \cdot 10^{-6}$	$4 \cdot 10^{-7}$	$1,3 \cdot 10^{-7}$	$2,6 \cdot 10^{-8}$
133	$3 \cdot 10^{-6}$	$3 \cdot 10^{-7}$	$1 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-8}$
135	$1 \cdot 10^{-6}$	$1 \cdot 10^{-7}$	$3,3 \cdot 10^{-8}$	$6,6 \cdot 10^{-9}$

(1) Tabellenwerte der 1. SSV0 /47/

(2) Tabelle II des CFR, Title 10, Part 20 /48/

Für ein Edelgasgemisch, das überwiegend Kr-85 und Xe-133 enthält, beträgt der Tabellenwert der 1. SSVO $3 \cdot 10^{-6} \frac{\mu\text{Ci}}{\text{cm}^3}$. Für Krypton und Xenon sind diese Tabellenwerte bzw. die max. zulässigen Konzentrationswerte für Neugeborene, Kinder und Erwachsene gleich groß, d.h. unabhängig vom Lebensalter. Eine Beschränkung der Konzentrationswerte in Wasser wird in den Tabellen für die BRD /47/ und die USA /48/ nicht angegeben.

Nach den Vorschlägen der AEC-10 CFR 50 /49/ wird man in Zukunft auch in den USA von niedrigeren max. Dosisgrenzen ausgehen. Auslegungsrichtlinien für LWR sind wie folgt vorgesehen:

- Der Richtwert (Design Value) zur Strahlenbelastung durch radioaktive Edelgase außerhalb des Zaunes beträgt 10 mrem/a, mit der Einschränkung, daß die Strahlenbelastung für Einzelpersonen der Bevölkerung insgesamt 5 mrem/a nicht überschreiten soll. Ein spezieller Hautdosis-Richtwert von 15 mrem/a ist in der Diskussion /53/. Durch den Faktor 3 soll dem Umstand Rechnung getragen werden, daß in den ICRP-Vorschlägen die Hautdosisgrenze um einen Faktor 6 über der Ganzkörperdosisgrenze liegt.
- Eine Reduktion der MZK-Werte für radiologisch bedeutsame Nuklide (Jod, radioaktive Aerosole; nicht für Krypton und Xenon) um den Faktor 10^5 , was einer Reduktion der Tabellenwerte der 1. SSVO um den Faktor 10^6 gleichkommt.

Die angegebenen Richtwerte der AEC-Vorschriften dürfen grundsätzlich mehrfach überschritten werden /1/. In der BRD hingegen ist eine Überschreitung der genehmigten technischen Richtwerte nur "im genau angegebenen Umfang" möglich /1/.

Neuere Untersuchungen zur Wirkung von β - und γ -Strahlen von Kr-85 /29,35,36/ zeigen, daß der durch die ICRP festgelegte MZK-Wert von $3 \cdot 10^{-7} \frac{\mu\text{Ci}}{\text{cm}^3}$ eine Ganzkörper- oder Gonadenstrah-

lenbelastung zur Folge hat, die um etwa einen Faktor 100 unter dem von der ICRP angegebenen Dosisgrenzwert von $500 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ für Einzelpersonen der Bevölkerung liegt. Die gleichen Überlegungen zur Hautstrahlenbelastung /29,36/, für die eine Individualgrenzdosis von $3 \frac{\text{rem}}{\text{a}}$ gilt (siehe oben), zeigen, daß die resultierende Dosis um den Faktor 6 unter dem Grenzwert liegt.

Dunster und Warner /36/ rechnen deshalb für die nächste Ausgabe der ICRP-Empfehlungen mit einer Erhöhung des MZK-Wertes für Kr-85 um den Faktor 5. Bei gleicher Aktivitätskonzentration beträgt die Hautdosis durch Xe-131m und Xe-133 ungefähr 60% der Hautdosis durch Kr-85. Wegen des höheren Anteils der γ -Strahlung liegt die Gonaden- und Ganzkörperdosis durch Xenon bei gleicher Konzentration um einen Faktor 10 über der entsprechenden Dosis durch Kr-85 (vgl. Tab. 2-2 und /36/).

4. Natürliche Kr-85-Quellen

Die Atmosphäre zeigt einen sehr geringen Gehalt an natürlichem Kr-85. Wegen der in den letzten Jahren sehr viel größeren künstlichen Kr-85-Erzeugung und -Freisetzung kann dieser natürlich vorliegende Untergrund nur noch nachträglich abgeschätzt werden. Im folgenden werden zwei im Jahr 1971 durchgeführte Berechnungen erläutert.

Nach Diethorn und Stockho /12/ gibt es für die natürliche Kr-85-Entstehung 2 Quellen: Die spontane und neutronen-induzierte Spaltung des Urans und den Neutroneneinfang des stabilen, in der Atmosphäre vorhandenen Kr-84. Die Gleichgewichtsaktivität des Kr-85 aus Spontanspaltung in einer 3 Meter dicken Schicht der Erdoberfläche und in den Ozeanen wird mit jeweils etwa 2 Ci angegeben. In der kosmischen Strahlung vorhandene Neutronen spalten das Uran ebenfalls. Die Kr-85-Aktivität aus neutronen-induzierter Spaltung wird zu 10^{-2} Ci auf den Kontinenten und zu 10^{-5} Ci im Meer geschätzt. Damit ist dieser Anteil genauso vernachlässigbar wie die durch α -Teilchen aus Uran- und Thoriumzerfall hervorgerufene neutronen-induzierte Spaltung des Urans.

Der weitaus größte Beitrag zum natürlichen Kr-85-Gehalt ergibt sich nach Diethorn und Stockho /12/ aus der Reaktion $\text{Kr-84} (n, \gamma) \text{Kr-85}$ des atmosphärischen Kryptons. Über die Erdoberfläche gemittelt werden in der Atmosphäre 4 Neutronen pro cm^2 und sec aus kosmischer Strahlung absorbiert. Das Energiespektrum der Neutronen ist sehr komplex und ändert sich mit der Höhe. Zur Berechnung des Anteils von Neutronen, der von Kr-84 eingefangen wird, verwandte man die thermischen Wirkungsquerschnitte der Komponenten der Luft ($\sigma_{n, \gamma} = 0,16$ barn) /54/. Demnach werden von Kr-84 $2 \cdot 10^{-8}$ der Neutronen absorbiert. Mit einer Erdoberfläche von $5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^2$ ergibt sich daraus eine Gleichgewichtsaktivität an atmosphärischem Kr-85 von etwa 10 Ci. Die Summe der Einzelaktivitäten ergibt somit $10+2+2 = 14$ Ci.

Suzuki und Inoue /55/ nehmen als natürliche Quelle nur die Spontanspaltung des natürlichen Urans an. Aus den von Young und Thode /56/ für Kr-83, Kr-84 und Kr-86 gemessenen Spaltausbeuten für die Spontanspaltung von U-238 extrapolieren sie für Kr-85 einen Wert von 0,09%. Mit einer Zerfallskonstanten von $3,38 \cdot 10^{-24} \frac{1}{\text{sec}}$ /42/ für die Spontanspaltung des U-238 ergibt sich eine Kr-85-Produktion von $3,04 \cdot 10^{-27}$ Atomen pro Uranatom und Sekunde. Unter der Annahme, daß die Ozeane und eine 10 m dicke Schicht der Erdoberfläche $1,5 \cdot 10^{28}$ Atome Uran enthalten, werden etwa $5 \cdot 10^{11}$ Kr-85-Atome pro Sekunde produziert. Suzuki und Inoue /55/ nehmen eine vollständige Freisetzung dieser Atome in die Atmosphäre an und erhalten damit eine Gleichgewichtsaktivität von weniger als 14 Ci.

Beide Abschätzungen kommen, obwohl sie von unterschiedlichen Annahmen ausgehen, zum gleichen Ergebnis. Bei gleichmäßiger Verteilung des natürlichen Kr-85 in der Atmosphäre ($4 \cdot 10^{18} \text{ Nm}^3$, siehe Kapitel 2.1.) entspricht die Aktivität von 14 Ci einer Konzentration von $3,5 \cdot 10^{-6} \frac{\text{pCi}}{\text{m}^3}$ Luft im Normalzustand.

Tabelle 4 Natürliches Kr-85-Vorkommen im Vergleich zweier Abschätzungen

	1. Abschätzung	2. Abschätzung
Autor	Diethorn u. Stockho	Suzuki u. Inoue
Literaturstelle	/12/	/55/
angegebene Einheit	Ci	Ci
Spontanspaltung des Urans in der Erdoberfläche	2	} 14
Spontanspaltung des Urans in den Ozeanen	2	
aus atmosph. Kr-84	10	
Summe	14	14

5. Krypton und Xenon aus Kernexplosionen

Durch die seit 1945 stattfindenden Kernexplosionen werden radioaktive Edelgasisotope erzeugt. Die freigesetzte Edelgasaktivität wird im folgenden abgeschätzt, wobei zwischen Explosionen für militärische Zwecke (Kernwaffentests) und für friedliche Zwecke (Bewegung großer Erdmassen) unterschieden wird.

5.1. Militärische Zwecke

Oberirdische Kernwaffentests wurden seit der Unterzeichnung des Atomwaffensperrvertrages (5. August 1963) von den Signatarstaaten zugunsten unterirdischer Tests aufgegeben. Frankreich und die Volksrepublik China sind diesem Abkommen nicht beigetreten und führen deshalb als einzige Nationen weiterhin in kleinerem Rahmen oberirdische Kernwaffenversuche durch. Tabelle 5-1 gibt eine chronologische Zusammenstellung der bis 1972 in der Atmosphäre erfolgten Atomwaffenexplosionen. Unterirdische Waffentests bleiben unberücksichtigt, da ihr Beitrag zur radiologischen Edelgasbelastung schlecht abschätzbar, bestimmt aber gering ist im Vergleich zu oberirdischen Explosionen (siehe Kap. 5.2.).

Die von allen beteiligten Nationen bis 1972 durch oberirdische Waffentests freigesetzte Kernenergie entspricht einer Sprengkraft von 530 Megatonnen TNT. Tabelle 5-2 ist die jährlich freigesetzte Bombensprengkraft zu entnehmen. Über die Größe der chinesischen und französischen Kernwaffentests gibt es sehr unterschiedliche Schätzungen. Die Werte in Tabelle 5-2 sind deshalb ab 1963 Mittelwerte der letzten verfügbaren Angaben /58,59/. Durch Waffentests mit reinen Spaltreaktionen wurden insgesamt 196 Megatonnen TNT frei, wovon eine Energie entsprechend 156 Megatonnen TNT direkt in die Stratosphäre gelangte /59/. Über 60% dieser Stratosphärenbelastung ergeben sich aus den Tests der Jahre 1961-62, als die USA und UdSSR Kernwaffen in großem Umfang testeten.

Tabelle 5-1 Atomwaffenexplosionen in der Atmosphäre von 1945-1972 /57,58,59/

Jahr	Anzahl der Explosionen				
	USA	UdSSR	UK	RF	VCh
1945	3				
1946	2				
1948	3				
1949		1			
1951	16	2			
1952	10		1		
1953	11	2	2		
1954	6	1			
1955	15	4			
1956	14	7	6		
1957	28	13	7		
1958	66	25	5		
1959					
1960				3	
1961		51		1	
1962	39	39			
1963		1			
1964					1
1965					1
1966				5	3
1967				3	2
1968				5	1
1969					1
1970				8	1
1971				5	1
1972				4	2

Tabelle 5-2 Sprengkraft der oberirdischen Atomwaffenexplosionen in den Jahren 1945-1972 /7,58,59/

Zeitraum	Sprengkraft in $\sqrt{\text{MT}}$ TNT	
	Gesamt	durch Spaltung
1945-51	0,62	0,52
1952-54	60	38
1955-56	28	13
1957-58	85	40
1959-60	0,07	0,07
1961	120	25
1962	217	76
1963		
1964	0,02	
1965	0,04	
1966	0,52	
1967	3,02	0,02
1968	7,5	4,3
1969	3	
1970	4,8	
1971	1,4	
1972	0,1	
Gesamt	≈ 531	>196

Für die Abschätzung der heute noch vorhandenen Edelgasaktivität aus oberirdischen Waffentests ist nur das Nuklid Kr-85 von Interesse, da alle anderen Edelgasisotope auf Grund ihrer relativ kurzen Halbwertszeit bereits zerfallen sind. Wie im Anhang (Kap.10.3.) gezeigt, entsteht bei Freisetzung von einem Energieäquivalent von 1 MT TNT aus einer reinen Kernspaltung eine Kr-85-Aktivität von $22 \cdot 10^3$ Ci. Da jede thermokernre Bombe einen auf Kernspaltung beruhenden Sprengsatz enthält, wird dieser Anteil ebenfalls berücksichtigt. Die

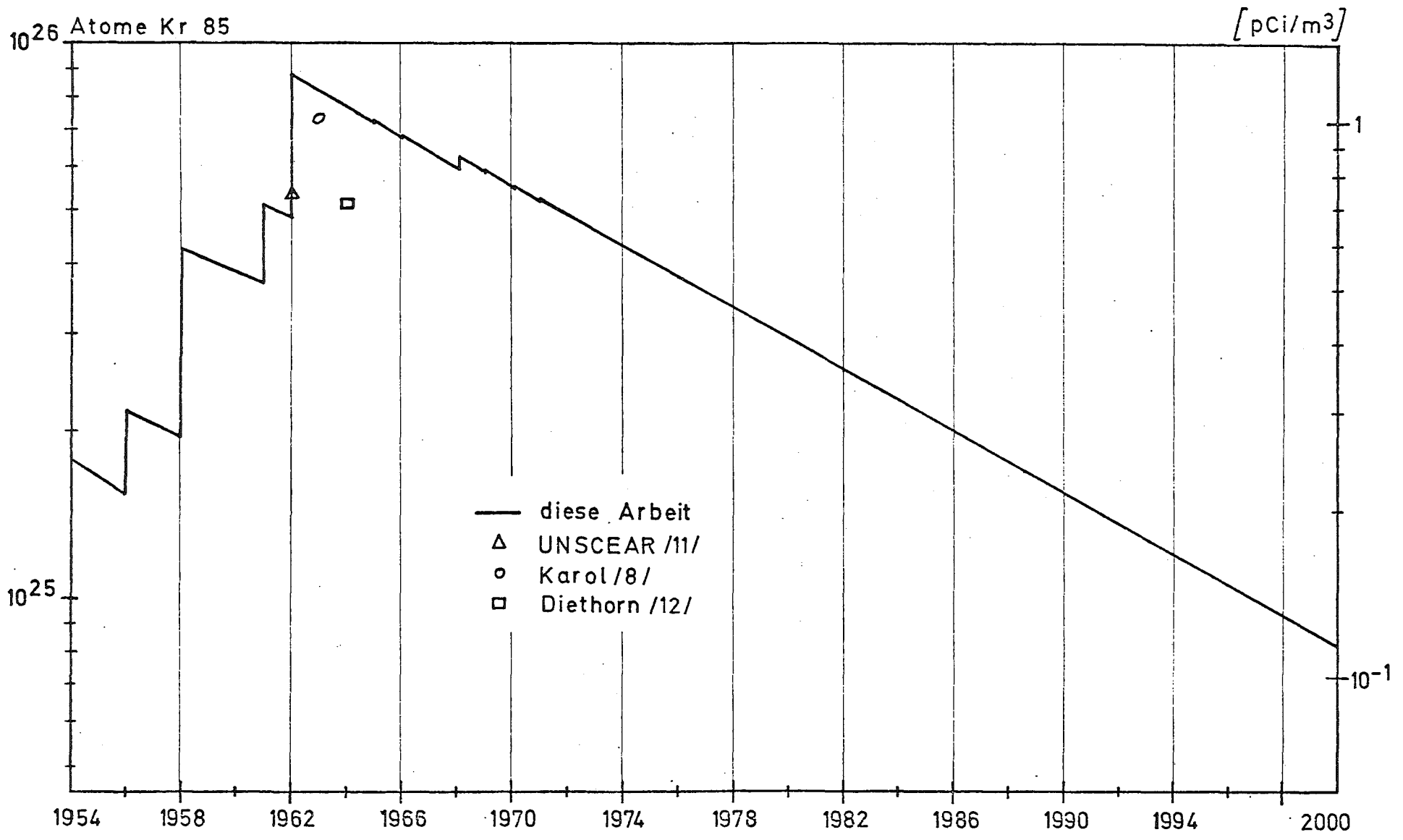
von Stead /60/ 1964 gemachte Annahme, daß 1 MT Fusionsenergie durch 10 KT Fissionsenergie gezündet wird, wurde von Whipple /61/, Unruh /62/ und Fowler /41/ übernommen und soll auch hier gelten. Demnach entsteht bei der Zündung einer 1 MT Wasserstoffbombe eine Kr-85-Aktivität von 220 Ci.

Da Krypton wegen seiner chemischen Inertheit keine Reaktion eingeht und im Wasser der Ozeane kaum löslich ist, nimmt die Kr-85-Aktivität nur durch radioaktiven Zerfall ab (siehe Kap.8.2.1.). Mit den Energieäquivalentangaben der Tabelle 5-2 und durch Überlagerung der Zerfallskurven ergibt sich somit der Kr-85-Gehalt der Atmosphäre aus Kernwaffenversuchen, wie er Abb.5-1 zu entnehmen ist. Die eingezeichneten Abschätzungen aus drei anderen Berichten /8,11,12/ liegen etwas niedriger, da die Kr-85-Produktion durch thermonukleare Bomben nicht berücksichtigt wurde. Wie Abb.5-1 zeigt, haben die bisher nach dem Atomwaffensperrvertrag durchgeführten oberirdischen Kernwaffentests praktisch keinen Einfluß auf das Kr-85-Inventar der Atmosphäre.

Obwohl, wie schon erwähnt, ein Teil der Aktivität direkt in die Stratosphäre gelangte, kann heute mit einer gleichmäßigen Verteilung in Tropo- und Stratosphäre gerechnet werden. Die mittlere Verweilzeit für Kr-85 in der Stratosphäre ist nicht bekannt, sie beträgt jedoch nach dem UNSCEAR-Bericht /11/ für Rh-102 5 bis 10 Jahre und für Sr-90 1,1 bis 1,2 Jahre. Wegen der inzwischen sehr viel größeren Kr-85-Freisetzung aus kerntechnischen Anlagen lassen sich bei Kr-85-Messungen /63/ innerhalb der Genauigkeit auch keine jahreszeitlichen Schwankungen feststellen, aus denen sich eine mittlere Verweilzeit von Kr-85 in der Stratosphäre errechnen ließe.

Aus Abb.5-1 ergibt sich für 1970 eine Kr-85-Konzentration aus Kernwaffentests von $0,7 \frac{\text{pCi}}{\text{Nm}^3}$.

Abb.5-1 Kr-85-Gehalt der gesamten Atmosphäre aus oberirdischen Kernwaffenversuchen



5.2. Friedliche Zwecke /11,51/

Während der letzten Jahrzehnte sind Bestrebungen im Gange, Kernexplosionen für friedliche Zwecke nutzbar zu machen. Der unbestreitbare Vorteil einer Kernexplosion liegt in der großen Energiequelle, die zu relativ niedrigen Kosten auf kleinem Raum zur Verfügung steht.

Man unterscheidet zwei Arten von Explosionen:

- a) kratererzeugende Explosionen, mit deren Hilfe große Erdbewegungen durchgeführt werden, um zum Beispiel Minerale freizulegen, Kanäle und Hafenbecken zu bauen, Einschnitte für Straßen und Eisenbahnen zu schaffen oder um Krater für Bergwerks- und Industrieabfälle zu erhalten. Die Tiefe T [m], in der gezündet wird, errechnet sich für solche Explosionen aus der Sprengkraft K [KT] mit $T \approx 60 \cdot K^{-0,294}$ /11/;
- b) geschlossene Explosionen, deren Ziel darauf gerichtet ist, die Durchlässigkeit des Bodens zu erhöhen, um zum Beispiel eine intensive Nutzung von Öl- und Gaslagern zu ermöglichen, geothermische Wärme anzuregen, unterirdische Hohlräume zur Ablagerung für biologisch gefährliche Abfälle zu schaffen oder Öl- und Gasausbrüche zu beenden. Die Tiefe T [m] für völlig geschlossene Explosionen beträgt bei einer Sprengkraft von K [KT]: $T \approx 140 \cdot K^{-0,334}$ /11/.

Kernexplosionen für friedliche Zwecke befinden sich noch im Versuchsstadium. Kratererzeugende Explosionen wurden bisher nur in abgelegenen Gebieten und einer Größenordnung durchgeführt, die klein ist im Vergleich mit der später geplanten Anwendung; z.B. 120 MT für die Schaffung eines Kanals durch den amerikanischen Isthmus (Kolumbien). Geschlossene Explosionen mit praktischer Nutzung wurden bisher nur in der Sowjetunion durchgeführt. Eine Zusammenfassung der bis 1970 stattgefundenen Versuche gibt Tabelle 5-3.

Tabelle 5-3 Kernexplosionen zu friedlichen Zwecken von 1961 - 1970 /11/

Name des Experimentes	Land Datum	Sprengkraft [kT]	Bemerkung
a) <u>kratererzeugend</u>			
Sedan	USA 1962	100	Explosion in Alluvium. Bildg. e. Kraters v. 390m Ø u. 100m Tiefe
Sulky	USA 1964	0,09	" in Basalt. " e. Hügels v. 24m Ø u. 8m Höhe
Palanquin	USA 1965	4	" in Rhyolit. " e. Kraters v. 37m Ø u. 43m Tiefe
Cabriolet	USA 1968	2,5	" in Rhyolit. " e. Kraters v. 220m Ø u. 73m Tiefe
Buggy I	USA 1968	5,5	" in Basalt. Erstes nukl. Reihenexp.: fünf 1,1 kT Ladung in 45,7 m Abstand
Schooner T-1	USA 1968 UdSSR	35 0,2	Bildung eines Grabens von 260 m Länge, 76m Breite u. 20m Tiefe Explosion in Tuff. Bildung e. Kraters v. 74m Ø u. 21m Tiefe " in Sandstein u. Argilit. Bildg. e. Kraters v. 74 m Ø und 21 m Tiefe
"1003"	UdSSR	1,1	" in Schlufmergel. Bildg. e. Kraters von 124 m Ø und 20 m Tiefe
"1004"	UdSSR	>100	" in Sandstein u. Schlufmergel. Bildg. zweier Wasserreservoir; außerhalb u. innerhalb eines Kraters v. 410 m Ø und 100 m Tiefe
b) <u>geschlossen</u>			
Gnome	USA 1961	3,1	Explosion in Salz, Bildg. e. Hohlraumes v. 25 m Ø
Handcar	USA 1964	30	" in Dolomit, Bildg. e. Schachtes v. 42m Ø u. 71m Höhe
Gasbuggy	USA 1967	29	Gasanregungsexperiment, siehe Tabelle 5-4
Rulison	USA 1969	48	Gasanregungsexperiment, siehe Tabelle 5-4
A	UdSSR	1,1	Erkundung der Möglichkeit, einen unterird. Lagerraum in salzhaltiger Formation zu schaffen; Vol. d. Raumes etwa 10.000 m ³
B	UdSSR	25	Erkundung der Möglichkeit, einen unterird. Lagerraum in salzhaltiger Formation zu schaffen; Vol. d. Raumes etwa 140.000 m ³
C	UdSSR	12,6	Explosion dreier Ladungen in 2 verschiedenen Tiefen; Ölanregungsexperiment
D			Gasanregung
E		30	Beendigung eines Gasausbruches

Bei beiden Arten von Explosionen wird Aktivität frei. Während die Freisetzung bei kratererzeugenden Explosionen praktisch unvermeidbar ist, können bei geschlossenen Explosionen nur Edelgase und leichtflüchtige Elemente (Halogene) durch Risse und Kanäle im Boden an die Atmosphäre gelangen. Da die Zeit bis zur Rißbildung und Freisetzung meist in der Größenordnung einer Stunde und länger liegt, gelangen nur die Isotope Kr-85, Kr-85m, Kr-87, Kr-88 und Xe-133, Xe-135, Xe-138 in die Atmosphäre. Sollte die Freisetzungszeit bis zur Erdoberfläche nur im Bereich von Minuten liegen, so spielen auch die kurzlebigen Isotope Kr-89, Kr-90 und Xe-137 eine Rolle. Ihre Folgeprodukte lagern sich an Staubteilchen an und bilden sog. Sekundäraerosole. Durch sorgfältige Wahl des Explosionsortes wurde das bei bisherigen geschlossenen US-Explosionen vermieden. An einem Beispiel sei gezeigt, daß die offengelegten Daten und Zahlen nicht ausreichen, um die Edelgasfreisetzung zu berechnen.

Plowshare-Programm

Eine der wichtigsten Anwendungen von geschlossenen Explosionen ist die Erschließung bzw. Anregung von bekannten natürlichen Öl- oder Gasvorkommen. Nach dem UNSCEAR-Bericht /11/ ist die Aktivitätsabgabe an die Umgebung praktisch gleich Null, jedoch ist das Gas oder Öl bis zu einem gewissen Ausmaß kontaminiert. Im Rahmen des US-Plowshare (Pflugschar)-Programms wurden zwei Gasanregungsexperimente durchgeführt, deren Daten Tabelle 5-4 zu entnehmen sind.

Die Experimente zeigten, daß einige Monate nach der Explosion hauptsächlich die Nuklide H-3 und Kr-85 im Gas vorhanden sind. Durch Vermischung mit nachströmendem, nicht kontaminiertem Gas nimmt ihre Konzentration sehr schnell ab. Zwei Jahre nach der Gasbuggy-Explosion betrug die Kr-85-Konzentration z.B. nur noch $8,8 \frac{\mu\text{Ci}}{\text{cm}^3}$ /64/. Rückschlüsse auf die Freisetzung sind wegen der Vermischung nicht möglich. Bei diesen Experimenten

wurde das Gas an der Oberfläche verbrannt und nicht verwendet. Die geschätzte jährlich gemittelte Ganzkörperdosis durch Kr-85 für den betroffenen Bevölkerungsteil bei Verwendung im Haushalt wird für das Gasbuggy-Projekt mit $5 \cdot 10^{-5} \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ und für neuere geplante Projekte mit $3 \cdot 10^{-5} \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ angegeben /11,64/.

Aus den seither veröffentlichten Daten und Zahlen ist eine Abschätzung der durch Risse im Erdboden freigesetzten Aktivität nicht möglich. Aus Tabelle 5-4 läßt sich lediglich die Kr-85-Erzeugung zu 12-23 Curies pro Kilotonne ablesen. (Diese Zahlen gelten auch für kratererzeugende Explosionen, deren Wolken im übrigen die Stratosphäre nicht erreichen, sondern in der Troposphäre verbleiben /11/.)

Der Beitrag von unterirdischen Tests zum Kr-85-Inventar bleibt damit unsicher /12/. Verglichen mit der gesamten Kr-85-Freisetzung aus kerntechnischen Anlagen ist der Anteil aus Kernexplosionen zu friedlichen Zwecken aber sicher sehr klein. Weiterhin erscheint es im Hinblick auf das lokale und sporadische Vorkommen bisheriger friedlicher Kernexplosionen nicht sinnvoll, eine daraus resultierende Dosisbelastung berechnen zu wollen /39/.

Tabelle 5-4 Daten der Gasanregungsexperimente Gasbuggy und Rulison /11/

Name des Experimentes	Gasbuggy	Rulison
Datum	10. Dez. 67	10. Sept. 69
Ort in USA	New Mexico	Colorado
Sprengkraft [KT]	29	48
Tiefe [km]	1,3	2,6
Kr-85-Gehalt [Ci]	350	1100
Kr-85-Konzentration im Gas nach der Explosion [$\frac{\text{pCi}}{\text{cm}^3}$]	120	150

6. Krypton und Xenon aus Kernkraftwerken

Krypton und Xenon entstehen in Kernkraftwerken (im folgenden KKW abgekürzt) durch Spaltreaktionen im Brennstoff als sog. Spaltprodukte. Im folgenden wird die produzierte Edelgasaktivität berechnet, ihr Weg in den einzelnen KKW-Typen beschrieben und schließlich mit Hilfe der bisherigen Erfahrungswerte die Edelgasabgaberate angegeben. Die aus KKW bei Normalbetrieb freigesetzten Mengen an Edelgasen liegen wegen verschiedener Rückhalte-mechanismen weit unter der tatsächlich produzierten Menge.

6.1. Erzeugung im Brennstoff

Zur Erzeugung von 1 MW thermischer Energie sind $3,12 \cdot 10^{16}$ Spaltungen erforderlich /65,66/. Die kumulative Spaltausbeute y_i gibt an, wieviel Atome des Nuklides i pro Spaltung entstehen. Die Multiplikation beider Größen ergibt die Anzahl der Spaltproduktatome pro MWth. Die Anzahl der Atome, multipliziert mit der mittleren Lebensdauer, ergibt die Aktivität E_i .

$$E_i = \frac{3,12 \cdot 10^{16}}{3,7 \cdot 10^{10}} \cdot y_i \cdot \lambda_i = 8,4 \cdot 10^5 \cdot y_i \cdot \lambda_i$$

$$E_i \left[\frac{Ci}{\text{sec} \cdot \text{MWth}} \right] = \text{norm. Edelgasaktivitätserzeugungsr-}$$

rate

$$3,7 \cdot 10^{10} = \text{Anzahl der Zerfälle pro Curie und Sekunde}$$

$$y_i = \text{kumulative Spaltausbeute des Edelgas-}$$

nuklides i

$$\lambda_i \left[\frac{1}{\text{sec}} \right] = \text{Zerfallskonstante des Edelgasnuklides } i$$

Werte für die normierte Aktivitätserzeugungsr-ate der wich-

tigste Edelgasnuklide bei thermischer Spaltung von U-235 und Schnellspaltung von Pu-239 lassen sich der Tabelle 6-1 entnehmen. Auf die Darstellung der normierten Aktivitätserzeugungsrate bei thermischer Spaltung von U-233 wird verzichtet, da die Spaltausbeuten von U-233 nur sehr ungenau bekannt sind; für Kr-85 wird zum Beispiel von GUBER /28/ ein Wert von 0,11% verwendet, während Boroughs /67/ 2,37% angibt und Flynn /68/ bei der Massenzahl 85 2,42% für das Spaltprodukt Rb-85 angibt. Ähnliche Unterschiede zeigen die Spaltausbeuten für Xenon. Im Sicherheitsbericht des THTR 300 /69/ werden - wohl aus den gleichen Gründen - ebenfalls die Spaltausbeuten von U-235 verwendet.

Wird die norm. Aktivitätserzeugungsrate E_i in $\left[\frac{Ci}{sec \text{ MWth}} \right]$ mit der thermischen Leistung N_{th} $[MWth]$ eines bestimmten Reaktors multipliziert, so erhält man die Aktivitätsproduktionsrate B_i (Birthrate) in $\left[\frac{Ci}{sec} \right]$.

$$B_i = E_i \cdot N_{th}$$

Zur Berechnung des gesamten Edelgasinventars im Brennstoff am Ende der Bestrahlung wird auf Kapitel 7 (Wiederaufarbeitungsanlagen) verwiesen. Tabelle 6-1 zeigt das nach Nukliden aufgegliederte Edelgasinventar eines 1000 MWe-Leichtwasserreaktors mit 33% Wirkungsgrad sowie das Inventar eines 1000-MWe-Brutreaktors (Spaltstoff Pu-239) mit 40% Wirkungsgrad.

6.2. Freisetzung aus Brennelementen

Entsprechend der Aktivitätserzeugungsrate B_i $\left[\frac{Ci}{sec} \right]$ versteht man unter der Aktivitätsaustrittsrate R_i $\left[\frac{Ci}{sec} \right]$ (Releaserate) diejenige Aktivitätsmenge des Nuklides i , die pro Zeiteinheit in das Kühlmittel gelangt. Das Verhältnis R_i/B_i wird Freisetzungsverhältnis, Austrittskoeffizient oder einfach R/B-Wert genannt und dient als Maß für die Höhe der Freisetzung ins Kühlmittel. Neben den R/B-Werten werden im

Tabelle 6-1 Zerfallskonstanten, kum. Spaltausbeuten und normierte Aktivitätserzeugungsraten für Nuklide des Krypton und Xenon sowie Edelgasinventar eines 1000 MWe-LWR /70/

Isotop	Zerfallskonstante $\lambda_i [s^{-1}]$	U-235 _{therm.}		Pu-239 _{schnell}		Inventar eines 1000 MWe-LWR $[\bar{C}_i]$	Inventar eines 1000 MWe- LMFBR $[\bar{C}_i]$
		kum. Spalt- ausbeute $Y_i [\%]$	norm. Produk- tionsrate $E_i [\frac{Ci}{sec \cdot MWth}]$	kum. Spalt- ausbeute $Y_i [\%]$	norm. Produk- tionsrate $E_i [\frac{Ci}{sec \cdot MWth}]$		
Kr-83 m	$1,04 \cdot 10^{-4}$	0,52	0,45	0,38	0,33	$1,32 \cdot 10^7$	$8 \cdot 10^6$
Kr-85	$2,04 \cdot 10^{-9}$	0,271 ⁽¹⁾	$4,64 \cdot 10^{-6}$	0,145	$2,48 \cdot 10^{-6}$	$1,52 \cdot 10^{6(2)}$	$6,8 \cdot 10^{5(2)}$
Kr-85 m	$4,38 \cdot 10^{-5}$	1,30	0,48	0,69	0,25	$3,31 \cdot 10^7$	$1,45 \cdot 10^7$
Kr-87	$1,52 \cdot 10^{-4}$	2,53	3,23	1,14	1,46	$6,43 \cdot 10^7$	$2,4 \cdot 10^7$
Kr-88	$6,88 \cdot 10^{-5}$	3,56	2,06	1,4	0,81	$9,06 \cdot 10^7$	$2,84 \cdot 10^7$
Kr-89	$3,88 \cdot 10^{-3}$	4,59	150	1,6	52,1	$1,17 \cdot 10^8$	$3,36 \cdot 10^7$
Kr-90	$2,10 \cdot 10^{-2}$	5,0	882	1,5	264	$1,27 \cdot 10^8$	$3,55 \cdot 10^7$
Kr-91	$1,21 \cdot 10^{-2}$	3,45	351	1,1	112	$8,78 \cdot 10^7$	$2,31 \cdot 10^7$
Xe-131m	$6,80 \cdot 10^{-7}$	0,017	$9,71 \cdot 10^{-5}$	0,02	$1,14 \cdot 10^{-4}$	$4,55 \cdot 10^5$	$4,2 \cdot 10^5$
Xe-133	$1,52 \cdot 10^{-6}$	6,69	$8,54 \cdot 10^{-2}$	5,7	$7,27 \cdot 10^{-2}$	$1,70 \cdot 10^8$	$1,18 \cdot 10^8$
Xe-133m	$3,59 \cdot 10^{-6}$	0,16	$4,82 \cdot 10^{-3}$			$4,07 \cdot 10^6$	
Xe-135	$2,09 \cdot 10^{-5}$	6,3	1,11	6,8	1,19	$1,60 \cdot 10^8$	$1,43 \cdot 10^8$
Xe-135m	$7,40 \cdot 10^{-4}$	1,8	11,2			$4,58 \cdot 10^7$	
Xe-137	$3,02 \cdot 10^{-3}$	6,0	152	6,2	157	$1,53 \cdot 10^8$	$1,3 \cdot 10^8$
Xe-138	$6,79 \cdot 10^{-4}$	5,9	33,7	5,0	28,5	$1,50 \cdot 10^8$	$1,05 \cdot 10^8$
Xe-139	$1,69 \cdot 10^{-2}$	5,236	743	3,0	426	$1,33 \cdot 10^8$	$6,3 \cdot 10^7$
Summe			≈ 2400		≈ 1040	$1,35 \cdot 10^9$	$7,27 \cdot 10^8$

30

(1) In der Literatur angegebene Werte umfassen: 0,262% /71/; $0,2733 \pm 0,0043$ /72/; 0,306% /70/

(2) Dreieinhalb Jahre Bestrahlungszeit

folgenden auch die Mechanismen angegeben, die eine Freisetzung der rad. Edelgase ins Kühlmittel ermöglichen.

6.2.1. Freisetzung aus stabförmigem Uranoxid

Bei der Freisetzung der gasförmigen Spaltprodukte aus der schwammartigen Struktur des Brennstoffes wirken in Abhängigkeit von der Temperatur zahlreiche physikalische Vorgänge zusammen. Wie Abb.6-1 zeigt, nimmt die Freisetzung der Spalteredelgase grundsätzlich mit steigender Brennstofftemperatur zu.

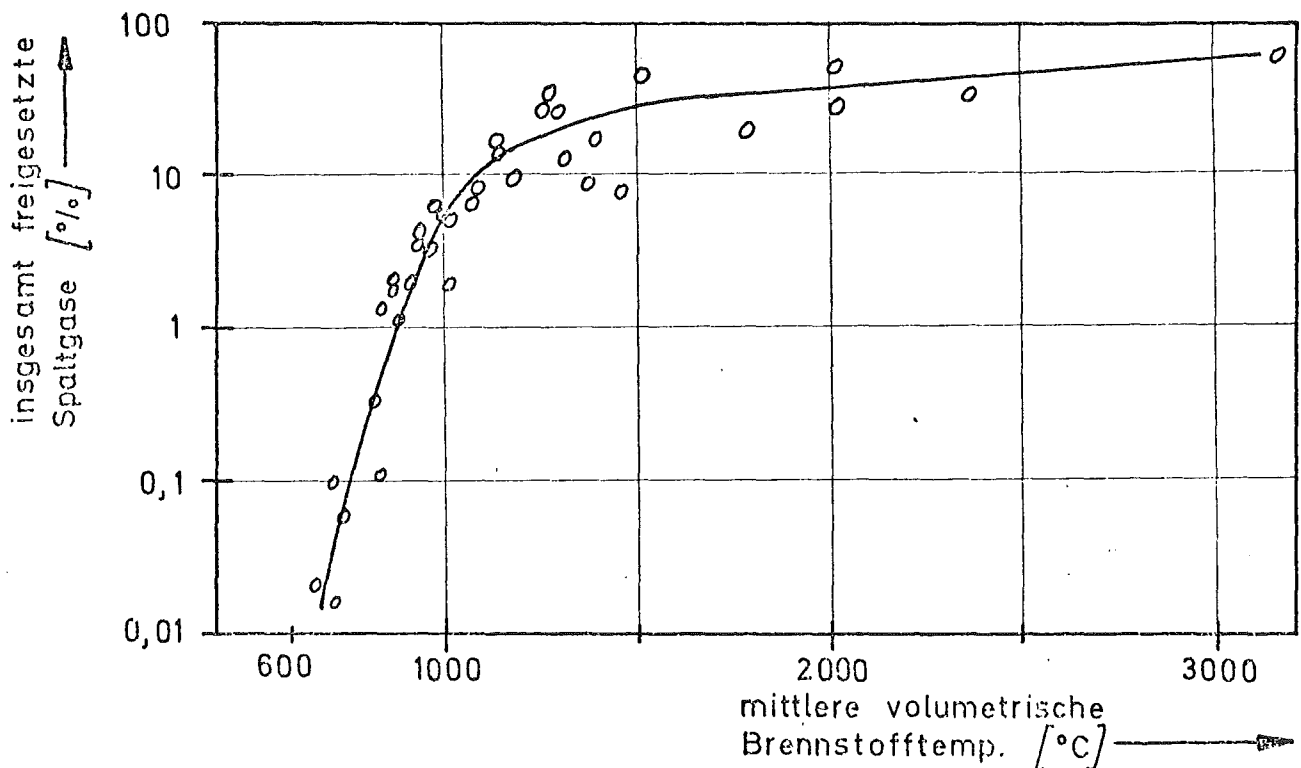


Abb.6-1 Spaltgasfreisetzung in Abhängigkeit von der Brennstofftemperatur /73,74/

Dabei wirken im einzelnen folgende Mechanismen:

Unter 600 °C

Im Bereich unter 600 °C, wo weder Strukturänderungen noch Volumendiffusion eine Rolle spielt, treten Spaltprodukte nur durch Rückstoß- und Anstoßvorgänge aus. Da nur eine dünne Oberschicht von etwa 10 Å an der Spaltgasabgabe beteiligt ist, wird angenommen, daß die Anstoßvorgänge überwiegen /75/. Die Freisetzung ist proportional der Spalt-rate und unabhängig von der Temperatur.

600 °C bis 1450 °C

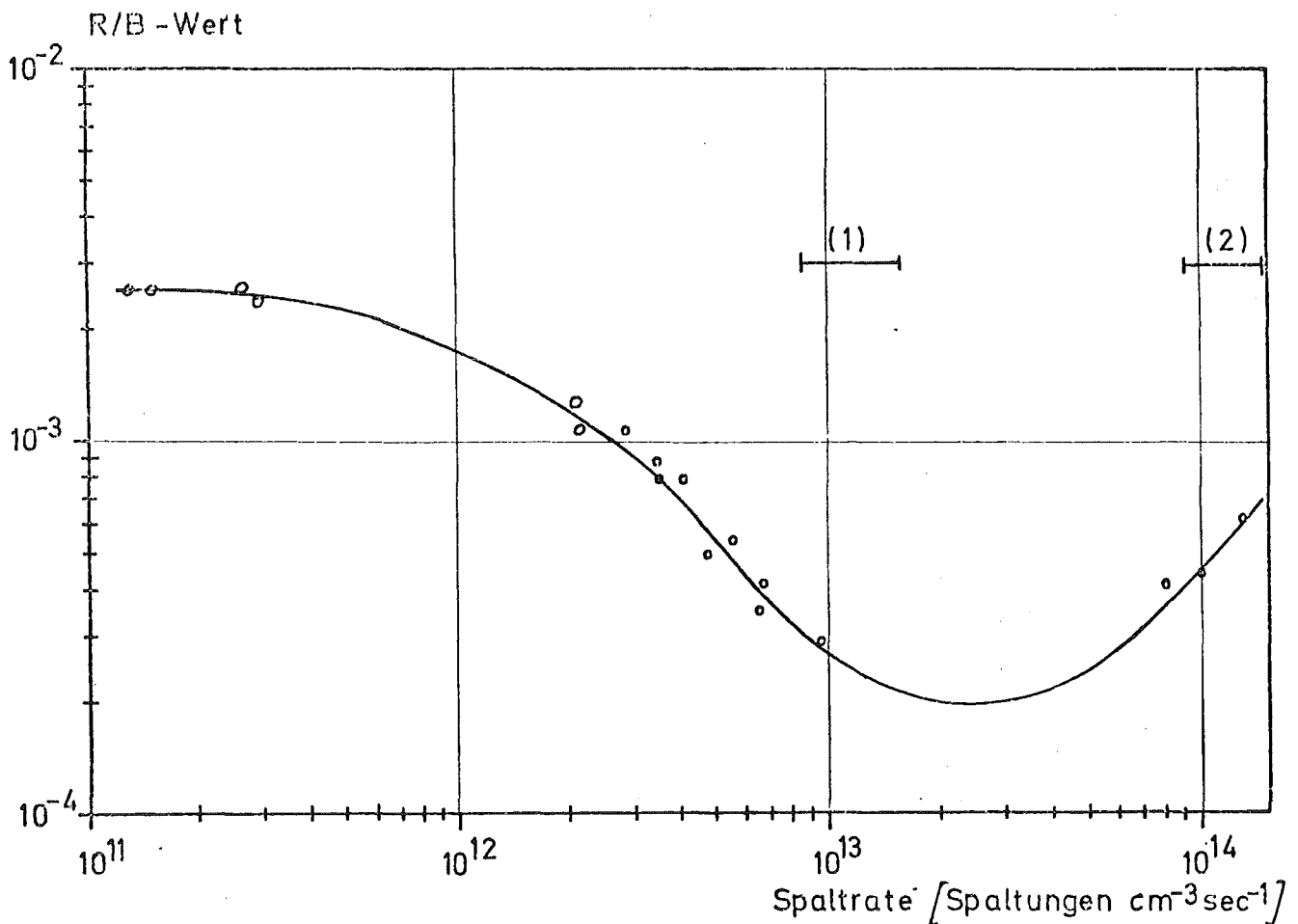
Das Gas diffundiert durch die UO_2 -Matrix, und die Freisetzungsrates wird bestimmt durch die Wahrscheinlichkeit, daß das Gas aufgehalten wird, und durch die Wahrscheinlichkeit, daß es wieder aus diesen Fallen freigesetzt wird (defect-trap model). Als Fallen dienen im Material vorhandene Leerstellen, Korngrenzen oder andere Einrisse der Mikrostruktur und durch Bestrahlung entstandene Fehlstellen und Ansammlungen von Fehlstellen.

Die Fangwahrscheinlichkeit sinkt, wenn die Temperatur steigt, da die Fehlstellen sich mit zunehmender Temperatur abbauen. Die Entkommwahrscheinlichkeit steigt mit der Temperatur, hängt jedoch von der Größe der Fehlstelle ab. Da unter 1450 °C z.B. Einrisse in der Mikrostruktur nicht beweglich sind, findet an dieser Stelle keine Diffusion statt. Kornwachstum tritt bei Temperaturen unter 1450 °C nicht auf.

Hat sich einmal ein Gleichgewicht der Fehlstellen eingestellt, so steigt die Dichte der Fehlstellen mit der Spalt-rate weiter an (bis die Spaltrate schließlich so groß ist,

daß die Spaltproduktbahnen eine merkliche Anzahl der bestehenden Fehlstellen wieder vernichtet haben). Daraus folgt, daß die Fangwahrscheinlichkeit mit der Spaltrate steigt, was zu einer kleineren Freisetzungsrates des Gases führt /76/. Abb.6-2 zeigt dieses experimentell bestätigte Verhalten für Kr-85m bei Bestrahlung von hochdichtem, stochiometrischem UO_2 .

Abb.6-2 R/B-Werte von Kr-85m für Bestrahlung von UO_2 bei $1400\text{ }^\circ\text{C}$ in Abhängigkeit von der Spaltrate /nach 78/ (R/B = Releaserate/Birtherate)



- (1) Spaltratenbereich für LWR
- (2) Spaltratenbereich für HTGR und LMFBR /76/

Daß die Korngrenzen die Gasfreisetzung behindern, steht im Widerspruch zum klassischen Diffusionsmodell von Booth /77/, bei dem angenommen wird, daß gerade die Korngrenzen Wege darstellen, die eine schnelle Gasfreisetzung ermöglichen. Carol und Sisman /79/ bestrahlten deshalb bei einem in-pile Test zwei UO_2 -Proben, welche in ihrer chemischen Zusammensetzung, Dichte und Oberfläche identisch waren. Der entscheidende Unterschied bestand darin, daß eine Probe viele Korngrenzen hatte (Korngröße $\approx 3 \mu$) und die andere keine. Bei $1000^\circ C$ war die Aktivitätsabgaberate der Vielkorn-Probe für Kr-88 17mal geringer als beim Einkristall, was eine Bestätigung des "defect-trap"-Modells darstellt. Messungen der Xenondiffusion in Verbindung mit dem "defect-trap"-Modell enthält die Arbeit von Mac Ewan und Morel /80/.

Über $1600^\circ C$

Bei Temperaturen, wie sie beim wirklichen Einsatz von Brennelementen erreicht werden, liegen grundsätzlich andere Verhältnisse vor. Zuerst tritt gleichmäßiges Kornwachstum auf (equiaxed grain growth) und von etwa $1800^\circ C$ ab bilden sich unter dem Einfluß von Temperaturgradienten Zeilenkörner. Qualitativ erwartet man bei gleichmäßigem Kornwachstum einen Anstieg der Gasfreisetzung, da neben der Volumendiffusion auch ein "Ausschwemmen" der gebildeten Spaltgase durch die wandernden Korngrenzen ins Spiel kommt /74/.

Im einzelnen bilden sich an den Korngrenzen Gasblasen, die anwachsen, wenn kleinere Blasen durch Diffusionseffekte beweglich werden und sich vereinigen /74,78,81,82,83/. Dabei kommt es zu einer Überlagerung der an den Korngrenzen wachsenden Gasblasen und schließlich zu einer Gasfreisetzung durch Aufbrechen der Korngrenzennetzwerke. Durch Wanderung großer linsenförmiger Poren in Richtung des Temperaturgradienten, also zum Stabzentrum hin, bilden sich Stengel-

kristalle oder Zeilenkörner. Bei sehr hohen Stabileistungen bilden sich auf diese Weise schon nach wenigen Minuten Hohlräume in der Achse der Brennstofftabletten. Es ist klar, daß damit beträchtliche Mengen Spaltgase aus geschlossenen Poren zum Zentralhohlraum hin transportiert werden können. Mac Ewan und Notley /81/ geben den quantitativen Zusammenhang zwischen Kornwachstum (Umstrukturierung) und Gasfreisetzung an.

Wird der Brennstoff so heiß, daß seine Matrix an Festigkeit verliert, so findet eine fortwährende Bildung, Wachstum und Wanderung von Blasen innerhalb der Körner statt, was zu stationärem Schwellen und nahezu vollständiger Gasfreisetzung führt (siehe Abb.6-1).

Ergebnis

Da die Dichte des Brennstoffes über die Wärmeleitfähigkeit /81/, der Abbrand sowie vor allem Leistungs- und Temperaturänderungen im Betrieb die Gasfreisetzung beeinflussen, ist die Angabe einer exakten Aktivitätsaustrittsrate sehr schwierig. Das weitverbreitete Rechenmodell von Booth (Diffusionsmodell in Kap.6.3.2.), das die Diffusionsvorgänge stark vereinfachend beschreibt, kann bei guter Anpassung der zugrundeliegenden Parameter an bekannte Versuchsergebnisse günstigstenfalls für eine Abschätzung des Spaltgasaustritts aus Bereichen ungestörter Struktur herangezogen werden /74/. Verbesserte Modellrechnungen für Temperaturen unter 1800 °C beschreiben Ronchi und Matzke /84/.

Obwohl, wie erläutert, der Spaltgasaustritt für Brennstofftemperaturen zwischen 1200 und 1800 °C von 1 bis 100% schwanken kann, finden als Faustregel folgende Werte allgemein Verwendung /85/:

- unter 1300 °C max. Zentraltemperatur 0% Freisetzung
- bei 1600 °C max. Zentraltemperatur 1% Freisetzung
(gilt z.B. für AGR, siehe Kap.6.3.3.)

- bei 2000-2200 °C max. Zentraltemperatur 10% Freisetzung (gilt z.B. für LWR)

Diese Werte erscheinen gegenüber Abb.6-1 niedrig, doch muß berücksichtigt werden, daß die Temperatur am Brennstoffrand (Temperaturgradient) ca. 500-700 °C niedriger ist als in der Mitte. Bei den üblichen Betriebsbedingungen für Reaktoren mit UO_2 werden demnach 90% der Spaltgase im Brennstoff zurückgehalten /73/.

6.2.2. Freisetzung durch die Brennelementhülle

Die aus dem Brennstoff freigesetzten 10% der entstandenen Spaltedelgase erzeugen in der Hülle einen Überdruck, der bis zu 200 atm betragen kann. Trotz strenger Qualitätskontrollen kann es vorkommen, daß einige Hüllrohre schon zum Zeitpunkt ihres Einsatzes im Reaktorkern undicht sind. Die häufigsten Fehlerarten sind dabei Schweißnahtfehler und lochfraßähnliche Vertiefungen, sog. "pin-holes". Noch wahrscheinlicher ist ein Undichtwerden während des Reaktorbetriebes durch zum Teil wechselnde Beanspruchung aus Innendruck, Außendruck, Temperatur, chemische Angriffe, Schwingung und Neutronenstrahlung. Für Planung und Berechnung wird allgemein angenommen, daß im Betrieb etwa 1% der Hüllen schadhaft sind.⁺⁾ Diese Annahme trifft bei dem derzeitigen Fertigungsstand der Brennelemente mindestens in der Größenordnung zu /65/.

Eine weitere Möglichkeit für die Kontamination des Kühlmittels mit Spaltprodukten ergibt sich aus der eventuellen Verschmutzung der Brennelementaußenfläche bei der Fabrikation mit Uran. Durch sorgfältige Kontrollen wird jedoch gewährleistet, daß die Urankontamination der Brennstoffhülle $10^{-7} \frac{g}{cm^2}$ nicht übersteigt /17,65/. Die dadurch hervorgerufene Edelgaskonzentration im Kühlmittel ist um den Faktor 10^{-5} bis 10^{-9} /17,65/ kleiner als die durch Hüllschäden entstandene und fällt somit nicht ins Gewicht.

^{+) Genauere Berechnungen werden mit Hilfe der Definition eines Standardlecks durchgeführt.}

Eine Diffusion von Spalteredelgasen durch völlig unbeschädigte Brennelementhüllen findet erst ab einer Hüllentemperatur von etwa 500 °C statt /86/. Diese Temperaturen werden bei derzeit in Betrieb befindlichen KKW nicht erreicht (300 °C nach Heinzel /87/). Hüllentemperaturen von natriumgekühlten schnellen Brütern liegen bereits in diesem Temperaturbereich (680 °C /87/). Für eine quantitative Aussage sind allerdings weitere Arbeiten nötig.

Aus den beiden Annahmen, daß 1% der Brennelemente undicht ist und 10% der erzeugten Edelgase aus dem Brennstoff frei werden, errechnet sich, daß 0,1% der Edelgase ins Kühlmittel gelangen.

Der durchschnittliche R/B-Wert für radioaktive Edelgase wird jedoch weit unter 10^{-3} liegen und hängt von der Diffusionsgeschwindigkeit und von der Halbwertszeit ab. Die Austrittsrate R_i relativ kurzlebiger Isotope (Kr-90, Kr-91, Xe-139) ist klein, da sie auf dem Weg aus dem Brennstoff heraus bereits zerfallen, während die Produktionsrate $B_i = E_i \cdot N_{th}$, wie Tabelle 6-1 zeigt, sehr groß ist. Die Austrittsrate R_i relativ langlebiger und stabiler Isotope (33% der erzeugten Edelgasatome sind stabil) wird dagegen hoch sein, so daß R/B-Werte im Bereich 10^{-3} erreicht werden. Eine Möglichkeit zur genaueren Abschätzung wird im nächsten Abschnitt erläutert.

6.2.3. Freisetzungsmodelle

Detaillierte Untersuchungen über die Austrittsraten einzelner Isotope aus Brennelementen in Abhängigkeit von verschiedenen Parametern (Leistung, Temperatur, Abbrand, Art des Hüllenschadens u.a.) liegen nach Herrmann /17/ nicht vor. Mit Hilfe von vereinfachten Freisetzungsmodellen läßt sich jedoch eine Aussage über das Verhältnis der einzelnen Isotope zueinander machen. Ist die Gültigkeit eines Freisetzungsmodells überprüft, so lassen sich aus der Mes-

sung einiger weniger Isotope die Aktivitätsaustrittsraten R_i der anderen Isotope berechnen.

Die fünf zur Zeit diskutierten Modelle gehen von folgenden Annahmen aus /65/:

Nach dem Rückstoßmodell werden die Spaltprodukte sofort nach ihrer Entstehung zu 100% ins Kühlmittel freigesetzt, was z.B. bei Brennstoffkontamination der Brennelementaußenfläche der Fall ist ($R_i=B_i$).

Nach dem Gleichgewichtsmodell reichern sich die Nuklide in unmittelbarer Nähe ihres Entstehungsortes bis zur Gleichgewichtskonzentration an und werden von dort plötzlich unter gleichen Bedingungen freigesetzt.

Das Diffusionsmodell von Booth /77/ beschreibt die Diffusion der Spaltedelgase durch den Brennstoff und berücksichtigt ihren Zerfall auf diesem Weg. Kahn /14/ faßt dieses Modell als Kombination der beiden vorgenannten auf.

Zwei neuere, bisher nicht ausreichend experimentell geprüfte Modelle versuchen die Vorgänge noch besser zu beschreiben:

Nach dem Modell für Diffusionsgleichgewicht im Spaltgasraum werden die durch den Brennstoff diffundierenden Spaltedelgase nicht sofort vom Kühlmittel wegtransportiert, sondern es wird noch die Ansammlung und der Zerfall im Spaltgasraum berücksichtigt. Die Abgabe ins Kühlmittel wird proportional dem "Diffusionsgleichgewicht" im Spaltgasraum angenommen.

Beim Modell für Inventargleichgewicht im Spaltgasraum wird ein linearer Zusammenhang zwischen Abgaberate aus dem Brennstoff und Spaltproduktinventar zugrundegelegt (keine Diffusion; s.a.Kap.6.2.1.). Die Abgabe ins Kühlmittel wird proportional dem "Inventargleichgewicht" im Spaltgasraum angenommen.

Die ausführliche mathematische Behandlung dieser 5 Modelle findet sich u.a. bei Schrüfer /65/ und Herrmann /17/.

Im Vergleich mit durchgeführten Messungen erwies sich das Diffusionsmodell als beste Näherung /65,88/. Tabelle 6-2 gibt die Zusammensetzung der Diffusionsmischung in Abhängigkeit von der Zeit an. Die Edelgaszusammensetzung bei Verwendung der anderen Modelle findet sich bei Schrüfer /65/ und Blo-meke /89/. Obwohl die exakte Gültigkeit des Diffusionsmodells beschränkt ist (s.Kap.6.2.1.) wird es - da es die beste Näherung angibt - in Sicherheitsberichten und Untersuchungen verwendet /14,15,16,17,19,90/. Für die Auslegung neuerer AEG- und GE-Siedewasserreaktoren wird z.B. von einem im KKW Gundremmingen gemessenen Mittelwert der Aktivitätsaustrittsrate von $5 \left[\frac{\mu\text{Ci}}{\text{s} \cdot \text{MWth}} \right]$ für Xe-133 ausgegangen und die Austrittsraten der anderen Isotope nach dem Diffusionsmodell bestimmt /17,65,88/. Für die KKW Philippsburg (SWR) und Unterweser (DWR) werden im Sicherheitsbericht Gesamtaustrittsraten für alle Edelgase aus dem Kern mit 12 Ci/s bzw. 19 Ci/s angegeben. Nach dem ebenfalls im Sicherheitsbericht verwendeten Diffusionsmodell ergibt sich eine Austrittsrate von $4,24 \left[\frac{\mu\text{Ci}}{\text{s} \cdot \text{MWth}} \right]$ bzw. $4,6 \left[\frac{\mu\text{Ci}}{\text{s} \cdot \text{MWth}} \right]$ für Xe-133 /16/, d.h. praktisch gleichgroß.

Tabelle 6-3 zeigt die so normierten Aktivitätsaustrittsraten und Abb.6-3 die aus Tabelle 6-1 und 6-3 errechneten R/B-Werte für Edelgasisotope mit einer Halbwertszeit größer als 15 Minuten. Der R/B-Wert von $1,66 \cdot 10^{-3}$ für das langlebige Isotop Kr-85 deutet darauf hin, daß den Sicherheitsberichten weiterhin ein Auslegungswert von 1% undichter Brennelemente zugrunde liegt, auch wenn das nicht mehr explizit gesagt wird.

Tabelle 6-2 Edelgaszusammensetzung in [%] bei Verwendung des Diffusionsmodells in Abhängigkeit von der Zeit nach dem Verlassen des Brennstoffs /11,17,65,89,90/

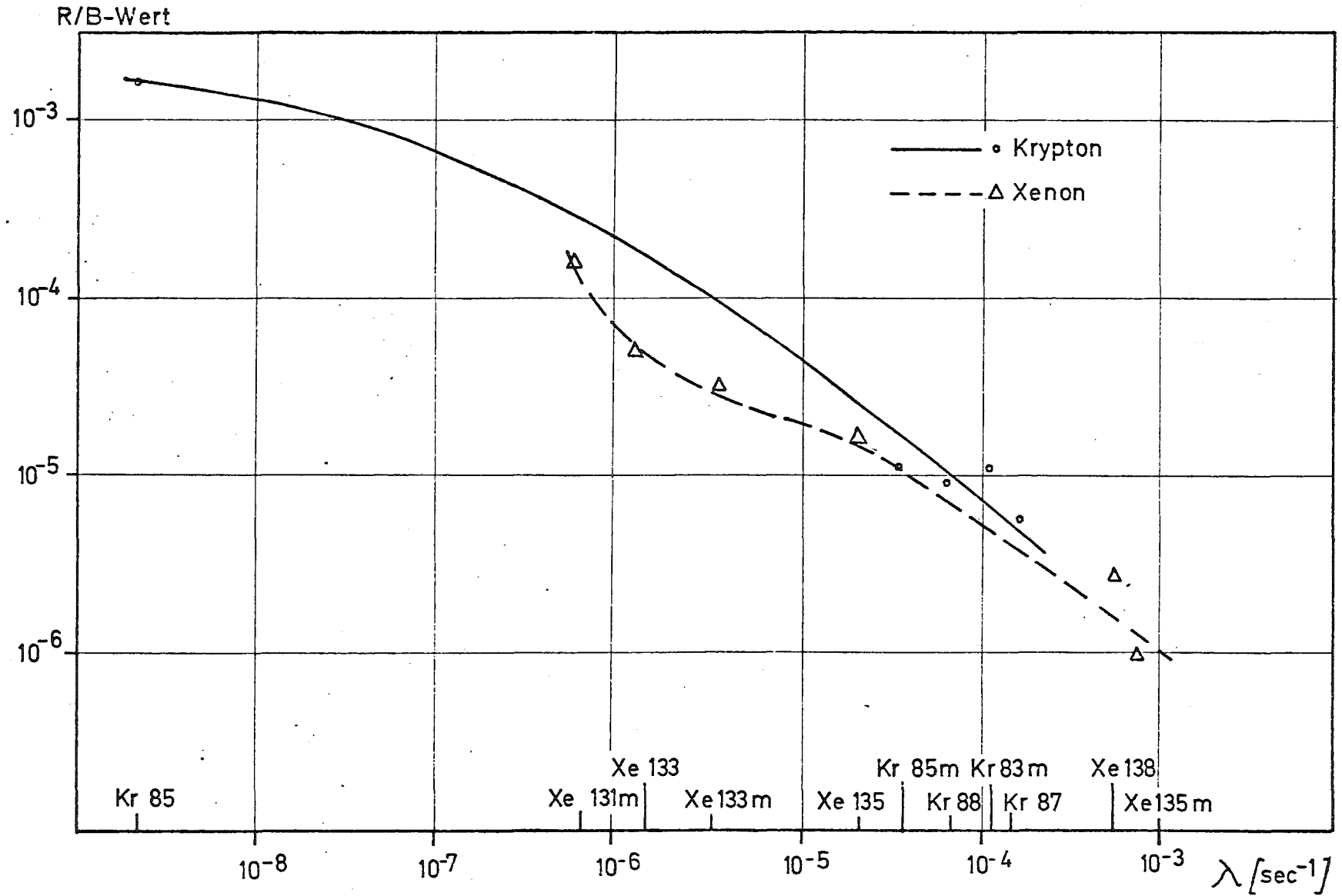
Isotop	T _{1/2}	Frei- setzung am Kern											
		30 min	1h	8h	1d	3d	10d	30d	40d	60d	90d	150d	
Kr-90	33 s	8,00	-										
Xe-139	41 s	5,746	-										
Kr-91	57 s	12,889	-										
Kr-89	2,97m	3,719	0,298										
Xe-137	3,82m	3,947	1,017										
Xe-135m	15,6m	0,619	8,767	3,0									
Xe-138	17 m	1,772	21,374	11,8									
Kr-87	1,27h	0,408	16,652	18,0	1,4								
Kr-83m	1,86h	0,104	4,618	3,1	0,8								
Kr-88	2,85h	0,375	17,603	22,9	13,6	0,67							
Kr-85m	4,4 h	0,109	5,351	8,1	8,9	1,66							
Xe-135	9,2 h	0,376	19,283	25,2	50,0	41,8	2,57						
Xe-133m	2,23d	0,003	0,176	0,3	0,9	1,665	2,07	0,5					
Xe-133	5,27d	0,091	4,835	7,5	≈24,2	53,8	84,7	98,4	91,2	≈73,5	≈31,0	0,4	
Xe-131m	11,8d	0,0003	0,017	≈0,04	0,1	0,204	0,41	0,6	1,8	≈3,0	≈16,0	0,8	0,03
Kr-85	10,76 a	0,0001	0,009	≈0,025	≈0,06	0,114	0,25	0,5	7,0	≈23,5	≈53,0	98,8	99,97

* plus ≈ 62% Nuklide mit T_{1/2} < 33 s

Tabelle 6-3 Aktivitätsaustrittsraten R_i aus stabförmigen Brennelementen von LWR bei Verwendung des Diffusionsmodells, normiert auf eine im KKW Gundremmingen gemessene Freisetzung von $5 \frac{\mu\text{Ci}}{\text{s} \cdot \text{MWth}}$ Xe-133 /16,65/

Isotop	Austrittsrate R_i in $\left[\frac{\mu\text{Ci}}{\text{s} \cdot \text{MWth}} \right]$ bei Diffusionsmodell
Kr-83m	5,2
Kr-85m	5,4
Kr-85	0,0077
Kr-87	20
Kr-88	19
Xe-131m	0,016
Xe-133m	0,2
Xe-133	5
Xe-135m	11
Xe-135	18
Xe-138	110

Abb.6-3 Freisetzungsverhältnis aus stabförmigen LWR-Brennelementen über der Zerfallskonstanten.
Spaltstoff U-235



6.2.4. Freisetzung aus beschichteten Brennstoffteilchen

Die Verwendung von beschichteten Brennstoffteilchen (coated particles) in gasgekühlten Reaktoren (HTGR) erlaubt hohe Kühlmittelaustrittstemperaturen und führt dadurch zu einem besseren Wirkungsgrad.

Coated particles bestehen aus einem kugelförmigen Brennstoffkern aus Schwermetalloxid oder -karbid, der mit mehreren Schichten von pyrolytisch abgeschiedenem Kohlenstoff (PyC) oder Siliziumkarbid (SiC) umgeben ist. Die Durchmesser solcher coated particles liegen je nach Anzahl der Schichten zwischen 200 und 1000 μm /91/. Die Schichten haben die Aufgabe, die Abgabe der Spaltprodukte ins Kühlmittel minimal zu halten.

Im einzelnen wird ohne zuverlässige experimentelle Ergebnisse vermutet, daß bereits die Porosität des Brennstoffkerns die Austrittsrate beeinflusst und einen Teil des Volumens zur Aufnahme von gasförmigen Spaltprodukten stellt /92/.

Die auf den Kern folgende innere PyC-Schicht zeigt ein besonders gutes Rückhaltevermögen gegenüber Xenon und Krypton. Diese sog. Pufferschicht hat eine geringe Dichte ($\approx 1 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$) und stellt aufgrund ihrer Porosität ebenfalls freies Volumen zur Aufnahme der gasförmigen Spaltprodukte. Die Dicke der Schicht ($\approx 50 \mu\text{m}$) wird durch den max. zulässigen Spaltgasdruck bestimmt. Weiterhin hat die innere Schicht die Aufgabe, die äußeren Schichten vor der Zerstörung durch Spaltprodukte (fission-recoil-damage) zu schützen /91/.

Als zweite Umhüllung des Kerns folgt eine hochdichte PyC-Schicht ($\approx 2 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$). Diese sog. "sealing layer" dient als Diffusionsbarriere gegen feste Spaltprodukte und als kleiner Druckkessel. Coated particles mit 2 PyC-Schichten werden Duplex- oder BISO-Partikel genannt /93,94/. Bei 3 PyC-Schichten spricht man von Triplex-Partikeln.

Zur Aufnahme des Spaltgasdruckes wird jedoch heute meist um die zweite PyC-Schicht noch eine dritte Schicht aus SiC gelegt. Dieses pyrolytisch aufgebraute SiC hat eine theoretische Dichte von nahezu $3,2 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$. Ihr Rückhaltevermögen gegenüber festen Spaltprodukten liegt um einen Faktor 10^2 bis

10^4 über dem von PyC-Schichten /91/. Folgt auf diese SiC-Schicht noch eine PyC-Schicht, so spricht man von TRISO-Partikeln /94/.

Durch Bestrahlungstests /95/ konnte nachgewiesen werden, daß die im Brennstoffkern erzeugten gasförmigen Spaltprodukte vollständig von der PyC-Beschichtung zurückgehalten werden. Die Edelgasisotope können aufgrund ihrer Halbwertszeit und des Diffusionskoeffizienten nicht aus dem Kern durch die relativ dicke PyC-Schicht hindurchdiffundieren. Das gilt auch für Kr-85 /95/. Die Höhe der Edelgasfreisetzung wird deshalb in erster Linie durch den Grad der Uran-Kontamination der Schichten bestimmt. Die herstellungsbedingte Uran-Kontamination der Schichten liegt zwischen $2 \cdot 10^{-2}\%$ und $2 \cdot 10^{-4}\%$ des gesamten Urangehalts /95,96/. Die Austrittsrate ist temperaturabhängig und im untersuchten Bereich von $5 \cdot 10^{13}$ bis $1 \cdot 10^{14} \frac{n}{s \cdot cm^2}$ der Spaltrate proportional /95/. Typische R/B-Werte liegen bei 10^{-5} bis 10^{-7} /97,98/.

Grundsätzlich werden unter Verwendung von coated particles z.Zt. 2 Brennelementkonzepte verfolgt:

- In Anlehnung an die übrige Reaktortechnik wird bei Dragon und den amerikanischen HTGR der Brennstoff in Form von schlanken Zylindern, die aus coated particles in einer Kohlenstoffmatrix bestehen, in die Bohrungen meist hexagonaler Graphitblöcke eingesetzt /91,99/.
- Beim AVR und THTR/300 werden kugelförmige Brennelemente verwendet.

Die Höhe der Freisetzung aus kugelförmigen Brennelementen wird nachfolgend speziell erläutert, wobei zuerst kurz auf ihre Herstellung eingegangen werden muß.

Kugelförmige Brennelemente

Die ersten kugelförmigen Brennelemente, die im AVR eingesetzt wurden, bestanden aus Graphithohlkugeln, die mit einer Mischung aus coated particles, Matrixgraphit und Binder gefüllt und mit einem Gewindestopfen verschlossen wurden /91/. Diese Herstellungsweise ist durch das Drehen der Hohlkugeln relativ teuer. Für die THTR-Linie wurden deshalb gepresste Brennelemente entwickelt, die später auch im AVR verwendet wurden: Triplex-Partikel von 300 bis 400 μm Durchmesser werden in einer Graphitmatrix zu Kugeln mit 5 cm Durchmesser zusammengepreßt. Um diesen Brennstoffkern wird mit 3000 ata eine 0,5 cm dicke brennstofffreie Graphitschicht gelegt. Anschließend erfolgt eine Wärmebehandlung bis zu 1800 °C zur Verkokung des Binders und Entgasung des Elementes. Der Volumenanteil der coated particles beträgt 17%, kann jedoch auf 25% gesteigert werden /91/.

Nach Röllig /100,101/ wird die Edelgasfreisetzung aus THTR-Elementen ausschließlich durch Verunreinigung des graphitischen Strukturmaterials mit Brennstoff verursacht. Beschädigungen der coated particles während der Herstellung können weitgehend ausgeschlossen werden und erst bei einer Fluenz von $\approx 5,3 \cdot 10^{21} \frac{\text{n}}{\text{cm}^2}$ traten Anzeichen von in-pile erzeugten Partikeldefekten auf. Die vorgenannte Hochtemperaturbehandlung der gepreßten Brennelemente führt allerdings zu einer feinverteilten Kontamination von einigen $10^{-2}\%$ des insgesamt eingesetzten Brennstoffes. Bei dieser Temperatur von etwa 1800 °C gelangt Spaltmaterial aus der PyC-Beschichtung in die Matrix /101/. Abb.6-4 zeigt die gemessene Proportionalität zwischen R/B-Werten von Kr-88 und Xe-133 und der Uran-kontamination bei kugelförmigen Brennelementen und Temperaturen um 900 °C. Auch das Matrixmaterial besitzt, wie Abb.6-4 zeigt, ein ausgezeichnetes Rückhaltevermögen für die in ihm erzeugten Krypton- und Xenonisotope. Nach Balthesen u.a. /102/ werden im ungünstigsten Fall im untersuchten Temperaturbereich von 1050 °C bis 1250 °C nur 10% des durch Matrixkontamination erzeugten Xe-133 freigesetzt.

Abb. 6-4

R/B-Werte von Xe-133 und Kr-88 in Abhängigkeit von der Urankontamination
/nach 101,102/

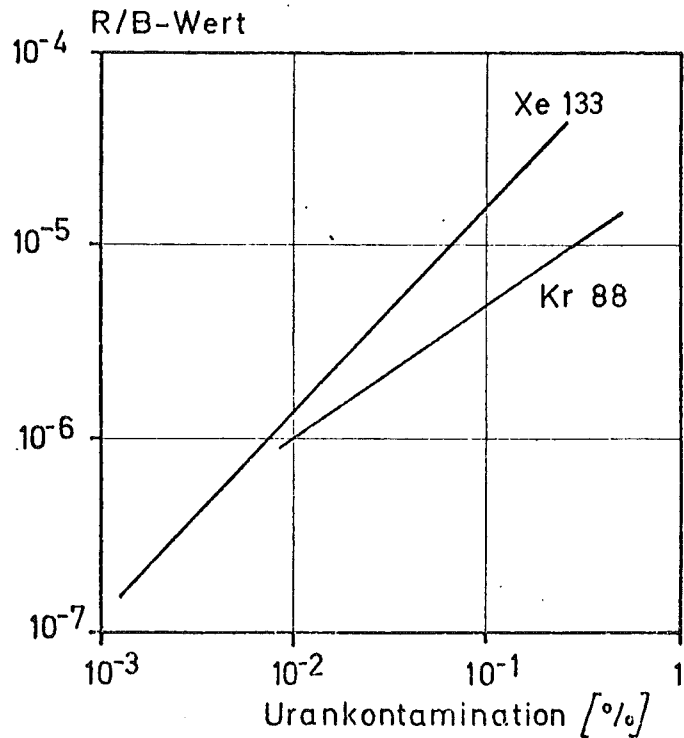
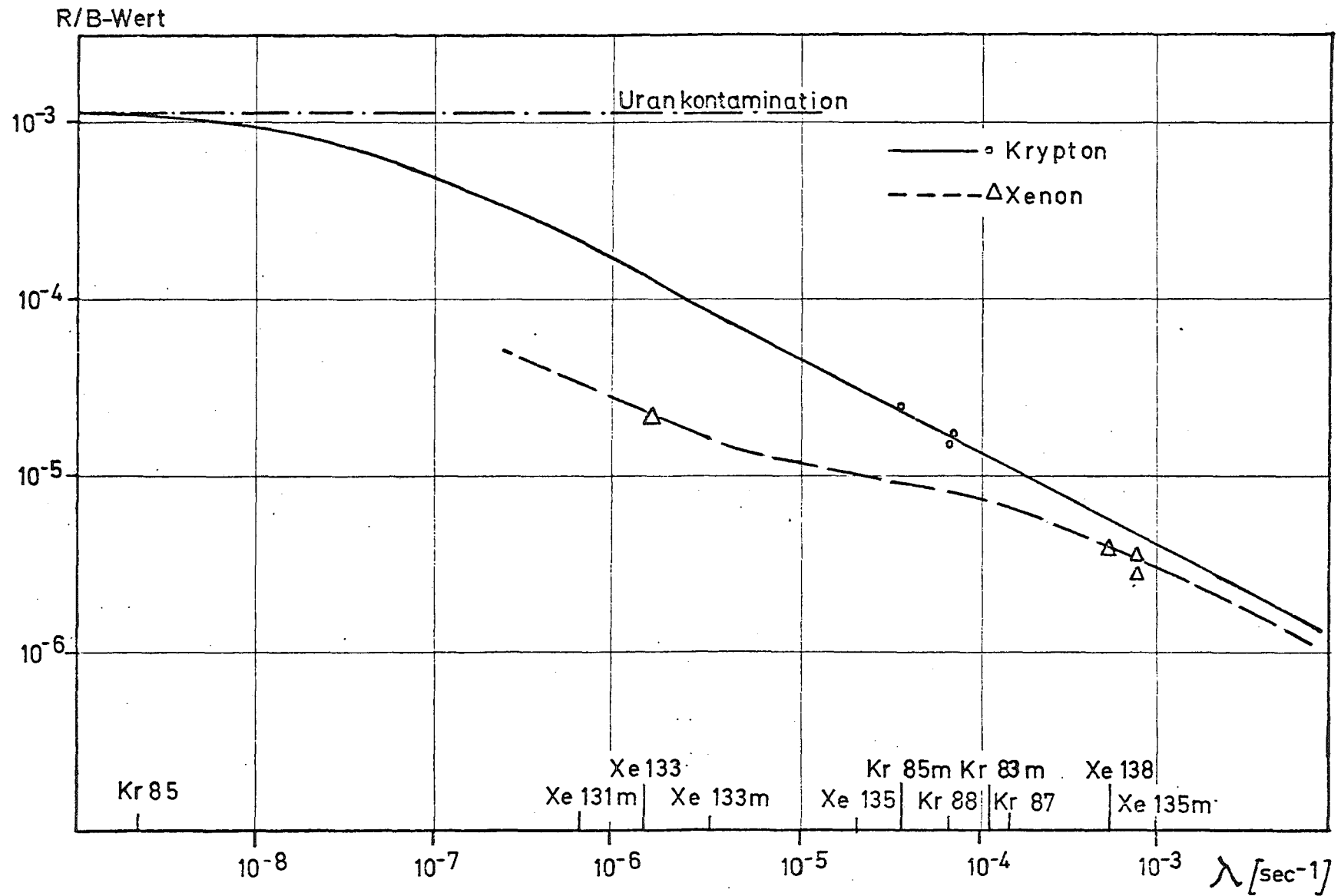


Abb. 6-5 zeigt die gemessenen /103,104/ und von Röllig /101/ ausgewerteten R/B-Werte für verschiedene Edelgasnuklide in Abhängigkeit von der Halbwertszeit bei einer Urankontamination von 0,11%. Neuere Bestrahlungsexperimente und der erfolgreiche Betrieb des AVR beweisen, daß heute Kugeln hergestellt werden können mit R/B-Werten für Xe-133 von $< 5 \cdot 10^{-5}$ bei 1250°C Brennstofftemperatur bis zu etwa $130000 \frac{\text{Mwd}}{\text{t}}$ Abbrand und einer schnellen Fluenz von $\approx 6 \cdot 10^{21} \frac{\text{n}}{\text{cm}^2}$ /91,105/. Mit diesem Normierungswert für Xe-133 lassen sich die R/B-Werte aus unbeschädigten Kugeln für die anderen Nuklide aus Abb. 6-5 abschätzen.

Nach Röllig /101/ erhöht sich bei Berücksichtigung der statistischen Partikeldefekte die Aktivität der stationär freigesetzten Edelgasisotope um etwa 10%. Die Hersteller beschichteter Brennstoffteilchen garantieren einen R/B-Wert für Xe-133

Abb.6-5 Freisetzungsverhältnis aus kugelförmigen THTR-Brennelementen über der Zerfallskonstanten /101/



von $5 \cdot 10^{-4}$ /105,43/. Dieser Wert wird auch in den Sicherheitsberichten verwendet (siehe Kapitel 6.3.3.). Damit liegt man bei der Auslegung des THTR eine Zehnerpotenz über dem Auslegungswert für LWR von $5 \cdot 10^{-5}$ für Xe-133 (Kapitel 6.2.3., Abb.6-3).

Die Freisetungsverhältnisse von stab- bzw. blockförmigen Brennelementen mit coated particles werden ähnliche Werte zeigen, da auch hierbei die Wärmebehandlung bei 1800°C abgeschlossen wird /106/.

6.3. Aktivitätsfluß und Edelgasabgabe verschiedener Reaktortypen

Nach der Entstehung und Freisetzung ins Kühlmittel gelangen die Edelgase in den verschiedenen Reaktortypen auf unterschiedlichen Wegen zum Kamin. Die Quellstärke am Kamin und das relative Vorkommen der Edelgasnuklide hängt auf diesem Wege von folgenden Parametern ab:

- Reinigungsrate des Kühlmittels
- Leckage aus dem Kühlkreislauf
- Verweilzeit in den Anlageräumen
- Art und Wirksamkeit der Abgasbehandlung

6.3.1. Druckwasserreaktoren (DWR)

Die aus den Brennelementen freigesetzten Spaltprodukte werden im geschlossenen Kühlkreislauf zwischen Reaktor und den Dampferzeugern umgepumpt. Da die Edelgase keine chem. Verbindung eingehen, werden sie im Kühlmittel größtenteils gelöst und kommen weniger in Form von sehr kleinen Gasblasen vor. Mit Ausnahme des langlebigen Kr-85 stellt sich im Primärkreis eine

Gleichgewichtskonzentration ein. Sie hängt im wesentlichen von der Austrittsrate und Halbwertszeit des Nuklides und von der Reinigungsrate des Kühlmittels ab /17/.

Aktivitätsfluß

Der weitaus größte Teil der rad. Edelgase gelangt über die Primärwasserreinigung zum Kamin: Ein Teilstrom des Primärwassers wird hierbei über Entgaser kontinuierlich oder diskontinuierlich, z.B. vor einem Brennelementwechsel und bei Kühlmittelaustausch, gereinigt. Da in den Kühlmittelspeichern, im Druckhalter und in dem von ihm gesteuerten Volumenausgleichsbehälter die flüssigen und gasförmigen Komponenten getrennt vorliegen, sammelt sich auch hier ein geringerer Teil der Edelgase an. Die im Entgaser und in den Speichern anfallenden gasförmigen Aktivitäten werden der Abgasanlage zugeführt.

Ein kleiner Teil der rad. Edelgase (etwa 7% der Aktivität, die aus Kühlmittelreinigung anfällt; s. Abb.6-7) gelangt durch Leckagen direkt zum Kamin. Ausnahmen im ansonsten dichtgeschweißten System des Primärwasserkreislaufes bilden die doppelte und zwischenabgesaugte O-Ring-Dichtung des Druckbehälterflansches und die meist sperrwasserbeaufschlagten Pumpendichtungen sowie einige ruhende Flanschabdichtungen zu Steuerelementen, Mannlochdeckeln u.ä.. Durch die Leckage in diesen Verbindungselementen gelangt Kühlwasser einschließlich der enthaltenen gasförmigen Edelgase in die Anlageräume. In den Anlageräumen wird gegenüber den Betriebsräumen ein Unterdruck gehalten. Zur Aufrechterhaltung dieses Unterdruckes wird aus den Anlageräumen Luft abgezogen und über Filter der Abluft aus der Abgasanlage im Kamin beigemischt. Die mittlere Aufenthaltsdauer der freigesetzten Edelgase in den Anlagenräumen beträgt mindestens 10 Stunden /16/.

Da sich die Primärwasserreinigung und die Abgasanlage im Hilfsanlagengebäude befindet, ist es möglich, daß durch Leckagen aus diesem System ebenfalls Aktivität an die Luft gelangt, die dann ungefiltert über den Abluftkamin abgegeben wird. Die Leckagen im Hilfsanlagengebäude werden allerdings wesentlich geringer sein als im Anlagengebäude, da vor dem Einleiten in die Reinigungsanlage das Primärwasser noch innerhalb der Anlagenräume von 158 ata auf einen Druck von 8-12 ata entspannt wird.

Bei Undichtigkeiten in den Wärmetauscherrohren gelangt Aktivität auch in den Dampfkreislauf, da dem Druck im Primärkreis von 150 ata ein sekundärseitiger Druck von 50 ata gegenübersteht. Die dann im Turbinenkondensator freiwerdenden Spaltedelgase werden der Abluft im Kamin beigemischt. Da der Wasserübergang bei 4 Dampferzeugern, z.B. für das KKW Unterweser, mit $0,15 \frac{\text{mg}^+}{\text{h}}$ angegeben wird, ist die auf diesem Weg freigewordene Edelgasaktivität vernachlässigbar /16/.

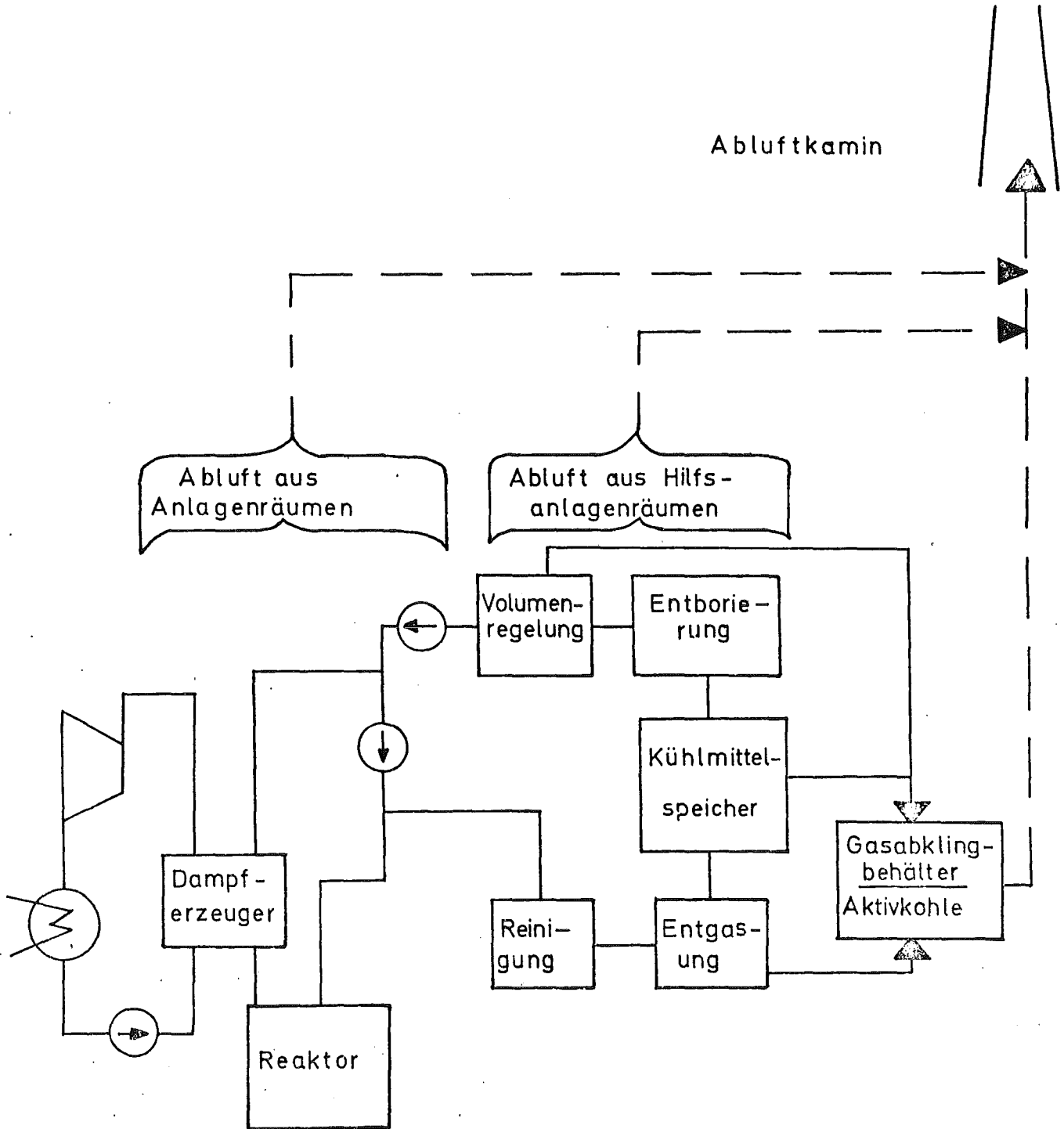
Abb.6-6 zeigt das prinzipielle Aktivitätsfließschema eines DWR. Da im Rahmen dieser Arbeit nur die Edelgasabgaben am Kamin von Interesse sind, wird für Messungen der Aktivitätskonzentrationen auf diesen einzelnen Wegen auf Wahn /15/ und für Abschätzungen auf Schmitz und Sütterlin /16/ und Herrmann /17/ verwiesen.

Abgasanlage

In der Anfangszeit der LWR-Technologie war es bei DWR üblich, das anfallende Gas nach Rekombination in Behältern zu sammeln, deren Inhalt nach entsprechenden Abklingzeiten von 30 bis 90 Tagen über den Kamin abgegeben wurde. Bei Normalbetrieb ist eine kontinuierliche Gasabgabe über den Kamin nicht erforderlich, da die sich ansammelnden Spaltgasvolumina sehr klein sind gegenüber dem Volumen der Abgasanlage (s. Kap. 10.1.1.).

⁺) untere Nachweisgrenze

Abb.6-6 Aktivitätsfließschema eines Druckwasserreaktors



Bei neueren DWR (s. Tab. 6-5) werden in der BRD anstatt Gasabklingbehältern Aktivkohleverzögerungsanlagen vorgesehen. Wie in Kapitel 10.1.2. erläutert, lassen sich Aktivkohleanlagen grundsätzlich im geschlossenen Kreislauf betreiben. Es besteht aber die Möglichkeit, diejenigen Gase, die die Aktivkohle einmal durchlaufen haben, über den Kamin abzugeben /107/. Dabei ergeben sich je nach Auslegung der Anlage für Krypton Rückhaltezeiten von 1-3 Tagen und für Xenon Rückhaltezeiten von 14-70 Tagen. Eine genauere Erläuterung der Rückhaltezeiten bei Aktivkohleanlagen findet sich in Kapitel 10.1.1.

Tabelle 6-4 zeigt den Einfluß der Abklingzeit auf die Abgaberate am Kamin für einen typischen 1100 MWe-DWR mit 1% Brennelementschäden. Dabei wird deutlich, daß bei Rückhaltezeiten von etwa 60 Tagen die rad. Abluft fast ausschließlich aus Kr-85 besteht. Xe-131m und Xe-133 sind nach 60 Tagen bereits auf 3% bzw. 0,04% ihrer Anfangsaktivität abgeklungen. Eine weitere wesentliche Reduktion der Abgaberate ist nur noch durch Abtrennung des Kr-85 aus dem Abgasstrom zu erreichen.

Tabelle 6-4 Jährliche Edelgasabgaberaten am Kamin eines 1100 MWe-DWR in Abhängigkeit von der Rückhaltezeit bei 1% Brennelementschäden /nach 108*/

Rückhaltezeit [d]	Edelgasisotope [Ci/a]			
	Kr-85	Xe-131m	Xe-133	andere
0	11900	10000	1000000	
7	11900	6000	390000	< 600
15	11900	3800	140000	< 50
30	11900	1700	20000	< 1
40	11900	1000	5300	0
45	11900	700	2800	0
50	11900	500 (≅ 5,5%)	1400 (≅ 0,14%)	0
60	11800	300 (≅ 3%)	400 (≅ 0,04%)	0
70	11750	150 (≅ 1,5%)	100 (≅ 0,01%)	
90	11700	50	7	
120	11650	10	0,2	

*) basierend auf Schätzungen der Sicherheitsberichte von North Anna - 875 MWe (USA - 1. kommerzielles Jahr 1975) und Arkansas Nuclear One - 850 MWe (USA - 1. kommerzielles Jahr 1973) - Westinghouse -

Abgaberaten am Abluftkamin

Tabelle 6-5 enthält eine Zusammenstellung der gemessenen jährlichen Edelgasabgaben von 12 DWR seit 1962 und den Sicherheitsberichten entnommene Schätzungen der Abgabe von 4 Reaktoren, welche noch nicht in Betrieb sind.

Der Anteil des durch Aktivierung gebildeten Edelgasisotopes Ar-41 ($T_{1/2}=1,83$ h) beträgt etwa 0,1 bis 0,4% /11, 16,17/ der gesamten Edelgasabgabe und wird deshalb nicht in Betracht gezogen.

Da die jährlichen Abgaberaten am Kamin, wie sie in Tabelle 6-5 angegeben sind, noch keine gute Aussage zulassen, wurden in Tabelle 6-6 die Abgaberaten auf die jährlich produzierte Energie bezogen. Die Rückhaltezeiten der einzelnen Reaktoren sind jeweils in beiden Tabellen angegeben.

Wie Tab.6-6 zeigt, ist die Edelgasaktivitätsabgabe je produzierte MWe keineswegs bei allen DWR gleich. Während beim DWR Shippingport von 1968-70 eine Abnahme um den Faktor 12 zu verzeichnen ist, zeigen alle anderen KKW eine stetige Zunahme der bezogenen Aktivitätsabgabe mit den Betriebsjahren. Die Edelgasabgaben je produzierte Energieeinheit von San Onofre und Connecticut Yankee haben z.B. in der Zeit von 1968-71 um den Faktor 700 zugenommen. Gründe für die Zunahme der Aktivitätsabgabe wurden in den Berichten über die Betriebserfahrungen in USA nicht angegeben /115/. Für das deutsche KKW Obrigheim sind die Gründe für die unterschiedlichen Aktivitätsabgaben in Tab.6-6 vermerkt.

Es ist nicht leicht, aus den gezeigten Abgaberaten für eine einzelne Anlage einen guten Jahresmittelwert abzuleiten. Gründe dafür sind häufige Reparaturen, Umbauten und Brennelementtests. Bei einem Vergleich der Abgaberaten der verschiedenen Anlagen untereinander spielt außerdem die Art und Bauweise der jeweiligen Abgasanlage eine Rolle.

Tabelle 6-5 Jährliche Edelgasabgaberraten verschiedener Druckwasserreaktoren
/11,16,17,18,108,109,110,111,112,113,114,115,116,117,118,119,120,121/

Bezeichnung d. KKW, Land	Leistung		Betriebsbeginn	Edelgasabgaben $\left[\frac{\text{Ci}}{\text{a}}\right]$										nach Sicherheitsbericht	Rückhaltezeit $\left[\frac{\text{a}}{\text{a}}\right]$	Gaslagerbehälter	Aktivkohleanlage	Isotopenzusammensetzung in Tab.6-8
	$\left[\frac{\text{MW}_{\text{th}}}{\text{MW}_e}\right]$	$\left[\frac{\text{MW}_e}{\text{MW}_e}\right]$		1962	1963	1964	1965	1966	1967	1968	1969	1970	1971					
Shippingport, USA	320	90	1957	0,012	0,351	0,0024	0,032	0,03	0,002	0,001	$7,5 \cdot 10^{-5}$	$1,9 \cdot 10^{-5}$			60	x		
Yankee Rowe, USA	600	175	1960	21,7	7,4	0,95	1,7	2,4	2,3	0,7	4	17,2	12,8		60	x		x
Indian Pt.1, USA	615	265	1962		0,0072	13,2	33,1	36,4	23	60	600	1750	360		120	x		
Saxton, USA	28	5	1962						22	18,6	1	2200	440					
Trino Vercellese, I	825	250	1964				19,4	89,7	59,1			19,2	585					
SENA, Chooz, F	905	240	1966						2,1			3	4500					
San Onofre, USA	1347	430	1967						4	4,8	260	4200	7670		30	x		
Connect.Yankee, USA	1825	575	1967						0,02	3,7	190	700	3250		unterschiedl.	x		x
KWO, BRD	907	283	1969								5560	7700	1455	3201	15-30	x		x
R.E.Ginna, USA	1300	420	1969									10000	31800		45	x		
Mihama, Japan	1031	340	1970									1200						
KKS, BRD	1900	630	1972										2445		15-30	x		
Surry I, USA	2546	822	1973											4630	45	x		x
Sequoyah I, USA	3423	1125	1974											11500	45	x		x
Biblis, BRD	3462	1146	1974											14000	50 (Xe), 7 (Kr)		x	
Nordenham, BRD	3733	1300	1976											90000 ^{*)}	40 (Xe), 2,5 (Kr)		x	x

*) beantragter Wert -

bei realistischer Leckage: $6420 \frac{\text{Ci}}{\text{a}}$ nach Schmitz und Sütterlin /16/

Tabelle 6-6 Edelgasaktivitätsabgabe verschiedener Druckwasserreaktoren, bezogen auf die produzierte elektrische Energie /nach 112, 115, 116, 118, 119/

Bezeichnung des KKW	Zeitraum	Edelgas-abgabe [Ci]	prod.el. Energie · 10 ⁶ [MWhe]	bezogene Aktivitäts-abgabe [µCi/MWhe]	Rückhaltezeit [d]
Shippingport	1959-68	Σ=0,58	0,35	1,7	60
	1968	0,001	0,41	0,002	
	1969	7,5 · 10 ⁻⁵	0,34	2,2 · 10 ⁻⁴	
	1970	1,9 · 10 ⁻⁵	0,39	5 · 10 ⁻⁵	
Yankee Rowe	1961-68	37	8,9	4,16	60
	1968	0,68	1,2	0,57	
	1969	4,14	1,2	3,45	
	1970	17	1,3	1,3	
	1971	12,8	1,4	9,15	
Indian Point 1	1964-68	166	6,2	26,77	120
	1968	59,6	1,6	37,2	
	1969	600	1,8	333	
	1970	1800	(a)		
	1971	360	0,74	470	
SENA	1970	3	1,3	2,3	
	1971	4500	1,9	2380	
San Onofre	1967-68	8,8	1,7	5,18	30
	1968	4,83	1,4	3,45	
	1969	256	2,8	91,5	
	1970	4200	3,2	1300	
	1971	7670	3,2	2400	
Connect. Yankee	1967-68	3,75	3,7	1,01	untersch.
	1968	3,74	3,2	1,17	
	1969	190	3,8	50	
	1970	700	3,7	189	
	1971	3250	4,14	780	
KWO	1969	5500	1,86	2950 (b)	15-30
	1970	7700	2,39	3210 (c)	
	1971	1456	2,13	690	
	1972	3201	2,29	1400	
R.E. Ginna	1969	0	0,15	0	45
	1970	10000	2,3	4350	
	1971	31800	2,7	11800	
KKS	1972	2445	3,2	765	15-30

- (a) = nicht in Betrieb
- (b) = Probetrieb, Leckagen
- (c) = 12 undichte Brennelemente

Bildet man ohne Rücksichtnahme auf die angeführten Punkte aus den gemessenen Aktivitätsabgaben pro Energieeinheit der Tabelle 6-6 einen Mittelwert (ohne die Extremwerte $<1 \mu\text{Ci/MWhe}$ und $>10000 \mu\text{Ci/MWhe}$), so ergeben sich ca. $830 \frac{\mu\text{Ci}}{\text{MWhe}}$. Dieser Wert schließt alle bisher vorgekommenen Betriebszustände der 8 betrachteten DWR ein und liegt relativ nahe bei den gemessenen, "normalen" Aktivitätsabgaben von KWO und KKS (690 bzw. $765 \frac{\mu\text{Ci}}{\text{MWhe}}$). Für einen 1000 MWe-DWR ergibt sich damit bei einem linearen Abgabe-Leistungs-Zusammenhang und einem Lastfaktor von 0,8 ein Erwartungswert der Edelgasabgabe von 5800 Ci/a.

Nach Schmitz und Sütterlin /16/ kann angenommen werden, daß die Leckage unabhängig von der Reaktorleistung ist. Eine realistische Hochrechnung der Emissionen der derzeit vorhandenen 300 MWe-KKW auf 1000 MWe-KKW dürfte deshalb höchstens zu einer Verdoppelung führen /15,19,122/. Mit dem aus gemessenen Edelgasabgaben errechneten Mittelwert von $830 \mu\text{Ci/MWhe}$ ergibt sich demnach für einen 1000 MWe-DWR bei 80% Last während des Jahres eine Edelgasemission von 3500 Ci/a.

Aufgrund dieser Abschätzungen wird im folgenden angenommen, daß 1000 MWe-DWRn mit Rückhaltezeiten von 40-50 Tagen etwa 5000 Ci pro Jahr an Edelgasaktivität abgeben (Lastfaktor 0,8). In Tabelle 6-7 sind die Abschätzungen von siebzehn Autoren bzw. KKWe über die Edelgasabgabe künftiger 1000 MWe-DWR zusammengestellt. Die einzelnen Berichte enthalten zum Teil sehr wenig Angaben darüber, wie diese Zahlen zustande gekommen sind. Geht man davon aus, daß Schätzungen der Edelgasabgabe von 10000 bis 15000 Ci/a Maximalwerte darstellen und relativ hochgegriffen sind - was auch den Bemerkungen der jeweiligen Autoren zu entnehmen ist -, so erscheint die weiter oben getroffene Abschätzung von 5000 Ci/a für einen 1000 MWe-DWR realistisch.

Zusammensetzung der Edelgasabgabe

Messungen der Abgaberate einzelner Edelgasisotope am Kamin

Tabelle 6-7 Schätzungen verschiedener Autoren über die Edelgasabgaben eines 1000 MW_e-DWR
(40-50 Tage Rückhaltezeit)

Autor bzw. KKW	Datum	Edelgasabgabe [$\frac{Ci}{a}$]			Last- faktor	Bemerkung des Autors
		insgesamt	Kr-85	Xe-133		
Keller /123/	Okt.70	11200-70000			0,8	Maximalwerte
Mandel /124/	Jan.71	11200-70000			0,8	
Martin /108/	Jan.73	15400	11900	2800	?	1% BE-Schäden (s.Tab.6-4)
Schikarski /52/	Feb.72	14000			0,8	LWR; 2x300 MW _e $\hat{=}$ 1000 MW _e
Büker, Jansen, Schikarski /19/	März 73	13450	4200	9250	0,8	Maximalwerte; 2x300 MW _e $\hat{=}$ 1000
Aurand, Ruf, Schikarski, /122/	Sept.71	12000	6000	6000	?	pess. Annahme; 2x300 MW _e $\hat{=}$ 1000 MW _e
KKW Sequoyah /125/	Feb.71	11500	6000	5500	?	1% BE-Schäden, Sicherheitsb.
Vinck /18/	Dez.72	bis 10000	bis 3000		?	bis 10 Ci/a MW _e
KKW Nordenham /16/	Nov.71	6420	940	4370	1	nach Sicherheitsber. ber.
KKW Surry /108/	Jan.73	4400	2900	1500	?	1% BE-Schäden, Sicherheitsb.
Schmitz, Sütterlin /16/	Nov.71	4000			?	unabhängig von Leistung
Blomeke /89/	68	4000	3200	800	0,9	1% BE-Schäden
USAEC /53/	Juli 73	3600	970	2400	0,8	ohne bes.Vorkehrungen gegen Leckage
Handke, Schwarzer /126/	Nov.71	3400	950	2200	?	Mittelwert für LWR
Sütterlin /127/	Nov.71	2640			0,8	dieser Wert braucht nicht überschritten werden
Braun, Traube /110/	Sept.71	2000			?	Angabe von AEG und Siemens
Nichols /128/	Aug.71	1003	3	1000	?	bei Abtrennung des Krypton

werden nur sehr vereinzelt durchgeführt und sind von 3 DWR verfügbar. Werden Kaminabgaberaten einzelner Edelgasnuklide von den Anlagenbetreibern angegeben, so sind diese Berichte weder hinsichtlich der genannten Isotope noch hinsichtlich der gewählten Einheiten konsistent. Diese Situation sollte durch von der AEC vorgeschlagene Richtlinien geändert werden /115/. Oft wird nur 1 Nuklid (z.B. Xe-133) gemessen und über das Modell der Diffusionsmischung (s.Kap.6.2.3.) der Anteil der anderen Edelgasnuklide an der Kaminabgaberate berechnet.

Messungen der Konzentration bestimmter Radionuklide im Primärwasser werden häufiger durchgeführt. Je nach Reinigungsrate, Größe der Leckagen und Rückhaltezeit wird sich jedoch das relative Vorkommen der Nuklide im Kühlwasser stark von der Zusammensetzung in der Abluft unterscheiden, so daß diese Messungen hier nicht brauchbar sind.

Soweit genauere Aussagen über die Zusammensetzung der Abluftgase bekannt sind, wurden diese in den Tabellen 6-7 und 6-8 zusammengestellt. Aufgrund dieser Tabellen und Tabelle 6-4 kann angenommen werden, daß die gesamte Edelgasabgabe nach 40-50 Tagen Rückhaltezeit zu 80-90% aus den Isotopen Kr-85 und Xe-133 besteht. Für eine weitere Aufteilung gestaltet sich bereits die Umrechnung der einzelnen Angaben auf gleiche Rückhaltezeiten schwierig, da nicht bekannt ist, wieviel Aktivität jeweils aus Leckagen unverzögert zum Kamin gelangte. Durch eine Rückrechnung der angegebenen Edelgasabgaben auf z.B. Null Tage Verzögerung würde man eine viel zu große Aktivität erhalten.

Abb.6-7 zeigt die von Schmitz und Sütterlin /16/ aufgrund von Herstellerangaben nach dem Diffusionsmodell berechneten Aktivitätsanteile von Kr-85 und Xe-133 aus Leckage und Abgasanlage. Diese Aufteilung wurde für die Daten des KKW Nordenham errechnet.

Im folgenden soll eine eigene Abschätzung durchgeführt werden.

Tabelle 6-8 Gemessene und errechnete Isotopenzusammensetzung der Edelgasabgabe verschiedener Druckwasserreaktoren

Bezeichnung des KKW Betriebsbeginn Literatur elektr. Leistung $\left[\frac{\text{MW}}{\text{d}} \right]$ Rückhaltezeit $\left[\frac{\text{d}}{\text{MW}} \right]$ angegebene Einheit	Yankee Rowe 1960 /15, 19/ 175 $\left[\frac{\text{Ci}}{\text{a}} \right]^{60\text{a)}$	Connect. Yankee 1967 /11/ 575 unterschiedl. $\left[\frac{\text{Ci}}{\text{a}} \right]^{b)}$	KWO 1968 /121/ 345 0 $\left[\frac{\text{Ci}}{\text{a}} \right]^{c)}$	Surry 1973 /108/ 822 45 $\left[\frac{\text{Ci}}{\text{a}} \right]$	Sequoyah 1974 /125/ 1125 45 $\left[\frac{\text{Ci}}{\text{a}} \right]^{d)}$	Nordenham 1976 /16/ 1300 40/2,5 $\left[\frac{\text{Ci}}{\text{a}} \right]^{d, e)}$	allgemeiner DWR /53/ 1000 60 $\left[\frac{\text{Ci}}{\text{a}} \right]^{f)}$
	MESSUNG			RECHNUNG			
Xe-131m						44,1	36
133	0,1	86	≈ 90	1500	5500	4370,0	2400
133m	0,002					47,5	27
135	0,2	12	≈ 8			694,0	38
135m						8,81	2
138						21,2	6
Kr-83m						28,7	2
85	3	1,4	0,09	2890	6000	940,0	970
85m	0,02					8,62	12
87	0,02					66,2	8
88	0,03					173,0	22
Ar-41	0,4	0,4	1			13,8	

a) geschätzte Werte aus Einzelmessungen während 1969 und 1970

b) Einzelmessungen 1970

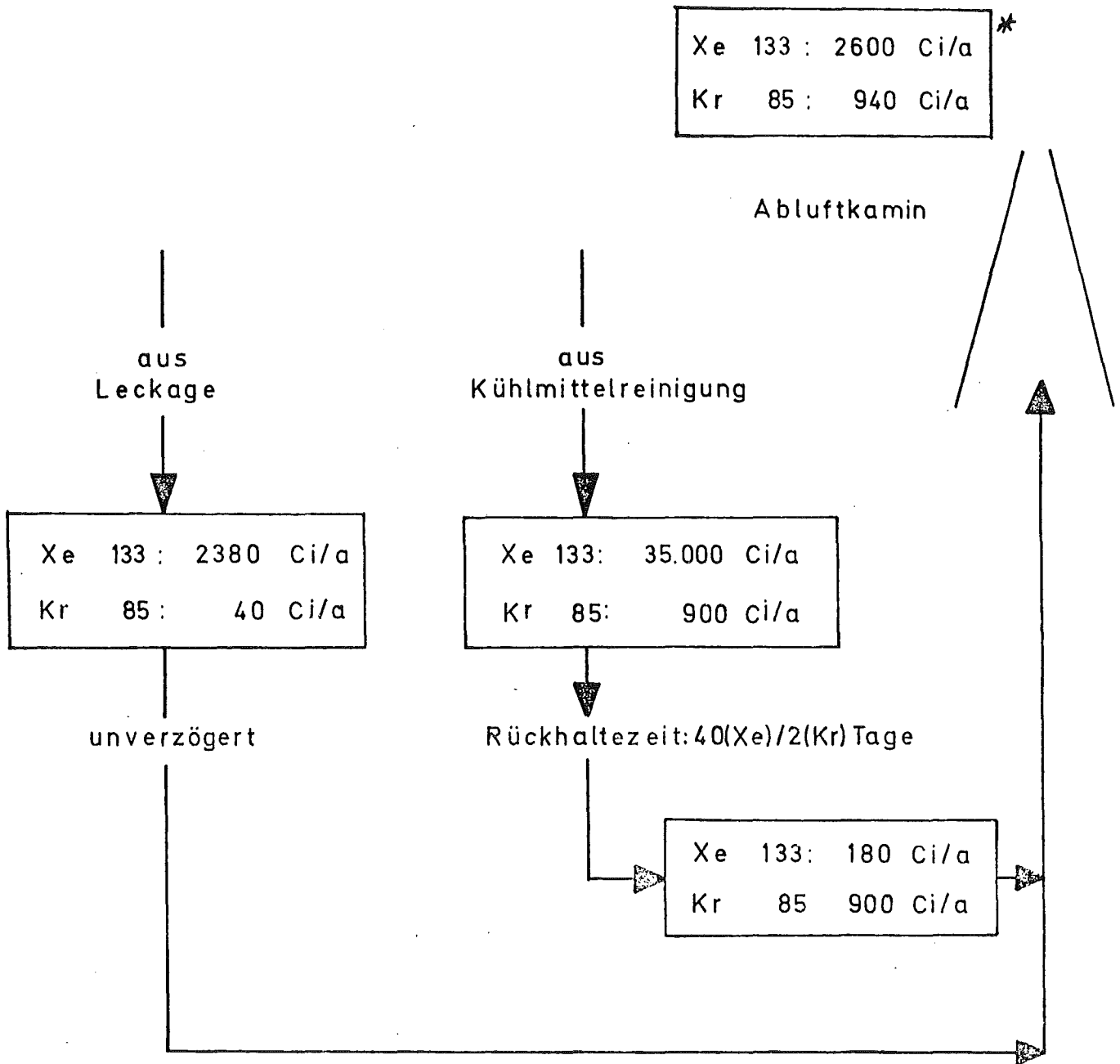
c) Einzelmessungen 1973

d) berechnete Werte aufgrund des Sicherheitsberichtes

e) ausgehend vom Diffusionsmodell

f) ausgehend vom Gleichgewichtsmodell

Abb.6-7 Aufgrund des Sicherheitsberichtes berechnete Isotopenzusammensetzung der Edelgasabgabe beim DWR Nordenham, 1300 MWe /nach 16/



*ohne Entgasung vor Brennelementwechsel

Tabelle 6-9 enthält die aus den Tabellen 6-4, 6-7 und 6-8 auf eine Rückhaltezeit von ≈ 50 Tagen umgerechneten Verhältnisse der Abgaberaten von Kr-85/Xe-133.

Tabelle 6-9 Verhältnis der Aktivitäten der Isotope Kr-85/Xe-133 in der Abluft verschiedener DWR (umgerechnet auf eine Rückhaltezeit von ≈ 50 Tagen)

Bezeichnung des KKW bzw. Autor	elektr. Leistung [MWe]	aus Tabelle Nr. Literatur	Kr-85/Xe-133
KKW North Anna	875	6-4 /108/	8,5
Büker, Jansen	1000	6-7 /19/	0,5
Aurand, Ruf, Schik.	1000	6-7 /122/	1
KKW Sequoyah	1125	6-7, 6-8 /125/	1
KKW Nordenham	1300	6-7, 6-8 /16/	0,8
KKW Surry	822	6-7, 6-8 /108/	4
USAEC	1000	6-7, 6-8 / 53/	0,1
Blomeke	1000	6-7 /89/	4
Handge, Schwarzer	1000	6-7 /126/	0,4
KKW Yankee Rowe*	175	6-8 /19/	7,9
KKW Obrigheim*	270	6-8 /121/	0,7

*) aus Messungen

In dieser Rechnung konnte wegen des jeweils unbekanntes Leckageterms nicht berücksichtigt werden, daß ein Teil der Aktivität stets unverzögert zum Kamin gelangt. Da Xe-133 eine Halbwertszeit von 5,27 Tagen hat, wird das Kr-85/Xe-133-Verhältnis sehr stark durch die Rückhaltezeit und jeweilige Höhe der Leckage beeinflusst. Wie Tabelle 6-9 zeigt, ist aufgrund der wenigen Messungen und des unbekanntes, sicher unterschiedlichen Leckageterms keine allgemeingültige Aussage über das Kr-85/Xe-133-Verhältnis möglich.

Sütterlin /127/ versucht, durch Rückrechnung mit Hilfe der Meßwerte am Kamin dreier deutscher KKW (300 MWe) eine scheinbare Leckage (Undichtigkeiten, Probeentnahmen, Reparaturen usw.) zu bestimmen; ein Verfahren, das nach Ansicht des Ver-

fassers - exakte Isotopenaktivitätsmessungen vor und nach der Abgasanlage sowie am Kamin ausgenommen - das einzig mögliche Verfahren ist, um den unverzögert an die Umgebung gelangenden Aktivitätsanteil zu bestimmen. Wie sich dabei zeigt, stimmt nur im Fall des DWR Obrigheim die errechnete scheinbare Leckage mit den Herstellerangaben überein. Bei KWL und KRB waren keine hinreichend genauen Aussagen möglich. Damit läßt dieses Verfahren zunächst noch keine Schlüsse auf die genaue Höhe der Leckagen bei 1000 MWe-KKW zu. Hier bleibt nur der ebenfalls von Schmitz und Sütterlin /16/ gewählte Weg der Berechnung mit dem Diffusionsmodell nach Angaben des Sicherheitsberichtes (s.Abb.6-7). Die Ergebnisse dieser Rechnungen werden sich für jeden DWR je nach seinen individuellen Konstruktionsmerkmalen etwas unterscheiden.

Eine vereinfachte Abschätzung läßt sich wie folgt durchführen: Vergleicht man bei den heutigen Konstruktionen die Aktivitäten aus Leckage mit denen aus der Kühlmittelreinigung vor der Verzögerung, so liegt der Leckageterm in der Größenordnung von 10% der Gesamtaktivität. Nach der Verzögerung in der Abgasanlage trägt jedoch der Leckageterm überwiegend zur Edelgasabgabe bei. Untersuchungen zum DWR Nordenham ergaben /16/, daß die Aktivität aus Leckage am Kamin etwa das 3fache der Aktivität aus der Abgasanlage beträgt, woraus sich u.a. ergibt, daß sich beim DWR die Edelgasabgabe nur durch Vorkehrungen gegen Leckage drastisch senken läßt.

Aufgrund dieser Verhältniszahlen läßt sich die Edelgas-Gesamtabgabe eines 1000 MWe-DWR mit 50 Tagen Rückhaltezeit aufteilen in:

3200 Ci/a Xe-133

1300 Ci/a Kr-85

500 Ci/a andere Edelgase ($\approx 60\%$ Xe-135, $\approx 20\%$ Xe-131m, und je $\approx 10\%$ Xe-133m und Kr-88)

6.3.2. Siedewasserreaktoren (SWR)

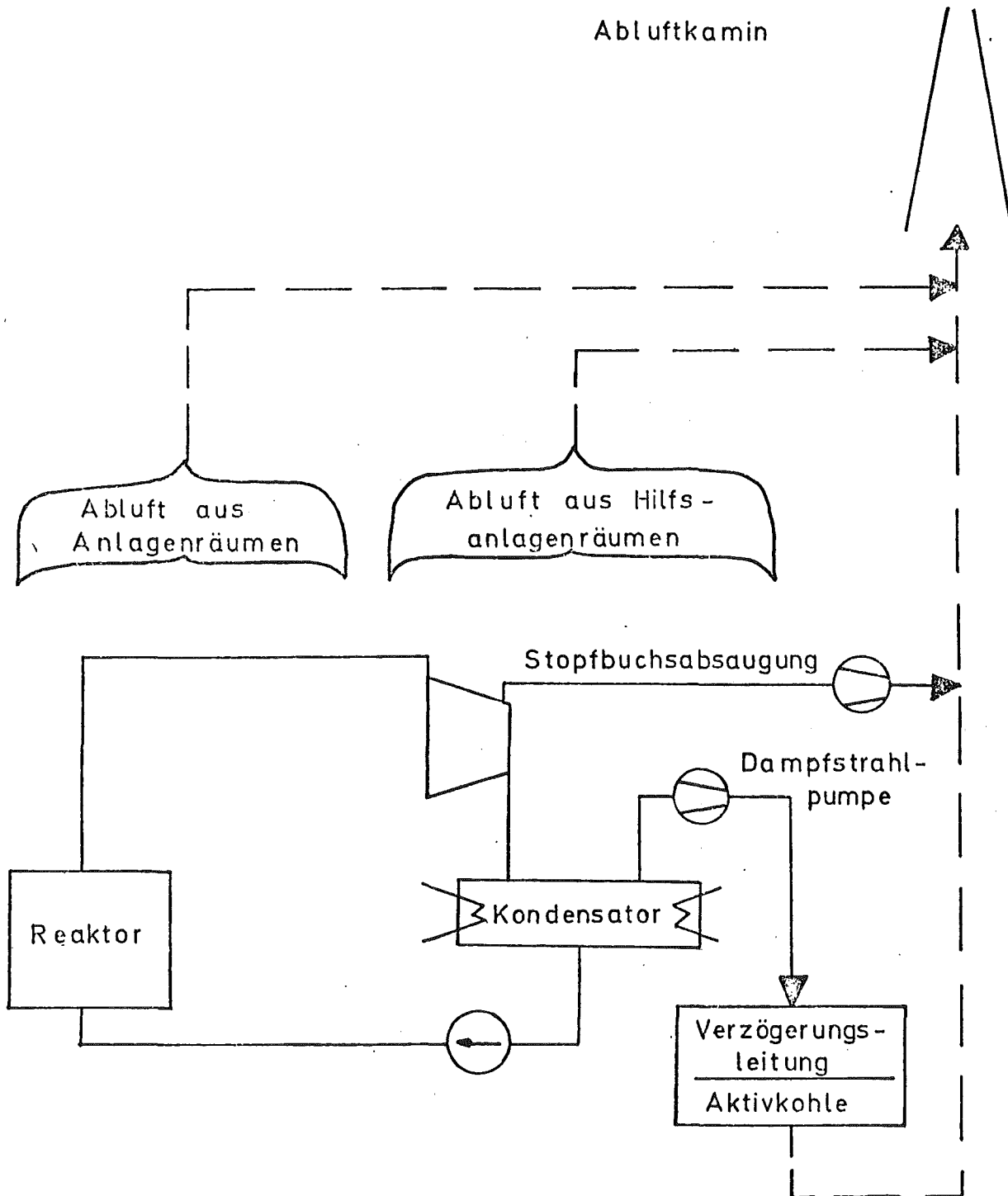
Beim SWR nimmt man an, daß die an der Oberfläche der Brennelemente entstehenden Dampfblasen die aus den Brennelementen freigesetzten Edelgase mit sich führen. Damit treten die im Reaktorwasser enthaltenen Gase fast vollständig in den Dampf über /17/.

Aktivitätsfluß

Der entstehende Dampf wird aus dem Druckbehälter herausgeführt und kommt über die Turbine in den Kondensator, wo er an den gekühlten Oberflächen kondensiert. Die Edelgase bleiben dabei gasförmig. Um den Wirkungsgrad von Dampfturbinenanlagen zu erhalten, müssen nicht kondensierbare Gase aus dem Dampf entfernt werden. Bleiben nicht kondensierbare Gase in den Kondensatoren, so wird dadurch deren Effektivität stark herabgesetzt /129/. Bei den SWR mit Direktkreislauf wird der Dampf deshalb nahezu vollständig (99,9%) in den Turbinenkondensatoren entgast und die Edelgase zusammen mit anderen nicht kondensierbaren Gasen in die Abgasanlage eingeleitet /65/.

Genauso wie beim DWR werden auch beim SWR durch Leckagen Edelgase frei. Die Aktivität aus Leckagen liegt jedoch um 2-3 Zehnerpotenzen unter der eines DWR (vgl. Abb.6-7 und 6-10), da zum einen der Kühlmitteldruck nur etwa 70 atü beträgt und zum anderen nur bei Dampfleckagen Edelgase in die Luft von Anlagen- und Hilfsanlagenräumen gelangen. Die aus Containment, Ringspalt, Maschinenhaus und Stopfbuchsabsaugung der Turbine abgezogene Luft wird genauso wie beim DWR unverzögert der Abluft im Kamin beigemischt /16,17,18,130/. Die mittlere Aufenthaltsdauer der freigesetzten Edelgasnuklide in den Anlagenräumen beträgt beim SWR wegen seiner kompakteren Bauweise nur etwa 2 Stunden /16/. Abb.6-8 zeigt das prinzipielle Aktivitätsfließschema eines SWR.

Abb.6-8 Aktivitätsfließschema eines Siedewasserreaktors



Gemessene Aktivitätskonzentrationen an verschiedenen Stellen eines SWR enthält der Bericht von Kahn /14/. Detaillierte Schätzungen der Edelgaskonzentration enthält der Sicherheitsbericht /90/, Schmitz und Sütterlin /16/ und Herrmann /17/.

Abgasanlage

Mit den Edelgasen müssen beim SWR erhebliche Mengen Einbruchsluft aus der Turbine über die Kondensatoren und Dampfstrahlersätze in die Abgasanlage befördert werden. Bei einem 1000 MWe-SWR fallen etwa 85 m^3 Einbruchsluft pro Stunde an, wodurch etwa 3mal soviel natürliches Krypton und Xenon in die Anlage gelangt als aus den Brennelementen freigesetzt wird /128/.

Da die Abluft wegen der großen anfallenden Menge kontinuierlich abgegeben werden muß, ließ man bisher die Aktivität der Edelgase meist in langen Rohrleitungen abklingen /108/ (siehe auch Kap.10.1.1.). Bei niedrig gewählter Strömungsgeschwindigkeit erreichte man damit Verzögerungszeiten von 18 bis etwa 30 Minuten /89/. Durch diese relativ kurze Rückhaltezeit ist der Anteil der kurzlebigen Isotope (Kr-88, Xe-133, 135, 138) zum Zeitpunkt der Abgabe am Kamin noch erheblich.

Für neuere SWR sind deshalb Aktivkohleanlagen vorgesehen /131/. Damit lassen sich bei diesem Abgasvolumen Rückhaltezeiten von ≈ 40 Tagen für Xenon und 2,5 Tagen für Krypton erreichen /65, 107, 108/. Seit 1968 ist im KKW Gundremmingen (KRB) eine erste Aktivkohleanlage in Betrieb. Mit ihr lassen sich Verzögerungszeiten von 14 d für Xenon und 1d für Krypton erreichen. Die Erfahrungen mit der Anlage waren durchweg gut /132/.

Im Gegensatz zum DWR kann die Aktivkohleanlage beim SWR wegen der erheblichen Mengen Einbruchsluft nicht im geschlossenen Kreislauf betrieben werden.

Abgaberaten am Abluftkamin

Tabelle 6-10 enthält eine Zusammenstellung der gemessenen jährlichen Edelgasabgaben von sechzehn SWR seit 1962 und

Tabelle 6-10 Jährliche Edelgasabgaben verschiedener Siedewasserreaktoren
/11,16,17,18,53,110,112,113,115,116,117,118,119,120,132/

Bezeichnung des KWK, Land	Leistung [MW_{th}] [MW_e]		Betriebs- beginn	Edelgasabgabe $\cdot 10^{-3} \frac{Ci}{a}$										nach Sicher- heitsbericht	Rückhalte- zeit	Verzögerungs- leitung	Zwei Gas- lagertanks	Aktivkohle	Isotopenzusammen- setzung in Tab. 6-13
	1962	1963		1964	1965	1966	1967	1968	1969	1970	1971	1972							
Dresden I, USA	700	200	1959	284	71,6	521	610	736	260	240	862	914	753	620		23 m	x		x
VAK, BRD	60	15	1960						3,9	4,6	1,8	3,4	2,45	-	40 - 48 h		x		
Big Rock, USA	240	70	1962	0,256	0,803	0,78	132	705	264	232	200	277	284		30 m	x			
Humboldt Bay, USA	240	68	1963		0,716	5,97	197	282	900	897	490	535	514		18 m	x			x
Garigliano, Ital.	506	150	1963				5,2	10,3	29,2	82	140	275	640	430					x
KRB, BRD	801	237	1966					0,53	8,8	8,8	11,4	7,35	6,65	11,0	40m+14d/1d	x		x	x
La Crosse, USA	165	50	1967						0,005	0,001	0,48	0,7	0,53		20 m	x			x
KWL, BRD	520	170	1968								200	130	130	3,1	60m + 3d	x		x	x
Dodewaard, NL	163	54	1968									3	3						
Tsuruga, Japan	968	306	1969									68			30 m	x			
Oyster Creek, USA	1990	515	1969								7	112	516	866	30 m	x			
Nine Mile Pt. USA	1538	500	1969								0,05	9,5	253	517	30 m	x			x
Dresden II, USA	2527	809	1970									280			30 m	x			
Milestone I, USA	2011	652	1971										267						
Monticello, USA	1670	545	1971										76						
KKW, BRD	1912	640	1972											0,61	0,3 - 300	Xe/Kr 38d/2,3d		x	x
KKB, BRD	2292	770	1974												171	40d/2,4d		x	x
KKP, BRD	2575	864	1974												2,7	40d/2,5d		x	x

Schätzungen der Abgabe von zwei im Bau befindlichen Reaktoren. Wie erwartet liegen die Edelgasabgaben aufgrund der kurzen Rückhaltezeit meistens wesentlich höher als bei DWR.

Bezieht man die jährlich abgegebene Edelgasaktivität auf die jeweils produzierte Energie - wie in Tabelle 6-11 geschehen - so ergibt sich ebenfalls meistens eine höhere Edelgasabgabe als bei DWR (vgl. Tab.6-6). Wie ersichtlich, ergibt sich bei SWR ein einheitlicheres Bild als bei DWR. Die nahezu konstante Abnahme der bezogenen Aktivitätsabgabe mit zunehmender Rückhaltezeit wird sehr gut deutlich. Ausnahmen stellen die KKW La Crosse und Lingen (KWL) dar. Die extrem niedrigen Abgaben von La Crosse können nicht erklärt werden. Obwohl bei KWL die Aktivkohleanlage stets in Betrieb war /133/, liegen die Werte der Jahre 1969-71 wegen Leckagen und Brennelementschäden über dem für diese Rückhaltezeit erwarteten Wert. Das Abklingverhalten der Aktivität von Kr- und Xe-Isotopen kann über einen längeren Zeitraum parallel zu Tab.6-11 auch unabhängig davon in Abb.6-9 verfolgt werden.

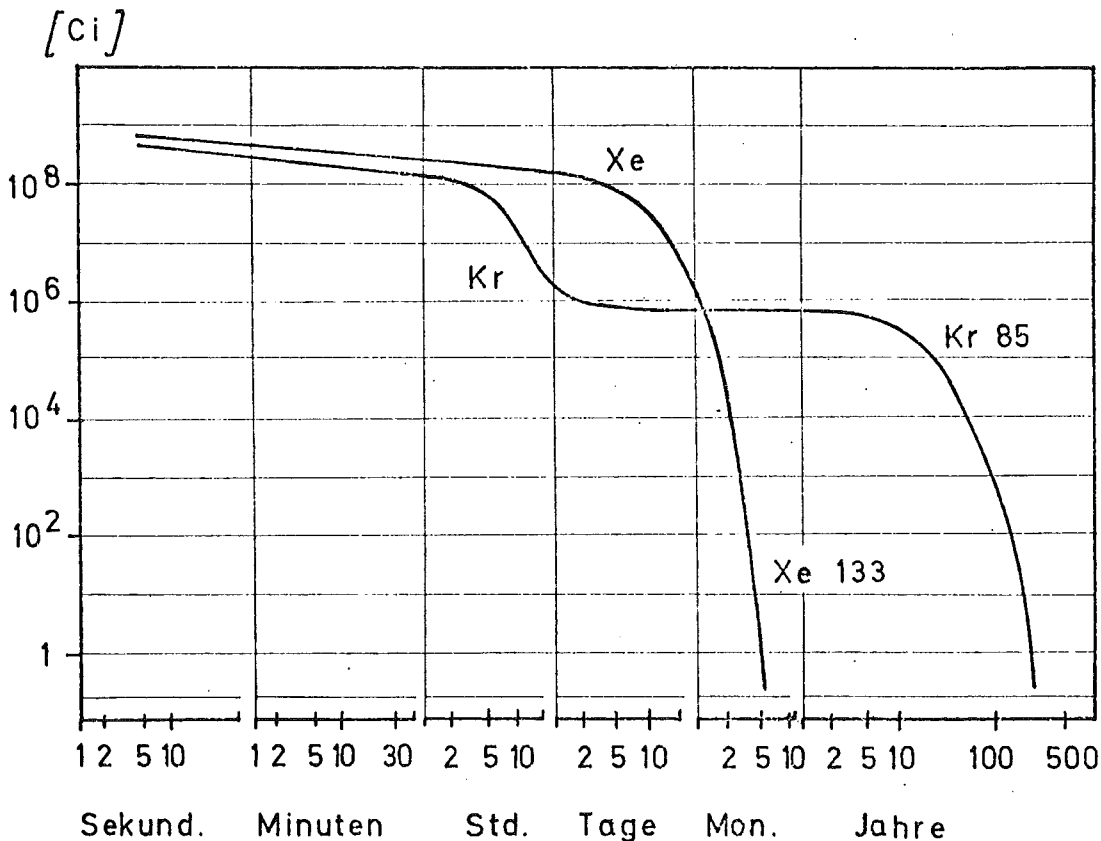


Abb.6-9 Abklingverhalten des Aktivitätsinventars an Krypton- und Xenonisotopen eines 1000 MWe-LWR nach 2 Jahren Bestrahlungszeit /nach 134/

Dabei ergibt sich sowohl aus den gemessenen Werten der Tabelle 6-11 als auch aus der allgemeinen Abb.6-9 bei Erhöhung der Rückhaltezeit von 20 Minuten

auf 14d eine Abnahme der Aktivität um den Faktor ≈ 100
" 38d " " " " " " ≈ 1000 .

Der Grund für diese relativ gute Übereinstimmung beim SWR läßt sich aus der Tatsache erklären, daß der aus Leckage unverzögert zum Kamin kommende Aktivitätsanteil sehr gering ist, d.h. fast die gesamte abgegebene Aktivität wird beim SWR durch die Abgasanlage geführt.

Der geringe Leckageterm spiegelt sich in Tab.6-11 auch in den relativ geringen Schwankungen über den Betriebsjahren der einzelnen KKW wieder. Eine Zunahme der bezogenen Aktivität wie bei DWR ist bei SWR ebenfalls kaum zu verzeichnen.

Bildet man für SWR einen sinnvollen Mittelwert der bezogenen Aktivitätsabgabe (d.h. ohne die KKW Humboldt Bay, La Crosse und Nine Mile Point 1969), so ergibt sich bei ≈ 28 Minuten Rückhaltezeit eine Abgabe von $46 \cdot 10^4 \frac{\mu\text{Ci}}{\text{MWh}}$. Im Bau befindliche und geplante SWR werden jedoch mit Aktivkohleanlagen ausgestattet, wodurch Rückhaltezeiten von $\approx 40\text{d}$ für Xenon und etwa 2d für Krypton erreicht werden. Nach Abb.6-9 reduziert sich dadurch die Aktivität etwa um den Faktor $1,25 \cdot 10^{-3}$ (s. Kap. 10.1.2. und Vollmer /136/), so daß für künftige SWR eine Aktivitätsabgaberate von $570 \frac{\mu\text{Ci}}{\text{MWh}}$ angenommen werden kann. Dieser Mittelwert liegt bei gleicher Rückhaltezeit wegen der geringeren Leckage unter dem Wert von $830 \frac{\mu\text{Ci}}{\text{MWh}}$ für DWR.

Bei der Annahme eines linearen Abgabe-Leistungs-Zusammenhangs und einem Lastfaktor 0,8 ergibt sich damit für einen 1000 MWe-SWR ein Erwartungswert der Edelgasabgabe von $4000 \frac{\text{Ci}}{\text{a}}$. Würde man für einen 1000 MWe-SWR die doppelte Abgabe eines 300 MWe-SWR als Erwartungswert annehmen, so ergäbe sich eine Emission von $2400 \frac{\text{Ci}}{\text{a}}$. Da jedoch bei der Edelgasabgabe eines SWR nicht der Anteil aus der leistungsunabhängigen Leckage den Hauptanteil liefert, wie das beim DWR der Fall ist, sondern die Aktivität aus der Abgasanlage, wird in Übereinstimmung mit Schmitz

Tabelle 6-11 Edelgasaktivitätsabgabe verschiedener Siedewasserreaktoren, bezogen auf die produzierte elektrische Energie /nach 112,115,116,118,119,135/

Bezeichnung des KKW	Zeitraum	Edelgasabgabe [Ci]	prod.el. Energie $\cdot 10^6$ [Mwhe]	bezogene Aktivitätsabgabe $\cdot 10^3$ [$\frac{\mu\text{Ci}}{\text{Mwhe}}$]	Rückhaltezeit
Humboldt Bay ^{a)}	1963-68	$2230 \cdot 10^3$	1,8	1240	18 m
	1968	$853 \cdot 10^3$	0,47	1830	
	1969	$490 \cdot 10^3$	0,39	1000	
	1970	$540 \cdot 10^3$	0,43	1300	
	1971	$514 \cdot 10^3$	0,33	1570	
La Crosse	1969	$0,48 \cdot 10^3$	0,077	6,3	20 m
	1970	$0,95 \cdot 10^3$	0,13	7,3	
	1971	$0,53 \cdot 10^3$	0,22	2,4	
Dresden 1	1961-68	$2800 \cdot 10^3$	7,6	368	23 m
	1968	$240 \cdot 10^3$	0,97	247	
	1969	$860 \cdot 10^3$	0,87	990	
	1970	$910 \cdot 10^3$	1,4	650	
	1971	$750 \cdot 10^3$	0,70	1080	
Big Rock Point	1962-68	$1330 \cdot 10^3$	1,7	782	30 m
	1968	$232 \cdot 10^3$	0,45	516	
	1969	$200 \cdot 10^3$	0,42	480	
	1970	$280 \cdot 10^3$	0,40	700	
	1971	$284 \cdot 10^3$	0,36	820	
Oyster Creek	1969	$7 \cdot 10^3$	0,35	20	30 m
	1970	$110 \cdot 10^3$	3,6	31	
	1971	$516 \cdot 10^3$	3,75	138	
Nine Mile Point	1969	$0,055 \cdot 10^3$	0,071	0,78	30 m
	1970	$9,5 \cdot 10^3$	1,9	5	
	1971	$253 \cdot 10^3$	2,9	87,5	
VAK	1968	$4,6 \cdot 10^3$	0,108	39	40-48h
	1969	$1,8 \cdot 10^3$	0,085	21	
	1970	$3,4 \cdot 10^3$	0,109	31	
	1971	$2,5 \cdot 10^3$	0,108	23	
Dodewaard	1970	$3 \cdot 10^3$	0,368	8,1	
	1971	$3 \cdot 10^3$	0,405	7,4	
KRB	1968	$8,8 \cdot 10^3$	0,96	9,2	14d (Xe) 1d (Kr)
	1969	$11,4 \cdot 10^3$	1,18	9,55	
	1970	$7,4 \cdot 10^3$	1,75	4,2	
	1971	$6,65 \cdot 10^3$	1,88	3,5	
	1972	$11 \cdot 10^3$	1,82	6,05	
KWL	1969	$200 \cdot 10^3$ ^{a)}	1,75	114	60m+30d
	1970	$130 \cdot 10^3$ ^{a)}	0,969	135	
	1971	$130 \cdot 10^3$ ^{a)}	0,966	136	
	1972	$3,1 \cdot 10^3$	0,712	4,35	
KWW ^{c)}	1972	$0,61 \cdot 10^3$	0,5	1,2	38d (Xe) 2,3d (Kr)

a) Brennelementschäden /115/, /119/

b) Leckagen /119/

c) Versuchsbetrieb /119/

und Sütterlin /16/ die Edelgasaktivitätsabgabe eines SWR in erster Näherung der Reaktorleistung direkt proportional angenommen.

Im folgenden wird deshalb die Gesamtedelgas-Abgaberate eines 1000 MWe-SWR (Lastfaktor 0,8) mit 40 Tagen Rückhaltezeit mit ca. 4000 Ci als realistisch betrachtet. Siedewasserreaktoren gleicher Leistung würden bei 30 Minuten Rückhaltezeit etwa 1 Million Ci pro Jahr abgeben, wobei es sich allerdings um überwiegend kurzlebige Edelgasisotope handeln würde. Die Schätzungen verschiedener Autoren bezüglich der Edelgasabgabe eines 1000 MWe-SWR sind in Tabelle 6-12 zusammengefaßt. Die wenigen vorhandenen Schätzungen enthalten sehr wenige Hinweise, wie diese Zahlen zustande gekommen sind. Die Bemerkungen und Angaben der Autoren sind in Tabelle 6-12 jeweils angegeben. Nach Martin /108/ resultiert diese Unsicherheit daraus, daß Abgassysteme dieser Größenordnung mit langen Rückhaltezeiten relativ neu sind und wenig Erfahrung bezüglich Auslegung, Konstruktion und Kosten vorhanden ist.

Zusammensetzung der Edelgasabgabe

Die Aufteilung der abgegebenen Aktivität auf die einzelnen Edelgasnuklide gestaltet sich auch beim SWR sehr schwierig. In Tab.6-13 sind die verfügbaren Messungen von drei Reaktoren zusammengefaßt. Diese Messungen sind nur kennzeichnend für einen gegebenen Reaktor, zu einer gegebenen Zeit, mit einem bestimmten Prozentsatz an Brennelementschäden /41/. Eine Verallgemeinerung auf einen repräsentativen SWR ist schwierig. Da bei künftigen 1000 MWe-SWR Rückhaltezeiten von etwa 40 Tagen vorgesehen sind, werden auch hier die Nuklide Kr-85 und Xe-133 80-90% der Aktivität stellen. Bei Rückhaltezeiten im Bereich von 20-30 Minuten überwiegt der Anteil der kurzlebigeren Edelgasnuklide (vgl. dazu Tabelle 6-13).

Da der Leckageterm der abgegebenen Aktivität beim SWR praktisch vernachlässigbar ist, kann das Kr-85/Xe-133-Verhältnis

Tabelle 6-12 Schätzungen verschiedener Autoren über die Edelgasabgaben eines 1000 MW_e-SWR

Autor bzw. KKW	Datum	Edelgasabgabe $\left[\frac{Ci}{a} \right]$			Lastfaktor	Bemerkung des Autors
		insgesamt	Kr-85	Xe-133		
Aurand, Ruf, Schikarski /122/	Sept. 71	60000	1200	60000	?	pess. Annahme; 14d Verzögerung; 2x300 \cong 1000 MW _e
Büker, Jansen, Schikarski /19/	März 73	58000	5250	52250	0,8	Maximalwerte; 3,3x300 MW _e \cong 1000 MW _e
Schikarski /52/	Febr. 72	23000			0,8	LWR; 3,3x300 \cong 1000 MW _e
USAEC /53/	Juli 73	6500	770	5000	0,8	52d Xe und 3d Kr Rückhaltezeit
Nichols /128/	Aug. 71	6000	3000	3000	?	45d Xe und 3d Kr Rückhaltezeit
Sütterlin /127/	Nov. 71	3930			0,8	40d Xe und 2,5d Kr Rückhaltezeit; dieser Wert braucht nicht überschritten werden
Händge, Schwarzer /126/	Nov. 71	3400			?	Mittelwert für LWR
KKW Philippsburg	Nov. 71	2700	757	1800	?	40d Xe und 2,5d Kr Rückhaltezeit
Schmitz, Sütterlin /16/	Nov. 71	1000			?	proport. der Leistung
Nichols /128/	Aug. 71	1000	3	1000	?	bei Kr-Abtrennung

Tabelle 6-13 Gemessene und errechnete Isotopenzusammensetzung der Edelgasabgabe verschiedener Siedewasserreaktoren

Bezeichnung der KKW Betriebsbeginn Literatur elektr. Leistung [MW] Rückhaltezeit angegebene Einheit	Dresden I 1959				Five M.Pt. 1969	KRB 1966						KKW 1972	KKB 1974	KKP 1974	allgemeiner SWR
	/11/ 23 min	/137/ 200	/19/ 0 min	/135/ 30 min	/115/ 500	0 min	17h Kr, 10d Xe	0 min	18h Kr, 9d Xe	0 min	27h Kr, 15d Xe	/17/ 640 38d	/17/ 770 40d	/16/ 864 40d	/53/ 1000 53d
	$\left[\frac{uCi}{s} \right]^a$	$\left[\frac{Ci}{a} \right]^b$	$\left[\frac{Ci}{a} \right]^c$	$\left[\frac{Ci}{a} \right]^d$	$\left[\frac{uCi}{s} \right]^d$	$\left[\frac{uCi}{s} \right]^e$	$\left[\frac{uCi}{s} \right]^e$	$\left[\frac{uCi}{s} \right]^f$	$\left[\frac{uCi}{s} \right]^f$	$\left[\frac{uCi}{s} \right]^g$	$\left[\frac{uCi}{s} \right]^g$	$\left[\frac{uCi}{s} \right]^h$	$\left[\frac{uCi}{s} \right]^h$	$\left[\frac{Ci}{a} \right]^i$	$\left[\frac{Ci}{a} \right]^k$
	MESSUNG											RECHNUNG			
Xe-131m												bis 430	3,75	112	85
133	510	10000	6000	67000	160	2100	710	6200	2300	2200	660	bis 7340	560	1790	5000
133m	14	280	200											0,0849	-
135	1250	25000	20000	136000	165	5100		17700			10200			0,275	370
135m				145000		4100		14100			15600			0,002	18
138	3000	40000		270000	75	15300		80000			50500			5,43	57
Kr-83m														0,659	2
85	0,14	2,8	2,2									bis 1980	23,8	757	770
85m	400	7900	6000	37000	38	1700	60	5000	300	2800	50			33,2	73
87	790	16000	10000	118000	130	2800		9000			4900				10
88	740	15000	10000	136000	110	4800	20	17100	180	10200	20			0,726	11
$\Sigma \left[\frac{Ci}{a} \right]^y$	165000	114000	52200		17000		20000		70000		18000	bis 240000	14500	2700	6500

(Buchstabenerklärung siehe nächste Seite)

zu Tabelle 6-13

- a) Mittelwerte aus 9 Messungen /14/ von Nov.67 bis Aug.68
- b) Werte für Lastfaktor 0,64 während 1968, berechnet aus Messungen in /14/
- c) Mittlere Jahresemission, berechnet aus Messung in /14/
- d) Messungen von 1970
- e) Messung am 8.5.1968 (0 min $\hat{=}$ vor der Verzögerungsanlage gemessen)
- f) Messung am 9.5.1969 (Brennelementschäden), (0 min $\hat{=}$ vor der Verzögerungsanlage gemessen)
- g) Messung am 15.5.1970 (0 min $\hat{=}$ vor der Verzögerungsanlage gemessen)
- h) aus Sicherheitsbericht
- i) berechnet aufgrund des Sicherheitsberichtes
- γ) eigene Rechnung mit Lastfaktor 0,8 bzw. Addition der Angaben in $\frac{C_i}{a}$
- k) ausgehend vom Gleichgewichtsmodell

der einzelnen Messungen aus Tab.6-13 gut auf eine Rückhaltezeit von 40d umgerechnet werden. Die Reaktorleistung spielt für das Verhältnis der Isotope keine Rolle. Tab.6-14 zeigt die auf eine Rückhaltezeit von 40d korrigierten Kr-85/Xe-133-Verhältnisse aus den Tab.6-12 und 6-13. Ein sinnvoller Mittelwert des Kr-85/Xe-133-Verhältnisses liegt bei 0,5.

Nimmt man an, daß nach 40 Tagen Rückhaltezeit die Kr-85- und Xe-133-Abgaberate eines 1000 MWe-SWR $4000 \cdot 0,9 = 3600 \left[\frac{Ci}{a} \right]$ beträgt, so errechnet sich daraus eine Aktivitätsabgabe von $2400 \frac{Ci}{a}$ Xe-133 und $1200 \frac{Ci}{a}$ Kr-85.

Tabelle 6-14 Verhältnis der Aktivität der Isotope Kr-85/Xe-133 in der Abluft verschiedener SWR (umgerechnet auf eine Rückhaltezeit von ≈ 40 Tagen)

Bezeichnung des KKW bzw. Autor	elektr. Leistung $\left[\frac{MWe}{\right]$	aus Tabelle Nr. Literatur	Kr-85/Xe-133
Nichols	1000	6-12/128/	1
USAEC	1000	6-13 /53/	0,09
KKW Würgassen	640	6-13 /17/	0,27
KKW Brunsbüttel	770	6-13 /17/	0,041
KKW Philippsburg	864	6-13 /16/	0,42
KKW Dresden I *	200	6-13a /11/	0,051
KKW Dresden I *	200	6-13b/137/	0,54
KKW Dresden I *	200	6-13c /19/	0,07

*aus Messung

Mit der von Schmitz und Sütterlin für das KKW Philippsburg durchgeführten Rechnung soll dieses Ergebnis verglichen werden. Abb.6-10 zeigt die nach dem Diffusionsmodell berechneten Abgaberraten des KKP. Da das Kühlmittel, wie bereits erwähnt, beim SWR nahezu vollständig von Spalteredelgasen gereinigt wird, fällt eine wesentlich größere Aktivität in der Abgasanlage an. Durch die Rückhaltung ist jedoch die gesamte Xe-133-Abgabe merklich kleiner als beim DWR, in dem das Xenon unverzögert zum Kamin gelangt. Bezüglich des Kr-85

ergibt sich beim SWR etwa die gleiche Abgaberate wie beim DWR.

Somit läßt sich die Edelgasabgaberate eines 1000 MWe-SWR mit 40 Tagen Rückhaltezeit aufteilen in

2400 Ci/a Xe-133

1200 Ci/a Kr-85

und 400 Ci/a andere Edelgase ($\approx 50\%$ Xe-135, $\approx 25\%$ Kr-85m, $\approx 20\%$ Xe-131m, $\approx 5\%$ Xe-133m, $\approx 1\%$ Kr-88)

Die Unterschiede zum DWR (S.62) in der Zusammensetzung der Nuklide ergeben sich aus den verschiedenen Leckagen, falls etwa gleiche Rückhaltezeiten erreicht werden. Die Gesamt-
abgabe entspricht ungefähr der von Druckwasserreaktoren.

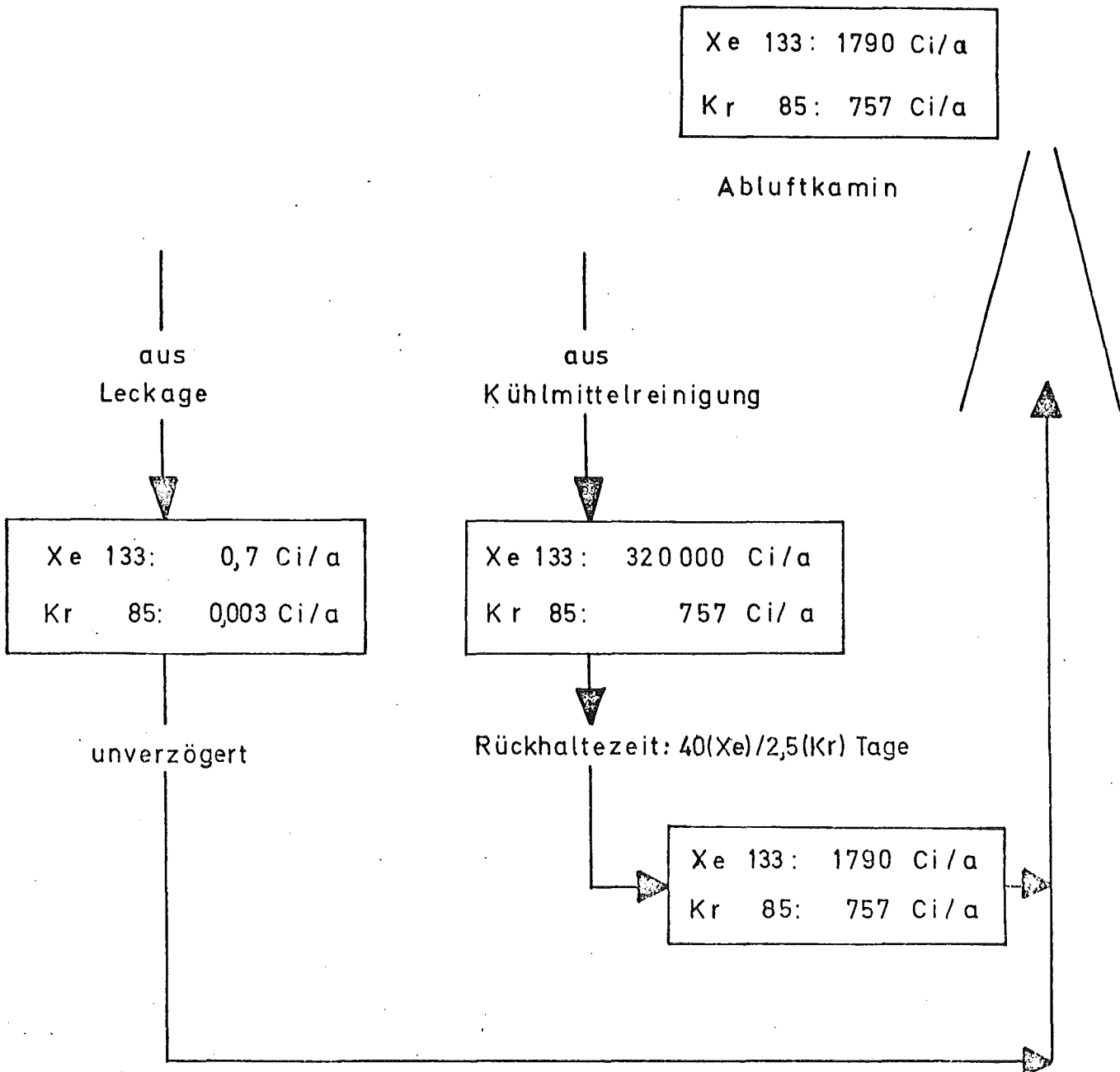
6.3.3. Gasgekühlte Reaktoren (GCR)

Die Klasse der GCR läßt sich nach ihrer geschichtlichen Entwicklung in die 3 Gruppen Magnox-Reaktor, Fortgeschrittener Gasgekühlter Reaktor (AGR) und Hochtemperaturreaktor (HTGR) aufteilen. In dieser Reihenfolge soll auch die Edelgasabgabe der GCR erläutert werden. Die Edelgase gelangen bei GCR - wenn überhaupt - aus den Brennelementen in das gasförmige Kühlmittel (CO_2 oder He bei 10-40 ata /102/), das in einer Bypassanlage kontinuierlich gereinigt wird. Dadurch stellt sich im Kühlmittel eine spezifische Gleichgewichtsaktivität ein.

Magnox-Reaktoren

Die älteste Gruppe der GCR sind die mit metallischem Uran als Brennstoff und mit CO_2 als Kühlmittel ausgestatteten Magnox- oder MKI-Reaktoren /138/. Wegen der versch. Kristallformen des Uranmetalls und da als Hüllmaterial die Magnesiumlegierung Magnox (Schmelzpunkt $\approx 650^\circ\text{C}$ /139/) verwendet wird, lassen sich nur Brennstofftemperaturen von ca. $570-640^\circ\text{C}$ erreichen /102,139/. Bei diesen Temperaturen findet weder bei Uranoxid (Abb.6-1) noch bei Uranmetall eine Freisetzung der Spalteredelgase Krypton und Xenon statt. Da der mittlere Endabbrand bei Magnox-Reaktoren nur etwa $4000 \frac{\text{Mwd}}{\text{t}}$ beträgt, scheidet auch eine erhöhte Freisetzung durch Abbrandeffekte aus.

Abb.6-10 Aufgrund des Sicherheitsberichtes berechnete Isotopenzusammensetzung der Edelgasabgabe beim SWR Philippsburg, 864 MWe (nach /16/)



Nach Pepper und Carter /140/ wird bei Messungen der Edelgasabgabe einzelner Anlagen nur das Isotop Ar-41, ein Aktivierungsisotop, gemessen. Krypton und Xenon werden nicht gemessen. Zieht man noch die Dichtheit der Brennelementhülle in Betracht, so kann zusammen mit obigen Überlegungen angenommen werden, daß die Kr- und Xe-Abgaberate am Kamin der Magnox-Reaktoren gleich Null ist. KKW mit Magnox-Reaktoren werden wegen ihrer mangelnden Wirtschaftlichkeit seit 1971 nicht mehr gebaut /9/.

Advanced Gas Cooled Reactor (AGR)

In Fortsetzung der Magnox-Linie ist der AGR oder MKII-Reaktor entwickelt worden. Als Kühlmittel wird wieder CO_2 verwendet. Die Brennelemente bestehen aus leicht angereichertem UO_2 (1,6-2%) mit Stahlhülle. Obwohl die Schmelztemperatur von Uranoxid bei 2800°C liegt, läßt die Verwendung von Stahlhüllen und die Gefahr der Boudouar-Reaktion des CO_2 mit dem Graphit nur Brennstoffzentraltemperaturen von $\approx 1300^\circ\text{C}$ zu. Nach Wolff /85/ wird bei dieser Temperatur nur 1% des Spaltgasinventars aus der UO_2 -Matrix frei (siehe Kap.6.2.1.). Wegen des thermischen Wirkungsgrades von $\approx 41\%$ ist das auf die gleiche el. Leistung bezogene Spaltgasinventar beim AGR ungefähr $\frac{1}{3}$ niedriger als beim LWR. So läßt sich berechnen, daß sich in der Hülle nur ein max. Spaltgasdruck von ca. 24 ata nach $19000 \frac{\text{MWd}}{\text{t}}$ Abbrand einstellt /141/. Da das Kühlgas 40 ata Druck besitzt, wird die Hülle durch die Spaltgase nicht belastet. Im Normalbetrieb wird beim AGR von dichten Brennelementen ausgegangen. Aus einer Anzahl von Experimenten, die über das Zeitstandsverhalten des Hüllenmaterials durchgeführt wurden, ist zu schließen, daß keine Beschädigung des Materials innerhalb der Einsatzzeit zu erwarten ist. Im AGR Windscale wurde 3 Jahre das Verhalten von 33000 Brennstäben verfolgt. Keiner der Stäbe zeigte während dieser Zeit Schäden /141/. Defekte Brennelemente könnten beim AGR während des normalen Betriebes sofort ausgetauscht werden /142/.

Ein zusätzlicher Rückhaltefaktor beim AGR ist der geschlossene Kühlkreislauf. Da für Edelgase keine zusätzliche Verzögerung oder Rückhaltezeit vor der Kaminabgabe vorgesehen ist, können bei einer evtl. Leckage die freigesetzten Edelgase ständig umgewälzt und beim kontrollierten Abblasen, dessen Zeitpunkt in der Hand des Betreibers liegt, an die Umgebung abgegeben werden /143/.

Aus diesen Gründen wird deutlich, daß auch der AGR im Normalbetrieb keine Krypton- und Xenonisotope abgibt. Bezüglich der Spaltproduktfreisetzung bei überhöhten Hüllentemperaturen siehe Hillary und Taylor /144/.

KKW mit AGR werden nach Bonka /9/ wegen der höheren Kosten gegenüber Hochtemperaturreaktoren ab 1978 nicht mehr gebaut werden.

Hochtemperaturreaktor (HTGR)

Die konsequente Fortsetzung der Linie Magnox-AGR stellen die heliumgekühlten Hochtemperatur- oder MKIII-Reaktoren dar.

In der Form von coated particles wird hochangereichertes UO_2 oder UC_2 als Brennstoff verwendet, dem als Brutstoff Thorium zugesetzt wird. Über das Rückhaltevermögen der coated particles siehe Kap.6.2.4.

Zur Zeit sind 3 Versuchsanlagen in Betrieb: AVR in Deutschland, Dragon in England und Peach-Bottom in USA. Jeweils eine 300 MWe-Prototypanlage ist in der BRD (THTR/300) im Bau und wurde in den USA (Fort St. Vrain) Anfang 1973 übergeben /145/. 1971 wurden in den USA die ersten kommerziellen HTGR bestellt (Wilmington 2 · 1100 MWe und Delmarva 2 · 770 MWe) /146/. 1972 bestellte Southern California zwei HTGR-Blöcke zu je 770 MWe /147/ und nahm gleichzeitig die Option für zwei weitere 2 · 770 MWe HTGR /145/. Mit dem Betriebsbeginn der kommerziellen KKW wird 1979 bzw. 1981 gerechnet.

Wegen der relativ geringen Erfahrung mit HTGR's wird zunächst auf die Edelgasabgaben der Versuchsanlagen eingegangen und dann mit Hilfe der Auslegungsdaten des THTR/300 die Edelgasaktivitätsabgabe eines 1000 MWe-HTGR abgeschätzt.

HTGR-Versuchsanlagen

Die Versuchsreaktoren Dragon und Peach Bottom sind noch mit Spülkreisläufen versehen, welche die durch den Graphit der Brennstäbe diffundierenden Spaltprodukte unmittelbar an den Brennelementen absaugen. Da im Peach Bottom nur coated particles mit einer PyC-Schicht verwendet wurden, kann durch die weitere Entwicklung des HTGR-Brennstoffes ein eigenes Spülsystem in Zukunft bei großen HTGR's entfallen. Beim AVR war ein solches Spülsystem wegen der Kugelform und Anordnung der Brennelemente grundsätzlich nicht möglich /91/.

Die im Spülkreislauf bzw. im Primärkühlmittel anfallenden Edelgase werden bei allen 3 Anlagen in Kohlefiltern, die mit flüssigem Stickstoff gekühlt sind, zurückgehalten /91, 148, 149, 150/. Durch wechselweise Adsorption an zwei Filtern ergibt sich beim AVR eine Rückhaltezeit von mindestens 83 Tagen /148/. Die Rückhaltezeiten der Anlagen in England und den USA sind nicht bekannt, doch wurde durch Messungen am Peach Bottom Reaktor nachgewiesen, daß die Aktivität aus der Abgasanlage zu 99% von Kr-85 ausgeht. Vom Isotop Xe-133 konnten nur Spuren nachgewiesen werden /150/. Für den AVR gibt Holm /151/ die Art und Herkunft der mit der Abluft abgegebenen Aktivitäten wie folgt an:

aus der Gasreinigungsanlage:	Kr-85	18-12%
	Xe-133	64-80%
Leckagen:	Kr-85m	} 17- 8%
	Kr-87	
	Kr-88	
	Xe-133	
	Xe-135	

Da diese Angaben der Reaktorbetreiber wiederum weder hinsichtlich der genannten Isotope noch hinsichtlich der Benennung konsistent sind, wurden in Tabelle 6-15 die jährlichen Edelgasabgaberraten von Peach Bottom und AVR zu-

sammengefaßt und in Tabelle 6-16 auf die jeweils produzierte el. Energie bezogen. Vom 20 MWth-Reaktorexperiment Dragon in England waren keine Abgaberaten verfügbar. Sie dürften jedoch wegen der vielen durchgeführten Experimente /152/ nicht sehr typisch sein.

Auffallend ist in Tabelle 6-16 der Unterschied in der bezogenen Aktivitätsabgabe beider Reaktoren. Da beim Peach Bottom die aus der Abgasanlage kommende Aktivität ausschließlich auf Kr-85 zurückgeführt wird, ist die Rückhaltezeit sicher länger als beim AVR. Damit bleibt auf Grund der unterschiedlichen bezogenen Aktivitätsabgaberate nur der Schluß, daß bei Peach Bottom die spezifische Kühlmittelaktivität und/oder die Leckagen größer sind. Das Phänomen der Abnahme der spezifischen Kühlgasaktivität beim AVR auf $\frac{1}{6}$ der Anfangsaktivität im Jahre 1968 ließ sich bis heute nicht klären /149,151/.

Die bezogene Aktivitätsabgaberate der beiden HTGR-Versuchsreaktoren liegt jedoch mit einem Mittelwert von $325 \frac{\mu\text{Ci}}{\text{MWh}}$ deutlich unter den Werten $830 \frac{\mu\text{Ci}}{\text{MWh}}$ für DWR und $570 \frac{\mu\text{Ci}}{\text{MWh}}$ für SWR.

HTGR-Prototypanlagen

Mit Hilfe der Auslegungsdaten des THTR 300 /69,91,154/ und den Angaben über den HTGR Fort St. Vrain (330 MWe) /91,155/ wird die Edelgasaktivitätsabgabe eines Leistungshochtemperaturreaktors abgeschätzt:

Mit dem vom Hersteller garantierten $\frac{R}{B}$ -Wert von $5 \cdot 10^{-4}$ für Xe-133 ergibt sich für den THTR 300 eine Auslegungsaktivität von 67000 Ci im Kühlgas. Etwa die Hälfte dieser Aktivität befindet sich stationär im Kühlgas, während die andere Hälfte über eine im Bypass betriebene Gasreinigungsanlage dem Kühlgas entzogen wird. Die Auslegungsaktivität liegt um einen Faktor 10 bis 12 über der aus intakten Brennelementen erwarteten Aktivität. Wie in Kap.6.2.4. näher erläutert, lassen sich heute Brennelemente herstellen mit R/B-Werten für Xe-133 von kleiner als $5 \cdot 10^{-5}$.

Tabelle 6-15 Jährliche Edelgasabgaberraten der HTGR-Versuchsreaktoren AVR und Peach Bottom /91,112,116,119,150,153/

Bezeichnung des KKW	Leistung		Betriebsbeginn	Edelgasabgabe [$\frac{\text{Ci}}{\text{a}}$]					
	[MWth]	[MWe]		1967	1968	1969	1970	1971	1972
Peach Bottom 1	115	40	1967	9,4	108	71,5	9,9	122	
AVR	46	15	1968			17,4	31	27	29,8

Tabelle 6-16 Edelgasaktivitätsabgabe von HTGR-Versuchsreaktoren, bezogen auf die produzierte elektrische Energie /19,112,116,119,153/

Bezeichnung des KKW	Zeitraum	abgegebene Aktivität [Ci]	prod. el. Energie $\cdot 10^5$ [MWhe]	bezogene Aktivitätsabgabe [$\mu\text{Ci}/\text{MWhe}$]
Peach Bottom	1967-68	117	3,1	377
	1968	108	1,5	727
	1969	71,5	1,5	476
	1970	9,9	(a)	
	1971	122	2,2	565
AVR	1969	17,4	1,16	150
	1970	31	2,1	148
	1971	27	3,08	88
	1972	29,8	4,07	73

(a) nicht in Betrieb

Die Aufteilung der Aktivität auf die Nuklide des Krypton und Xenon ist Tabelle 6-17 zu entnehmen.

Tabelle 6-17 Aktivität der Edelgase im Primärsystem und im Kühlgas des THTR 300 /69/

Isotop	Gesamtaktivität außerh.d.BE		Kühlgas		Gasreinigungsanlage
	von in-takten Brennelementen [Ci]	Auslegungsaktivität [Ci]	von in-takten Brennelementen [Ci]	Auslegungsaktivität [Ci]	Auslegungsaktivität [Ci]
Kr-83m	137	1720	116	1450	270
85m	735	9180	517	6460	2720
85	765	9580	0,084	1,05	9580
87	477	5970	426	5320	650
88	1343	16820	1058	13240	3580
89	105	1310	104	1300	10
Xe-131m	3	40	0,11	1,4	39
133m	30	380	4,8	60,0	320
133	1320	16480	100	1250	15230
135m	68	850	66	825	25
135	149	1860	79	987	873
137	113	1420	113	1415	5
138	111	1390	109	1360	30
Gesamtaktivität	5360	67000	≈ 2690	33670	33330

In der Gasreinigungsanlage wird die Aktivität der Edelgase durch Tieftemperaturadsorption an Aktivkohle zurückgehalten und abgebaut. Eine Rückhaltezeit von mindestens 63 Tagen ist gewährleistet. Durch die etwa alle 3000 Stunden stattfindende Regeneration der Kohlebetten (s.Kap.10.1.2.) werden im Jahr bei einem Auslegungswert der Gasreinigungsanlage von 33000 Ci nach dem Sicherheitsbericht /154/ maximal

3500 Ci/a Kr-85
 1500 Ci/a Xe-133
 und 90 Ci/a Xe-131m

an die Atmosphäre abgegeben. Mit der Annahme, daß der Erwartungswert um einen Faktor 10 kleiner ist als der Auslegungswert, ergibt sich eine jährliche realistische Edelgasabgabe aus der Gasreinigung zu $500 \frac{Ci}{a}$ im Normalbetrieb. Da zudem beim THTR 300 noch der Einbau einer Anlage zum Nachweis defekter Brennelemente diskutiert wird, erscheint es durchaus gerechtfertigt, die Einhaltung des R/B-Wertes von Xe-133 mit $5 \cdot 10^{-5}$ anzunehmen. Eine Pilotanlage zum Nachweis defekter Brennelementkugeln ist in den Heißen Zellen in Jülich bereits in Betrieb /105/.

Die kontinuierlich freigesetzte Aktivität aus nicht zu vermeidenden Leckagen gelangt auch beim THTR 300 relativ unverzögert zum Kamin. Die Leckagen werden maximal zu 1 0/00 pro Tag angenommen. Ausgehend von einer Kühlgasaktivität von 67000 Ci und einer Leckageverzögerung bis zum Kaminaustritt von 2 Stunden wird im Sicherheitsbericht /154/ eine maximale Abgaberate von $35 \frac{Ci}{d}$ aus Leckage berechnet. Tabelle 6-18 zeigt die Aufteilung dieser Aktivität auf die einzelnen Edelgasnuklide.

Tabelle 6-18 Edelgasabgabe aus Leckage beim THTR 300
(Kühlgasaktivität 67000 Ci) /69/

Kr-83m	$5,8 \cdot 10^{-2}$	$\left[\frac{Ci}{h} \right]$
85m	0,4	
85	$8,6 \cdot 10^{-5}$	
87	0,14	
88	0,67	
89	$6 \cdot 10^{-13}$	
90	-	
Xe-131m	$1,2 \cdot 10^{-4}$	
133m	$5 \cdot 10^{-3}$	
133	0,1	
135m	$2,7 \cdot 10^{-4}$	
135	$7,3 \cdot 10^{-2}$	
137	$4 \cdot 10^{-11}$	
138	$4,2 \cdot 10^{-4}$	
	$\Sigma 1,447$	$\left[\frac{Ci}{h} \right] \cong 35 \left[\frac{Ci}{d} \right]$

Unter der Voraussetzung intakter Brennelemente ($R/B = 5 \cdot 10^{-5}$ für Xe-133) kann, wie Tabelle 6-17 zeigt, eine spezifische Kühlgasaktivität von 2700 Ci angenommen werden. Damit ergibt sich ein Erwartungswert der Abgabe aus Leckage von $1,5 \frac{Ci}{d}$, wobei alleine 45% der Aktivität durch Kr-88 und 27% durch Kr-85m verursacht werden, während Xe-133 nur etwa 7% der Aktivität liefert. Bei einem Lastfaktor von 0,8 entsteht durch die Leckage eine jährliche Aktivitätsabgabe von etwa 450 Ci.

Aus dem Anteil der Gasreinigungsanlage von 500 Ci und dem Anteil aus Leckage von 450 Ci wird für den THTR 300 hier ein Erwartungswert der jährlichen Abgaberate von 950 Ci angenommen (Lastfaktor 0,8). Diese jährliche Abgaberate teilt sich nach obigem:

zu 400 Ci auf Kr-85
zu 200 Ci auf Xe-133
zu 200 Ci auf Kr-88

und zu 150 Ci auf andere Edelgasnuklide auf.

Der amerikanische HTGR-Prototyp Fort St. Vrain mit 330 MWe Leistung ist für eine Edelgasabgabe von $3500 \frac{Ci}{a}$ ausgelegt /155/. Man erwartet jedoch eine Abgabe von etwa $360 \frac{Ci}{a}$, also $\frac{1}{10}$ des Auslegungswertes (nach Angaben von Gulf General Atomic "mostly Kr-85" /155/).

1000 MWe-HTGR

Für einen 1100 MWe-HTGR besteht bei Gulf General Atomic der Auslegungswert von $10400 \frac{Ci}{a}$ /155/. Man hofft jedoch, einen Wert von $1200 \frac{Ci}{a}$ zu erreichen, was wiederum um einen Faktor 10 unter dem Auslegungswert liegt und durch Verdreifachung des Erwartungswertes für einen 330 MW-HTGR entstanden ist.

Mit Hilfe der obigen Überlegungen für den THTR 300 läßt sich jedoch eine detailliertere Rechnung durchführen:

Für einen 1000 MW_e-HTGR wird sich die Abgabe aus der Gasreinigungsanlage proportional der Leistung verdreifachen, während die Leckage auch bei einem großen Reaktor nicht wesentlich über 1 ‰ pro Tag liegen wird. Für den Leckageterm wird aufgrund der höheren Kühlmittelaktivität lediglich eine Verdoppelung gegenüber 300 MW_e angenommen.

Die jährliche Edelgasabgabe eines 1000 MW_e-HTGR ergibt sich damit bei einem Lastfaktor von 0,8 zu 2400 $\frac{\text{Ci}}{\text{a}}$. Das entspricht einer bezogenen Aktivitätsabgaberate von 340 $\frac{\mu\text{Ci}}{\text{MW}_{\text{eh}}}$. Die Aufteilung der Emission von 2400 $\frac{\text{Ci}}{\text{a}}$ auf die Nuklide des Krypton und Xenon wird nach dem Modell des THTR 300 wie folgt angenommen:

1300	Ci	Kr-85
450	Ci	Xe-133
400	Ci	Kr-88
und 250	Ci	andere Edelgasisotope

Die Größenordnung dieser hier angenommenen jährlichen Edelgasabgabe eines 1000 MW_e-HTGR wird durch die Schätzungen von Vinck /18/ und Büker /19/ bestätigt (siehe Tab. 6-19). Beide gehen jedoch von einem linearen Zusammenhang Abgabe-Leistung aus, was bei einem derart großen Leckageterm sicher nur als Näherung zu verstehen ist. Die Angaben über die Nuklidzusammensetzung und Rückhaltezeiten sind, wenn überhaupt vorhanden, sehr ungenau. In Tab.6-19 wurden die wenigen vorhandenen Schätzungen der Edelgasabgabe eines 1000 MW_e-HTGR zusammengestellt.

Tabelle 6-19 Schätzungen verschiedener Autoren über die Edelgasabgabe eines
1000 MWe-HTGR

Autor bzw. KKW	Datum	Edelgasabgabe $\left[\frac{\text{Ci}}{\text{a}} \right]$	Nuklidzusammensetzung
Büker, Jansen, Schikarski /19/	März 73	3250 ^(a)	8% Kr-85, 93% Xe-133
Vinck /18/	Dez. 72	3000 ^(a)	überwiegend Kr-85
Gulf General Atomic /155/	Febr.70	1200 ^(b)	überwiegend Kr-85
diese Arbeit	Sept.73	2400 ^(b)	55% Kr-85, 19% Xe-133, 17% Kr-88

^(a) Auslegungswerte

^(b) Erwartungswerte

6.3.4. Natriumgekühlte Schnelle Brutreaktoren (LMFBR)

Die momentane Konzeption eines LMFBR sieht als Brennstoff eine Mischung von etwa 80% Uran- und 20% Plutoniumoxid oder Carbid vor, mit Natrium als Kühlmittel und Argon als Schutzgas über dem Natriumspiegel im Core /156/. Die Edelgasfreisetzung, der Aktivitätsfluß im Reaktor und die voraussichtliche Edelgasemission eines LMFBR werden im folgenden unter Herausstellung der Unterschiede zum LWR erläutert und abgeschätzt.

Edelgasfreisetzung

Da Schnelle Brüter in einem Spaltratenbereich arbeiten, in dem die Edelgasabgabe mit wachsender Spaltrate zunimmt (vgl. Abb. 6-2, Kap.6.2.1.) und Brennstoffzentraltemperaturen von ≈ 2500 °C erreicht werden, ist die Edelgasfreisetzung aus dem Brennstoff höher als bei LWR. Genaue R/B-Werte liegen nicht vor, jedoch können bis zu 90% der erzeugten Edelgase aus dem Brennstoff freigesetzt werden. Zudem wird beim LMFBR durch wesentlich höhere Abbrände ($70000-100000 \frac{\text{MWd}}{\text{t}}$) die Edelgasfreisetzung durch Abbrandeffekte erleichtert /157/. Wie Tabelle 6-1 zeigt, wird allerdings bei der schnellen Spaltung von Pu-239 nur etwa halb soviel Edelgasaktivität erzeugt wie bei LWR.

Um die Belastung der Brennelementhülle durch den Spaltgasdruck niedrig zu halten, wird beim SNR 300 der Spaltgassammelraum so dimensioniert, daß der Spaltgasdruck maximal 64 atm erreicht /158/. Die Verlängerung der Brennelemente erlaubt zwar eine Vergrößerung des Volumens innerhalb der Hülle, ist aber durch den im Kühlmittel entstehenden Druckverlust begrenzt.

Keilholtz und Battle /157/ geben eine Übersicht über die Untersuchungen und Experimente zur Entwicklung von belüfteten Brennelementen. Dabei zeichnen sich zwei Lösungen ab:

- das vented-to-plenum Konzept, bei dem ein großer Spaltgassammelraum über oder unter den Brennelementen

außerhalb des Cores vorgesehen ist; und

- das vented-to-fuel Konzept, das sich noch im Entwicklungsstadium befindet. Hier sollen die kurzlebigen Spaltedelgase so lange im Brennelement zurückgehalten werden, bis sie zerfallen sind; die langlebigen Isotope werden anschließend kontrolliert an das Kühlmittel abgegeben /73,159/.

Durch diese Maßnahmen wird verhindert, daß sich ein unverhältnismäßig hoher Spaltgasdruck gegenüber dem Druck des Natriums von ≈ 4 atm aufbaut. Angaben über die Dichtheit der Brennelemente werden nicht gemacht. Im Sicherheitsbericht des SNR 300 /158/ wird von 1% defekter Brennelemente ausgegangen, was bei dem vorliegenden Druckunterschied zweifellos als obere Grenze anzusehen ist, wenn man berücksichtigt, daß beim SWR der Druckunterschied etwa 130 atm beträgt.

Während der Prozentsatz der defekten Brennelemente gleich groß angenommen wird, treten die wesentlichen Unterschiede zum LWR erst nach Durchdringung der ersten Spaltproduktbarriere /160/ auf:

- die aus den Brennelementen austretenden Spaltgase treffen auf etwa 400 °C heißes Natrium
- Krypton und Xenon sammeln sich, wenn sie durch das Natrium gewandert sind, zunächst im mit Argon gefüllten Schutzgasraum über dem Natrium-Spiegel im Core.

Aufgrund der geringen Löslichkeit von Krypton und Xenon in heißem Natrium /161/ gelangen die ins Natrium freigesetzten Edelgase fast vollständig in den Schutzgasraum. Die bei Sättigung im Natrium zurückgehaltenen Edelgasmengen sind etwa um den Faktor 10^{-5} geringer gegenüber den im Schutzgasraum freigesetzten Mengen /3,122,157,161,162/.

Aktivitätsfluß

Am Beispiel des SNR 300 /158/ sei der Aktivitätsfluß bis zur Abgabe am Kamin erläutert:

Durch das im Bypass betriebene Schutzgasreinigungssystem wird ein Teil der kurzlebigen Edelgasisotope ständig aus der Schutzgasatmosphäre entfernt, um die Strahlenbelastung in den angrenzenden Räumen und die Aktivitätsabgabe am Kamin in zulässigen Grenzen zu halten. Im Schutzgasreinigungssystem werden Krypton und Xenon vom Argon-Trägergasstrom durch selektive Adsorption an Aktivkohle bei Raumtemperatur und Atmosphärendruck abgetrennt. Bei dem vorgesehenen Volumenstrom von $40 \frac{\text{Nm}^3}{\text{h}}$ ergibt sich eine Rückhaltezeit von ≈ 24 h für Xenon und ≈ 2 h für Krypton. Durch dieses Verfahren stellt sich bis auf Kr-85 für alle Edelgasisotope eine spezifische Gleichgewichtsaktivität im Schutzgas ein.

Über die Abgasanlage des SNR 300 wird ein kleinerer Teilstrom der Primärschutzgassysteme gereinigt und über den Kamin abgegeben. Dadurch wird eine Nachspeisung von nicht kontaminiertem Argon ins Schutzgassystem möglich. In der Abgasanlage wird durch selektive Adsorption an Aktivkohle bei 5-13 atü eine Rückhaltezeit für Xenon von 50 Tagen und für Krypton von 2 Tagen vor der Abgabe über den Kamin erreicht. Tabelle 6-20 gibt die Nuklidzusammensetzung des Aktivitätsanteils aus der Abgasanlage an.

Obwohl bei LMFBR besonders dicht geschweißt wird und fast ausschließlich sperrgasbeaufschlagte Dichtungen verwendet werden, läßt sich eine Leckage nicht vermeiden. Die Größe der einzelnen Leckagen ist dem Sicherheitsbericht /158/ zu entnehmen; da die gesamte Edelgasaktivität aus Leckagen unverzögert zusammen mit der Abluft aus der Abgasanlage über den Kamin abgegeben wird, wird in Tabelle 6-20 lediglich die Nuklidzusammensetzung der Gesamtaktivität aus Leckage angegeben.

Tabelle 6-20 Nuklidzusammensetzung der maximalen Edelgasabgaberate des SNR 300 bei 1% defekter Brennelemente und nach 1 Jahr Vollastbetrieb /nach 158/

Nuklid	Aktivität aus der Abgasanlage $\left[\frac{Ci}{a} \right]$	Aktivität aus Leckage $\left[\frac{Ci}{a} \right]$	Abgaberate am Kamin $\left[\frac{Ci}{a} \right]$
Kr-85m	-	27	27
Kr-85	390	-	390
Kr-88	-	21	21
Xe-131m	1400	150	1500
Xe-133m	-	-	-
Xe-133	26000	34000	60000
Xe-135	-	2100	2100
Summe	27800	36300	64000

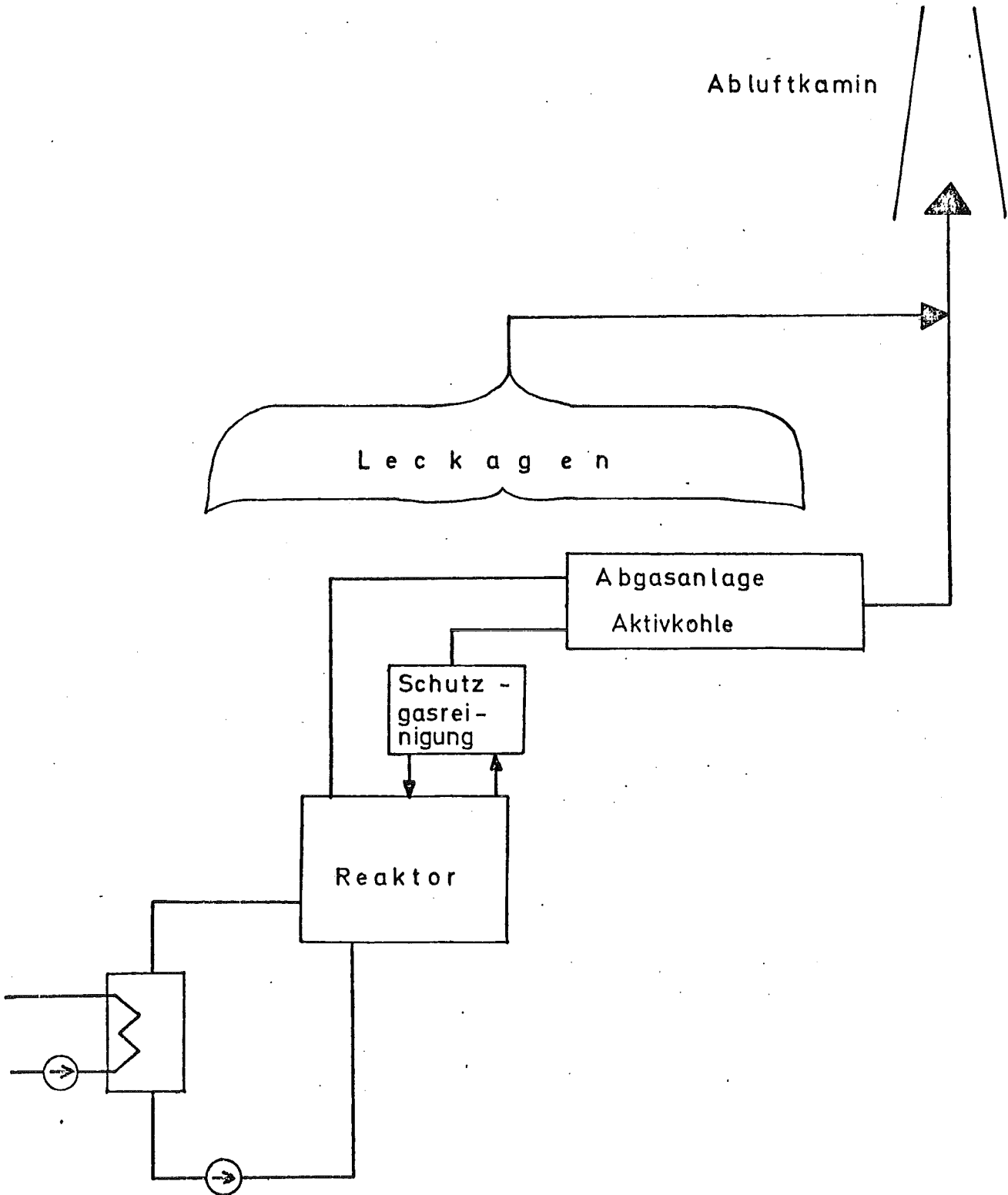
Abb.6-11 zeigt das vereinfachte Aktivitätsfließschema eines LMFBR.

Abgaberate eines 1000 MW_e-LMFBR

Mit den im Sicherheitsbericht des SNR 300 /158/ gemachten Angaben über den Abgasstrom kann angenommen werden, daß der Erwartungswert der Edelgasabgabe etwa um einen Faktor 20 unter dem in Tabelle 6-20 wiedergegebenen maximalen Auslegungswert liegt. Berücksichtigt man dazu noch einen Lastfaktor von 0,8, so ergibt sich ein Erwartungswert der Aktivität aus der Abgasanlage von $1100 \frac{Ci}{a}$ und aus Leckage von $1450 \frac{Ci}{a}$.

Wird in erster Näherung für die Extrapolation auf große Anlagen wiederum Leistungsproportionalität der Aktivität aus der Abgasanlage und eine nicht leistungsproportionale Verdoppelung des Leckageterms angenommen, so errechnet sich der Erwartungswert der Edelgasabgaberate eines 1000 MW_e-LMFBR bei einem Lastfaktor von 0,8 zu $6200 \frac{Ci}{a}$.

Abb.6-11 Aktivitätsfließschema eines natriumgekühlten Schnellen Brütlers



In der Studie von Bükler, Jansen u.a. /19/ werden die Auslegungsdaten der Emissionen von LMFBR mit $2,85 \frac{\mu\text{Ci}}{\text{KWh}}$ Xe-133 und mit $0,018 \frac{\mu\text{Ci}}{\text{KWh}}$ Kr-85 angegeben. Bei linearer Extrapolation wäre ein 1000 MW-LMFBR für die Abgabe von $20000 \frac{\text{Ci}}{\text{a}}$ Xe-133 und $130 \frac{\text{Ci}}{\text{a}}$ Kr-85 ausgelegt.

Nach dem von Vinck /18/ aus dem USAEC-Bericht /163/ übernommenen Wert wird die Edelgasabgabe eines LMFBR zu $3 \frac{\text{Ci}}{\text{aMWe}}$ erwartet, woraus sich die Abgabe eines 1000 MW-LMFBR zu $3000 \frac{\text{Ci}}{\text{a}}$ errechnet ("im wesentlichen Kr-85").

Auch nach Schikarski /52/ wird die Edelgasabgabe eines LMFBR über die Abgasanlage in dieser Größenordnung liegen und der eines LWR mit geschlossenem Primärkreis, also einem DWR entsprechen.

Da aufgrund der Spaltausbeuten (vgl. Tab. 6-1) die Edelgasproduktion beim LMFBR keinesfalls größer als beim LWR ist und nicht erwartet wird, daß die Schutzgasleckagen beim LMFBR größer sind, wird in dieser Arbeit die Edelgasabgabe eines 1000 MW_e -LMFBR bei ≈ 50 Tagen Rückhaltezeit zu $5000 \frac{\text{Ci}}{\text{a}}$ angenommen. Dieser Wert entspricht einer bezogenen Aktivitätsabgaberate von $830 \frac{\mu\text{Ci}}{\text{MWhe}}$.

Die Aufteilung der jährlichen Aktivitätsabgabe von $5000 \frac{\text{Ci}}{\text{a}}$ wird auf die einzelnen Nuklide analog Tabelle 6-20 zu

4200	$\frac{\text{Ci}}{\text{a}}$	Xe-133
350	$\frac{\text{Ci}}{\text{a}}$	Kr-85
250	$\frac{\text{Ci}}{\text{a}}$	Xe-135
200	$\frac{\text{Ci}}{\text{a}}$	Xe-131m

angenommen.

7. Krypton und Xenon aus Wiederaufarbeitungsanlagen (WAA)

Die während des normalen KKW-Betriebes zu 99,9% im Brennelement zurückgehaltenen Edelgasisotope werden bei der Wiederaufarbeitung des Brennstoffs freigesetzt und bei den bisherigen Anlagen zur Zeit noch vollständig an die Atmosphäre abgegeben /131/. Der Aktivitätsfluß bei der Aufarbeitung von Brennstoff wird im folgenden für umhüllte stabförmige Brennelemente und für coated particles dargelegt. Anschließend wird die Edelgasabgabe aus WAA abgeschätzt und einige gemessene Abgaberaten angegeben.

7.1. Aktivitätsfluß

7.1.1. LWR- und LMFBR-Brennstoff

Bei dem heute angewandten Verfahren werden nach dem Zerlegen der Brennelemente in die einzelnen Brennstäbe letztere in der Eingangsstufe der WAA zerschnitten oder zerhackt. Dabei wird nur ein relativ kleiner Anteil der Edelgase aus dem LWR-Brennstoff frei, etwa 1% /164,165/ bis 5% /166/ des Edelgasgehaltes. Nach Beaujean u.a. /165/ kann dieser Teil der Gesamtradioaktivität evtl. auch in Zukunft ohne Rückhaltezeit an die Atmosphäre abgegeben werden.

Da sich bei LMFBR während des Betriebes bis zu 90% der gebildeten Edelgase im Spaltgasraum ansammeln, erscheint es bei diesen Brennelementen grundsätzlich angebracht, das Gas schon vor dem Zerteilen der Brennstäbe abzusaugen und der Abgasanlage zuzuführen, um eine weitere Ausbreitung zu verhindern.

Nach dem Zerteilen der Brennstäbe ist in geplanten fortschrittlichen WAA die sog. Voloxidation vorgesehen - ein Prozeßschritt, in dem die zerkleinerten Brennelemente etwa 4 Stunden lang bei 500 °C mit Sauerstoff aufoxidiert werden, um das elementare Tritium nach katalytischer Oxidation zu

HTO abzutrennen /128,167,168/. Das Verfahren der Voloxidation befindet sich noch in der Entwicklung.

Als nächster Schritt folgt das Auflösen der Brennelementstücke in Salpetersäure. Die 300 $\frac{t}{a}$ -Anlage der Nuclear Fuel Service (NFS) in den USA benötigt zum Auflösen einer Tonne Uran etwa 4 Stunden /169/ (Tabelle 7-4 gibt eine Zusammenstellung der WAA der Welt). Derjenige Teil der Edelgase, der weder beim Zerteilen noch bei einer in Zukunft eingesetzten Voloxidation frei wird, wird beim Auflösen vollständig innerhalb kurzer Zeit freigesetzt. Bei NFS wurde 10 Minuten nach Beginn der Auflösung das Maximum der Freisetzungsrates und nach 3 bis 4 Stunden das Ende der Edelgasfreisetzung gemessen /164,170/. Eurochemic gibt eine vollständige Freisetzung aus metall. Uran nach ca. $3 \frac{1}{2}$ Stunden an /171/. In der WAA bei Trombay in Indien wurde das Maximum der Edelgasfreisetzung $2 \frac{1}{2}$ Stunden nach Beginn der Auflösung festgestellt /172/. Für die WAK wird als typischer Wert für das Maximum der Edelgaskonzentration nach Beginn der Auflösung 1 Stunde angegeben. Nach 6 Stunden ist die Konzentration wieder auf dem Niveau des Untergrundes /173/.

Somit wird in der WAA das gesamte mit dem Brennstoff eingebrachte Edelgas frei und in der gegenwärtigen Praxis mit den Auflöserabgasen über den Schornstein abgegeben. Die gemessenen Kr-85-Abgaberaten von NFS im Jahre 1971 stimmen z.B. gut mit der Annahme überein, daß 100% des eingebrachten Kr-85 über den Kamin abgegeben wurden.

Verfahren, die es ermöglichen, das langlebige Isotop Kr-85 zusammen mit den anderen evtl. noch vorhandenen Edelgasisotopen aus dem Löseabgas zu entfernen, sind in der Entwicklung und werden in Kap.10.1. beschrieben und bewertet.

7.1.2. HTGR-Brennstoff

Die für einen HTGR konzipierten stab- oder kugelförmigen Brennelemente stellen für die Wiederaufarbeitung in zweierlei Hinsicht eine Besonderheit dar. Zum einen geht ein erheblicher Anteil des Moderatorgraphits in die eigentliche Aufarbeitung ein und zum anderen sind die Umhüllungen der coated particles aus Pyrokohlenstoff oder Siliziumkarbid sehr widerstandsfähig /174/.

Die erste Stufe bei der Wiederaufarbeitung von HTGR-Brennelementen besteht daher im Verbrennen des Moderatorgraphits. Gleich, ob es sich dabei um zerkleinerte stabförmige Brennelemente, wie bei amerikanischen Anlagen, oder um Kugelbrennelemente handelt, werden sie in einem Schacht- oder Wirbelschichtofen mit Sauerstoff verbrannt. Bei Temperaturen um 800 °C wird dadurch der Matrixgraphit entfernt und bei BISO-Partikeln auch beide PyC-Schichten. Kommen TRISO-Partikel zur Aufarbeitung, muß die widerstandsfähige SiC-Schicht erst zerschlagen werden, um die nachfolgenden beiden PyC-Schichten verbrennen zu können /94/. Während des Verbrennens von HTGR-Brennelementen mit carbidischem Einsatz wird das Kristallgitter des Uran-Thorium Mischkarbides zerstört und die Edelgase werden nahezu quantitativ ins Verbrennungsgas freigesetzt. Im Gegensatz dazu bleibt beim Verbrennen von Brennelementen mit oxidischem Brennstoffeinsatz die Struktur der Brennstoffkerne erhalten und nur etwa 8% der Edelgase werden bei diesem Prozeßschritt frei /175/. Über Messungen der Freisetzung aus Brenn- und Brutstoffen siehe Lowrie u.a. /94/. Es ist deshalb vorgesehen, die Edelgase aus dem CO₂-haltigen Verbrennungsgas abzutrennen.

In den USA wurde zwar eine Anzahl von Verfahren zur Abtrennung der Edelgase aus dem Löseabgas entwickelt (§.Kap.10.1.), jedoch besteht bis jetzt keine Möglichkeit der Abtrennung der Edelgase aus dem Verbrennungsgas. Das liegt vor allem daran, daß der anfallende Volumenstrom des Verbrennungsgases etwa um einen Faktor 90 größer ist als der des Löseabgases /176/. Ein Verfahren, das auf der selektiven Absorption der Edelgase

in flüssigem CO₂ beruht, wird zur Zeit in der KFA Jülich und im ORNL untersucht. In Kap.10.1. wird dieses Verfahren näher erläutert.

Während bei carbidischem Brenn- und Brutstoff der Hauptteil der Edelgase bereits beim Verbrennen frei wird, wird er bei oxidischem Einsatz vor allem beim Lösen frei. Die im Vergleich zum Verbrennungsabgas geringe Menge Löseabgas kann dann wieder mit einem der in Kap.10.1.2. beschriebenen Verfahren, z.B. selektive Absorption in flüssigem Stickstoff, gewaschen werden.

Demnach wird auch bei der Aufbereitung von HTGR-Brennstoff das gesamte eingebrachte Edelgasinventar frei. Verfahren, mit deren Hilfe sich in Zukunft eine Abgabe von Krypton und Xenon über den Kamin verhindern läßt, sind in der Erprobung und haben gute Aussichten auf Erfolg. Tabelle 7-1 gibt eine Übersicht über die prozentuale Edelgasfreisetzung in den einzelnen Stufen einer WAA bei der Aufarbeitung von LWR-, LMFBR- und HTGR-Brennstoff.

Tabelle 7-1

Prozentuale Edelgasfreisetzung bei den einzelnen Schritten der Wiederaufarbeitung von LWR, LMFBR und HTGR-Brennstoff /nach 165/

Wiederaufarbeitung von	Prozeßart	prozentuale Freisetzung während des		
		Zerteilens [%]	Verbrennens [%]	Auflösens [%]
LWR-oxid. Brennstoff	PUREX	1-10		90 - 99
LMFBR-oxid. Brennstoff	PUREX	50-90		10 - 50
HTGR-karbid. Brennstoff	THOREX		95±5	< 10
HTGR-oxid. Brennstoff	THOREX		7±5	≈90

7.2. Edelgasabgaberate

Bei einer WAA hängt die Edelgasabgabe an die Atmosphäre von folgenden 5 Parametern ab:

1) mittlere spezifische Belastung des Brennstoffes im Reaktor: $q \left[\frac{\text{MW}}{\text{t}} \right]$

2) Stand im Reaktor: $\tau \left[\text{d} \right]$

3) Kühlzeit zwischen Entladung aus dem Reaktor und Wiederaufarbeitung: $t \left[\text{d} \right]$

4) Durchsatz der WAA: $m \left[\frac{\text{t}}{\text{a}} \right]$

5) Dekontaminationsfaktor der WAA: DF $\left[1 \right]$

Aus den ersten 3 Parametern bestimmt sich das Edelgasinventar des Brennstoffes bei der Wiederaufarbeitung; zusammen mit den beiden letzten Parametern ergibt sich die Edelgasabgaberate einer WAA.

Bei der Berechnung von Abgaberaten in der zugänglichen Literatur wurden aus diesem Feld der oben genannten Parameter jeweils ein passend erscheinender Satz von Zahlenwerten für eine bestimmte WAA herausgegriffen. Dadurch ergeben sich bei den einzelnen Autoren recht unterschiedliche Resultate. Im folgenden wird deshalb eine Parameterstudie durchgeführt, wobei Parameter mit sehr großem Einfluß über einen Bereich möglicher und sinnvoller Werte variiert werden. Im folgenden wird zunächst der Einfluß der einzelnen Parameter erläutert und dann für den von verschiedenen KKW-Typen angelieferten Brennstoff die entsprechende Berechnung durchgeführt.

7.2.1. Mathematischer Zusammenhang

Edelgasinventar des Brennstoffes

Die in einer Tonne Brennstoff zum Zeitpunkt der Wiederaufar-

beitung enthaltene Aktivität berechnet sich allgemein aus den ersten 3 Parametern nach folgender Formel:

$$L_i = 8,4 \cdot 10^5 \cdot y_i \cdot q \cdot (1 - e^{-\lambda_i \tau}) \cdot e^{-\lambda_i t}$$

$L_i \left[\frac{\text{Ci}}{\text{t}} \right]$ = Aktivität des Nuklides i pro Tonne Brennstoff

$$8,4 \cdot 10^5 \left[\frac{\text{Ci}}{\text{MW}} \right] = 3,12 \cdot 10^{16} \left[\frac{\text{Spaltungen}}{\text{MWS}} \right] / 3,71 \cdot 10^{10} \left[\frac{\text{Spaltungen}}{\text{s Ci}} \right]$$

$y_i \left[\frac{1}{1} \right]$ = kum. Spaltausbeute des Nuklides i

$q \left[\frac{\text{MW}}{\text{t}} \right]$ = mittlere spezif. Belastung des Brennstoffes

$\lambda_i \left[\frac{1}{\text{d}} \right]$ = Zerfallskonstante des Nuklides i

$\tau \left[\frac{\text{d}}{\text{d}} \right]$ = Stand im Reaktor

$t \left[\frac{\text{d}}{\text{d}} \right]$ = Kühlzeit des bestrahlten Brennstoffes bis zur Wiederaufarbeitung

Dabei wird davon ausgegangen, daß die gebildeten Spaltedelgase noch vollständig im Brennelement eingeschlossen sind, da während des vorangegangenen KKW-Betriebes tatsächlich nur max. 1% der gebildeten Aktivität freigesetzt wurde.

Aus dieser allgemeinen Formel lassen sich aufgrund unterschiedlicher Halbwertszeiten zwei einfachere Spezialfälle herleiten:

- 1) Mit einer Zerfallskonstanten von $\lambda = 0,06424 \left[\frac{1}{\text{a}} \right]$ sind für das langlebige Nuklid Kr-85 die üblichen Kühlzeiten vernachlässigbar klein und es gilt folgende Näherung:

$$L_{\text{Kr85}} = 8,4 \cdot 10^5 \cdot y_{\text{Kr85}} \cdot q \cdot (1 - e^{-0,064 \cdot \tau})$$

$L_{\text{Kr85}} \left[\frac{\text{Ci}}{\text{t}} \right]$ = Aktivitätsgehalt an Kr-85 pro Tonne Brennstoff

$y_{\text{Kr85}} \left[\frac{1}{\text{a}} \right]$ = kum. Spaltausbeute von Kr-85 (s.Tab.6-1)

$q \left[\frac{\text{MW}}{\text{t}} \right]$ = mittl. spezif. Brennstoffbelastung

$\tau \left[\frac{1}{\text{a}} \right]$ = Stand im Reaktor

Der Parameter "spezif. Brennstoffbelastung" variiert beim LMFBR je nach Auslegung maximal um einen Faktor 4 (41,5–160 MW/t). Bei den kommerziellen LWR sind die entsprechenden Unterschiede wesentlich kleiner.

- 2) Die relativ kurzlebigen Nuklide des Xenon und Krypton erreichen während des Reaktorbetriebes sehr rasch ihre Sättigungswerte, und es gilt folgende Näherung:

$$L_i = 8,4 \cdot 10^5 \cdot y_i \cdot q \cdot e^{-\lambda_i t}$$

Edelgasabgaberate

Mit Hilfe der in Tab.7-3 angegebenen Aktivitätsgehalte je Tonne Brennstoff läßt sich bei einem vorgegebenen jährlichen Durchsatz der WAA und dem technisch erreichbaren Dekontaminationsfaktor die jährliche Abgaberate aus dem Abluftkamin der WAA bestimmen. Um im folgenden die Zahl der Parameter überschaubar zu halten, werden nur WAA mit einem Durchsatz von $1500 \frac{\text{t}}{\text{a}}$ (LWR- oder LMFBR-Brennstoff) und $60 \frac{\text{t}}{\text{a}}$ (HTGR-Brennstoff) betrachtet. Anlagen dieser Größe sind für die letzten beiden Jahrzehnte dieses Jahrhunderts in Deutschland geplant /165/.

Die jährliche Aktivitätsabgaberate einer WAA wird ganz entscheidend von den bereitgestellten Rückhaltemechanismen für Edelgase beeinflusst. Die Güte dieser Rückhaltemechanismen läßt sich durch den Parameter "Dekontaminationsfaktor" beschreiben. Dieser Parameter gibt das Verhältnis der im Brennstoff angelieferten Aktivität zur über den Kamin abgegebenen Aktivität an. Zur Zeit können die in einer WAA freigesetzten Edelgase großtechnisch noch nicht zurückgehalten werden; man

rechnet jedoch damit, in Zukunft Dekontaminationsfaktoren von $10^2 - 10^3$ erreichen zu können (siehe Kap. 10.1.).

7.2.2. Parameterstudie

Aus obigen Überlegungen ergibt sich, daß die Edelgasabgaberate einer WAA durch die Parameter "Kühlzeit" und "Dekontaminationsfaktor" entscheidend beeinflusst werden kann. Die anderen Parameter sind durch die Auslegung der Kerndaten vorgegeben. Die Abb.7-1, 7-2 und 7-3 zeigen die jährliche Edelgasabgaberate aus WAA in Abhängigkeit von der Kühlzeit und vom Dekontaminationsfaktor für Anlagen mit einem Durchsatz von $1500 \frac{t}{a}$ LWR- oder LMFBR-Brennstoff und für einen Durchsatz von 60 t/a HTGR-Brennstoff. Ein für WAA üblicher Last- oder Ausnutzungsfaktor von ca. 80%, entsprechend 300 Tage Betriebszeit pro Jahr, wurde dabei nicht berücksichtigt. Um einen Vergleich mit der jährlichen Abgaberate von KKW zu ermöglichen, enthalten die Abbildungen die Abgaberraten des jeweiligen Reaktortyps mit 1000 MW_e Leistung sowie die addierten Edelgasabgaberraten aller von dieser WAA bedienten KKW (nämlich 42 LWR oder 51 LMFBR oder 9 HTGR).

Betrachtet man die Summen-Abgaberrate aller bedienten KKW, so müßte für WAA der angenommenen Kapazität ein DF von ca. 10^3 erreicht werden, um die Kr-85-Abgabe auf diese Summen-Abgaberrate der KKW zu reduzieren.

Tabelle 7-2 Daten verschiedener 1000 MW_e-Reaktoren unter Berücksichtigung eines Lastfaktors $\alpha = 0,8$ /177,178/

Reaktortyp (1000 MW _e)	Brennstoff- ladung [t]	Brennstoff- belastung q [$\frac{MW}{t}$]	Abbrand A [$\frac{MWd}{t}$]	Bestrahlungs- zeit im Reak- tor ^(a) τ [a]	in 1 Jahr aufzuberei- tende Brennstoffmenge [t/a · 1000 MW _e]
LWR	130	25	26000	3,58	35,7
PHWR	146	25,1	7000	0,995	153
AGR	308	7,84	18000	7,85	39,2
HTGR	29	85	110000	4,45	6,5
LMFBR ^(b)	46,6	58,2	33000	1,94	29

(a)
$$\tau = \frac{A}{q \cdot \alpha \cdot 365}$$

(b) Für den LMFBR wurde eine gemeinsame Core-Blanket-Aufbereitung des 1000 MW_e-LMFBR der Referenzstudie von Atomics International mit einem U/Pu-Aufarbeitsverhältnis von 1,25 nach den Berechnungen in ORNL-4451 /178/ angenommen.

Tabelle 7-3 Edelgasaktivität je Tonne Brennstoff für verschiedene 1000 MW_e-Reaktortypen nach verschieden langer Kühlzeit auf der Grundlage von Tabelle 7-2

Reaktortyp	Kr-85 Aktivität $\left[\frac{Ci}{t}\right]$	Xe-Aktivität $\left[\frac{Ci}{t}\right]$ nach einer Kühlzeit von						
		Nuklid	0d	30d	60d	90d	120d	150d
LWR	11700	Xe-131m	3570	614	105,3	17,85	3,03	0,535
		Xe-133	$1,4 \cdot 10^6$	28000	546	10,36	0,25	0,0042
PHWR	3530	Xe-131m	3580	616	105,6	17,9	3,04	0,537
		Xe-133	$1,41 \cdot 10^6$	28200	550	10,4	0,25	0,0042
AGR	7050	Xe-131m	1120	193	33	5,6	0,952	0,168
		Xe-133	$4,4 \cdot 10^5$	8800	172	3,25	0,079	0,0013
HTGR	48000	Xe-131m	12150	2150	358	60	10,3	1,82
		Xe-133	$4,76 \cdot 10^6$	94000	1900	36	0,714	0,0143
LMFBR	10200	Xe-131m	36000	6190	1060	180	30,6	5,4
		Xe-133	$3,77 \cdot 10^6$	74400	1530	29	0,573	0,0115

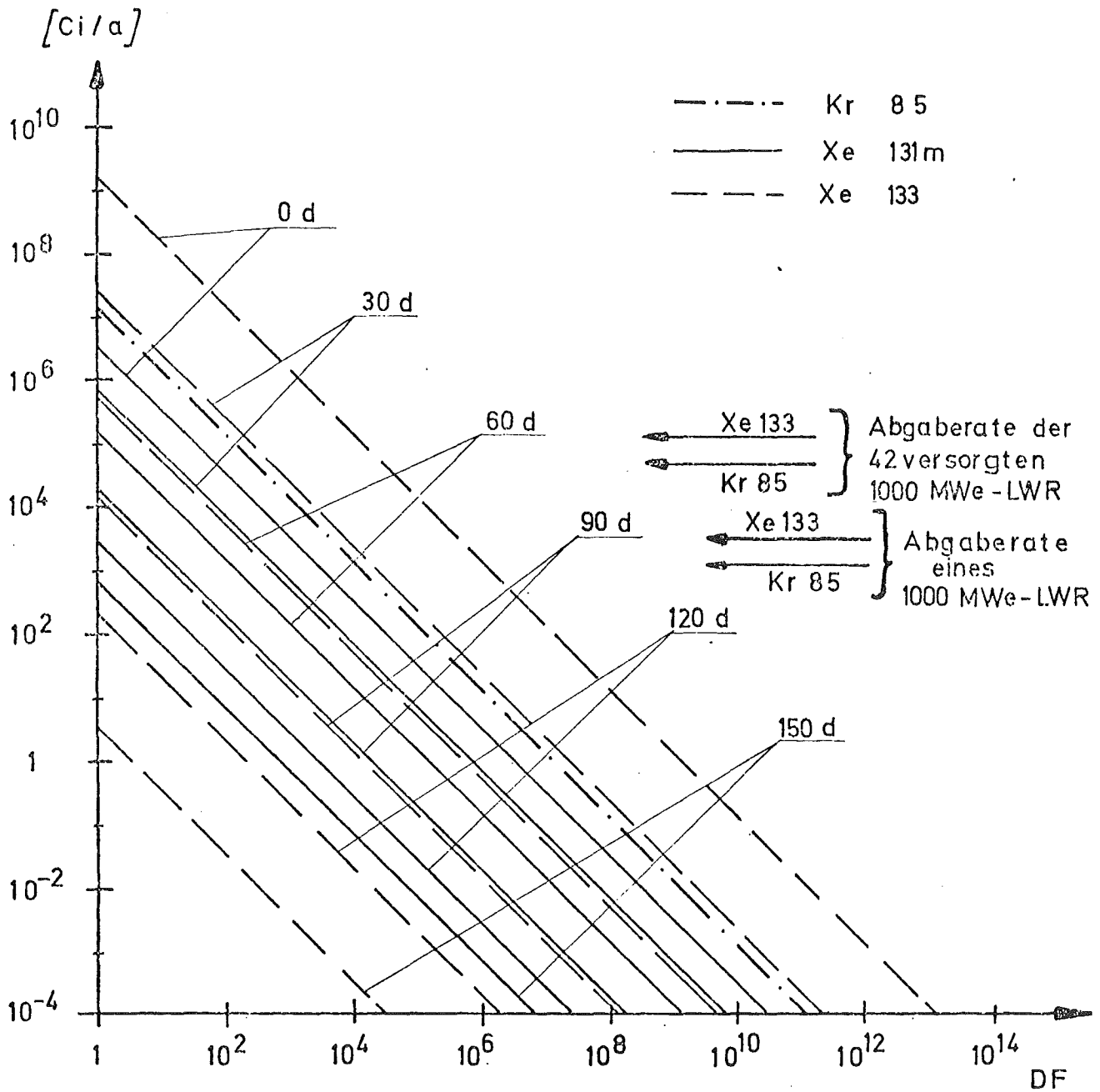


Abb.7-1 Jährliche Edelgasabgaberrate bei Aufarbeitung von 1500 t/a LWR-Brennstoff bei verschiedenen Dekontaminationsfaktoren und Kühlzeiten (mittl. spezif. Brennstoffbelastung: $25 \frac{MW}{t}$, Abbrand: $26000 \frac{MWd}{t}$)

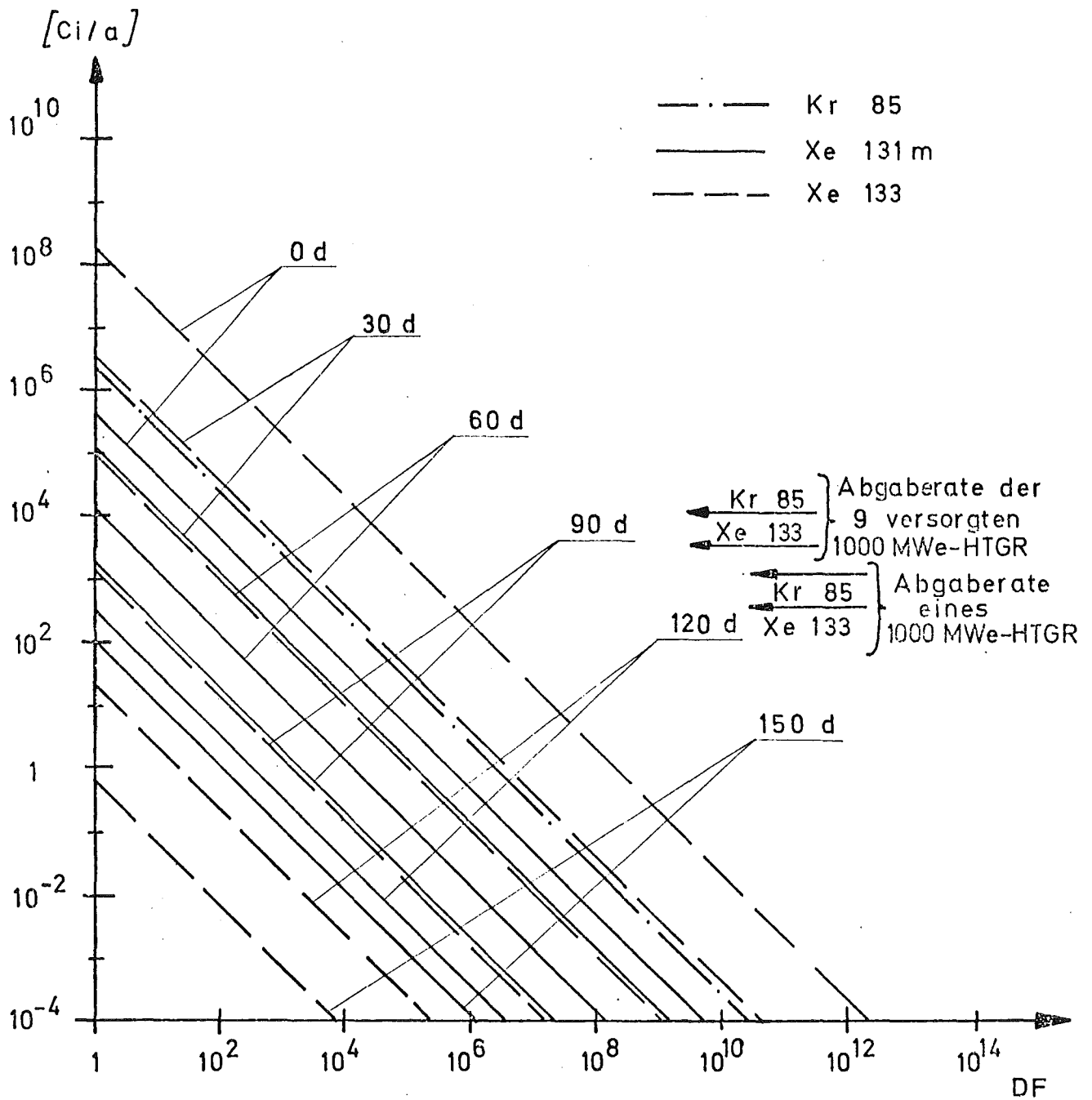


Abb.7-2 Jährliche Edelgasabgaberrate bei Aufarbeitung von 60 t/a HTGR-Brennstoff bei verschiedenen Dekontaminationsfaktoren und Kühlzeiten (mittl. spezif. Leistung: $85 \frac{MW}{t}$, Abbrand: $110000 \frac{MWd}{t}$)

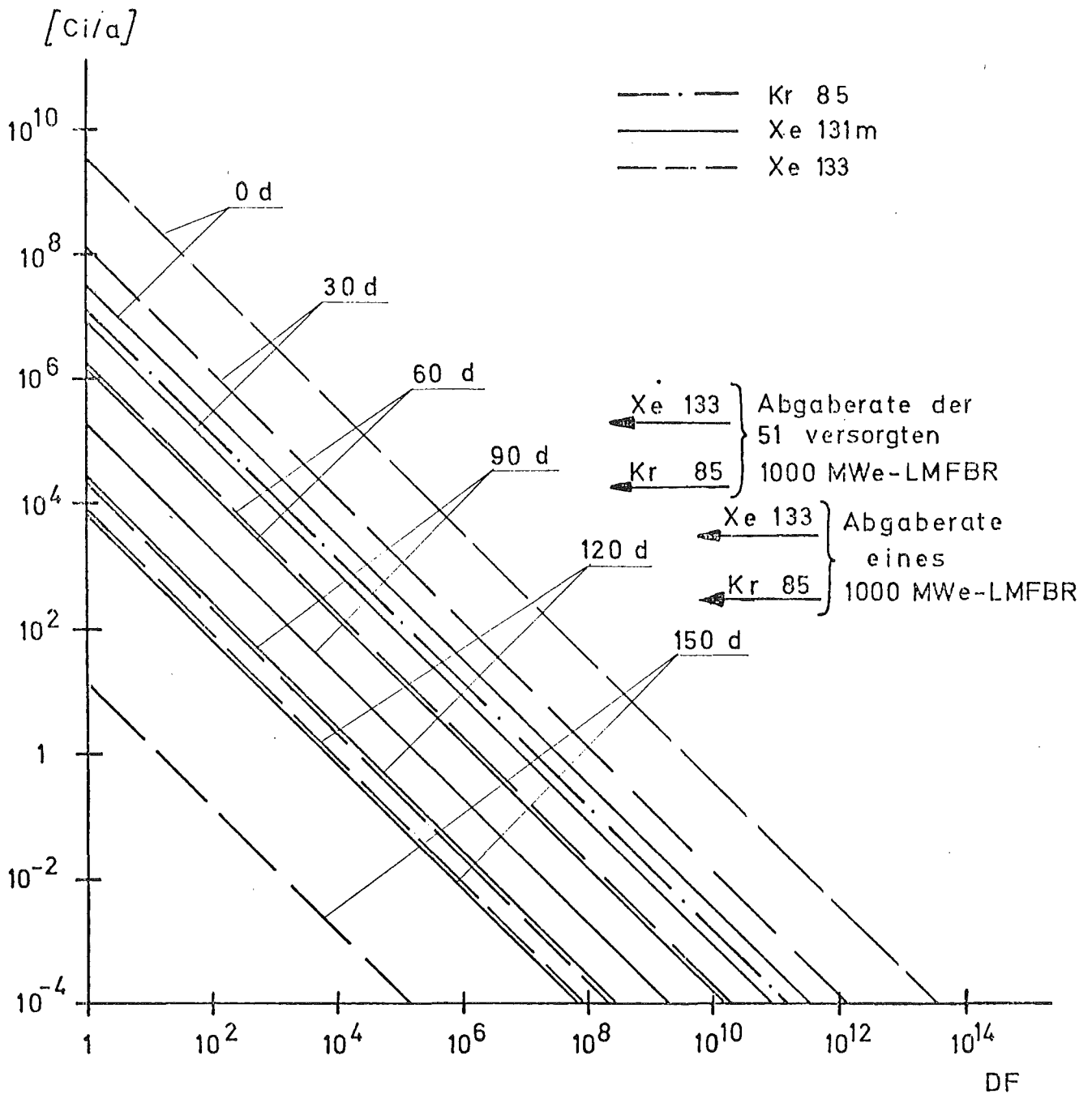


Abb.7-3 Jährliche Edelgasabgaberate bei Aufarbeitung von 1500 t/a LMFBR-Brennstoff (Core und Blanket) bei verschiedenen Dekontaminationsfaktoren und Kühlzeiten (mittl. spezif. Leistung: $58,2 \frac{MW}{t}$, Abbrand: $33000 \frac{Mwd}{t}$, U/Pu-Aufarbeitungsverhältnis: 1,25)

7.2.3. Gemessene Kr-85-Abgaberaten

Obgleich zur Zeit 12 WAA mit einem Durchsatz von jeweils 25 bis 3000 t/a in Betrieb sind - Tabelle 7-4 gibt eine Übersicht -, liegen veröffentlichte Kr-85-Abgaberaten lediglich von der NFS- und WAK-Anlage vor. Angaben über die Kr-85-Freisetzung aus den beiden großen amerikanischen Anlagen "Savannah" und "Hanford" werden geheimgehalten, da sie die Sicherheit der USA betreffen /179/. Realistische Schätzungen der Abgaberaten von WAA, auch der übrigen Länder, sind nicht möglich, da weder die jährlich effektiv aufbereiteten Brennstoffmengen noch der jeweilige Abbrandzustand bekannt sind. Lediglich Russel und Galpin /180/ geben für 4 amerikanische WAA (NFS, Midwest, BNFP, ARCO) eine maximale rechnerische jährliche Abgaberate an, indem sie einen Kr-85-Gehalt von 10000 Ci/t, einen Dekontaminationsfaktor von 1 und volle Kapazitätsausnutzung der WAA annehmen.

Da großtechnisch noch kein Verfahren zur Verbesserung des Dekontaminationsfaktors für Edelgase bei WAA eingesetzt werden konnte, wurde bisher die gesamte aus dem Brennstoff freigesetzte Edelgasaktivität an die Umgebung abgegeben. Aus den nachfolgend wiedergegebenen Meßergebnissen der beiden WAA NFS und WAK kann geschlossen werden, daß die Abgaberaten von WAA bisher allgemein nur bei einem Bruchteil der aufgrund ihrer Kapazität möglichen lagen. Diethorn und Stockho /12/ geben zwei Gründe an, daß die Wiederaufarbeitungskapazität bisher nicht voll genutzt wurde: erstens fällt wegen der langen Standzeiten in Reaktoren noch nicht sehr viel Brennstoff an und zweitens besitzen die USA große Vorräte an hochangereichertem Uran, so daß die rasche Wiederaufarbeitung noch nicht dringend ist.

Tabelle 7-4 Im Bau und in Betrieb befindliche WAA der Welt

Land	Anlagenbezeichnung	Inbetriebnahme	Kapazität $\left[\frac{t}{a}\right]$	geschätzte Kr-85-Abgabe $\left[\frac{Ci}{a}\right]$	Literatur
USA	ICCP, Idaho Falls	1953	350		/179/
	SRP, Savannah River	1954	≈2700		/179/
	PUREX 200 E, Hanford	1956	≈3000		/179/
	NFS, West Valley	1966	300	$3 \cdot 10^6$	/180,181/
	MIDWEST, Illinois	1972	300	$3 \cdot 10^6$	/180,181/
	BNFP, Barnwell	1974	1500	$1,5 \cdot 10^7$	/180,181/
	ARCO, South Carolina	1976	1800	$1,8 \cdot 10^7$	/180,181/
GB	Windscale II	1964	1800		/182,183,184/
F	UP1, Marcoule	1958	500		/185/
	UP2, La Hague	1966	900		/186/
B	Eurochemic, Mol	1966	80 - 120		/187,188,189/
D	WAK, Karlsruhe	1971	40		/173,185,190/
I	EUREX, Saluggia	1970	25		/191/
Ind	Trombay	1965	80		/172/

NFS-Anlage, West Valley (USA)

Die WAA der Nuclear Fuel Service in West Valley ist seit 1966 in Betrieb und für einen Durchsatz von 1 t/d ausgelegt. Eine Rückhaltung oder Abtrennung der Edelgase vor der Abgabe durch den 63m hohen Kamin findet nicht statt /192/. Cochran /164/ weist nach, daß der vorausgesagte Kr-85-Aktivitätsgehalt zweier im Juni 1969 aufbereiteter Brennstoffladungen sehr gut mit den Kr-85-Aktivitätsmessungen im Kamin übereinstimmt. Xenon mußte bei dieser Untersuchung nicht berücksichtigt werden, da der Brennstoff erst nach 480 bzw. 960 Tagen aufbereitet wurde. Obwohl die Anlage für eine 150-tägige Kühlzeit des Brennstoffes ausgelegt ist, wird der Brennstoff vor der Wiederaufarbeitung meist über 1 Jahr gelagert /192/. Als höchstbestrahlter Brennstoff kam nach Sinclair /181/ eine Ladung mit $22500 \frac{\text{MWd}}{\text{t}}$ Abbrand nach 270 Tagen Kühlzeit zur Aufarbeitung. Für 1971 wird der gemittelte Abbrand mit $11500 \frac{\text{MWd}}{\text{t}}$ angegeben /193/. Die Abgaberraten am Kamin der NFS-Anlage sind, soweit sie zur Verfügung standen, der Tabelle 7-5 zu entnehmen.

Tabelle 7-5 Aufbereitete Brennstoffmenge und Abgaberraten der WAA der NFS (USA) /131,192,193,194/

Jahr	aufbereiteter Brennstoff [t/a]	abgegebene Kr-85-Aktivität [Ci/a]	Kr-85-Aktivitätsgehalt des Brennstoffes [Ci/t]
1966	114,6	$8,9 \cdot 10^4$	776
1967	121	$3,24 \cdot 10^5$	2670
1968	136,7	$1,93 \cdot 10^5$	1141
1969	120,9	$3 \cdot 10^5$	2480
1970		$1,8 \cdot 10^5$	
1971	68,8	$2,21 \cdot 10^5$	3210

Aus Tabelle 7-5 ist deutlich zu erkennen, daß in den ersten Jahren nur Brennstoff mit relativ geringer Aktivität aufbereitet wurde, während sich für 1971 bereits ein durchschnittlicher Kr-85-Gehalt von 3200 Ci/t errechnet. Bei Aufarbeitung

von 300 Tonnen LWR-Brennstoff im Jahr ergäbe sich nach Tabelle 7-3 eine Kr-85-Abgabe von $3,5 \cdot 10^6$ Ci/a. Dieser Wert, der einer Betriebszeit von 300 Tagen entspricht, liegt eine Zehnerpotenz über der Aktivitätsabgabe der vergangenen Jahre.

WAK-Anlage, Karlsruhe (BRD)

Die Prototypanlage einer WAA im Kernforschungszentrum Karlsruhe wurde für eine Kapazität von 40 t/a bei 200 Betriebstagen ausgelegt und kann Brennstoffe bis zu etwa $20000 \frac{\text{MWd}}{\text{t}}$ aufbereiten /185/. Über den 60m hohen Kamin wird auch hier das gesamte eingebrachte Kr-85 freigesetzt. Nach 2-jähriger Kühlzeit wurden Ende 1971 zum ersten Mal 3 Tonnen Brennstoff mit einem Abbrand von $11000 \frac{\text{MWd}}{\text{t}}$ aufbereitet /190/. Bei den überwachten Auflösvorgängen wurden dabei 2660 Ci Kr-85 frei /196/. Während des Jahres 1972 wurde mit der Abluft eine Radioaktivität von 67710 Ci Kr-85 emittiert /173,197/. Bei der Aufarbeitung von 40 t/a LWR-Brennstoff würde sich nach Tabelle 7-3 eine theoretische Kr-85-Abgaberate von 467000 Ci/a ergeben.

8. Lokale und globale radiologische Belastung

Zur Ermittlung der lokalen radiologischen Belastung wird durch Multiplikation der in den Kapiteln 6 und 7 berechneten Abgaberraten mit einem Faktor von $5 \cdot 10^{-7} \frac{\text{s}}{\text{m}^3}$ (angenommenes Produkt aus Windhäufigkeit und Ausbreitungsfaktor $p \cdot J = 5 \cdot 10^{-7} \frac{\text{s}}{\text{m}^3}$) zunächst die Aktivitätskonzentration am "ungünstigsten" Aufpunkt in der Umgebung einer kerntechnischen Anlage errechnet.

Zur Ermittlung der globalen Belastung wird, ausgehend von den zu erwartenden jährlichen Kr-85-Abgaberraten, aus allen kerntechnischen Anlagen mit Hilfe von globalen Luftaustausch-Modellen die weltweite Kr-85-Konzentration berechnet. Die Multiplikation der Konzentrationen mit den entsprechenden Dosisfaktoren liefert dann die radiologische Belastung.

Dosisfaktoren für Edelgase

Von Hendrickson /35/ wurde der Dosisfaktor von Kr-85 für die Ganzkörper- und Gonadenstrahlendosis (γ - und Bremsstrahlung) mit

$$g_{\gamma} = 0,00075 \left[\frac{\text{rem} \cdot \text{m}^3}{\text{Ci} \cdot \text{s}} \right]$$

und der Dosisfaktor für die Hautdosis (β -Strahlung) mit

$$g_{\beta} = 0,054 \left[\frac{\text{rem} \cdot \text{m}^3}{\text{Ci} \cdot \text{s}} \right]$$

angegeben. Der in der momentanen Genehmigungspraxis der BRD übliche Richtwert für die Individualdosis von $30 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ entstand, wie in Kap. 3 gezeigt, aus der genetisch wirksamen Strahlenbelastungsgrenze der Bevölkerung von $5 \frac{\text{rem}}{30\text{a}} = 170 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$. Somit käme für die Berechnung der genetisch signifikanten Kr-85-Dosis lediglich der Dosisfaktor g_{γ} in Betracht.

Die von der ICRP vorgeschlagenen und in die 1. SSVO übernommenen Richtlinien hingegen setzen die sog. Submersionsdosis ($\beta + \gamma$)

gleich der äußeren Ganzkörperdosis. Somit ist als Dosisfaktor die Summe $g_{\gamma} + g_{\beta}$ zu verwenden. Auch nach Schwibach ist der Genehmigungswert von $30 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ gegenwärtig als Richtwert für die Haut anzusehen /198/. Da die β -Teilchen von Kr-85 jedoch im Mittel nur etwa 0,2 mm /29/ ins Gewebe eindringen und somit praktisch nur eine Belastung der Haut, aber nicht eine Belastung der Gonaden oder des ganzen Körpers zur Folge haben, stellt dies eine konservative Betrachtungsweise dar.

Tabelle 8-1 gibt einen Überblick über die in der Literatur vorgeschlagenen und in den Verordnungen verwendeten Dosisfaktoren für Krypton- und Xenonisotope.

Für die folgende Berechnung der lokalen Belastung aus kerntechnischen Anlagen wurden die in der BRD gültigen Dosisfaktoren der 1. SSVO verwendet. Für die globale Belastung wird die sich ergebende Ganzkörperstrahlendosis und die β -Dosis getrennt angegeben.

Tabelle 8-1 Dosisfaktoren $g \left[\frac{\text{rem}\cdot\text{m}^3}{\text{Ci}\cdot\text{s}} \right]$ der wichtigsten Edelgasnuklide

Autor bzw. Vorschrift	USAEC; 1957 /48/ 1.SSVO; 1965 /47/	Blässer-Wirtz 1960 /199/		Comper 1972 /31/		Hendrickson 1970 /35/	
Art der betracht. Strahlung	$\beta+\gamma$	β	γ	β	γ	β	γ
Nuklid							
Kr-85	0,054	0,057	-	0,072	$0,54 \cdot 10^{-3}$	0,054	$0,75 \cdot 10^{-3}$
Kr-88		0,086	0,546	0,119	0,471		
Xe-131m	0,040	0,042	-	0,043	$0,81 \cdot 10^{-3}$		
Xe-133	0,054	0,031	0,010	0,036	0,008		
Xe-135	0,161	0,078	0,070	0,095	0,064		
Gemisch (überwiegend Kr-85+Xe-133)	0,054						

8.1. Lokale Belastung

Lokale Belastung durch KKW

In Tabelle 8-2 sind die in Kapitel 6 errechneten jährlichen Abgaberaten der vier betrachteten KKW-Typen zusammengefaßt. Die Abgaberaten gelten für 1000 MWe-Anlagen bei einem Lastfaktor von 0,8 und Rückhaltezeit der Edelgase in Aktivkohlebetten im Bereich von etwa 40-50 Tagen. Bei einem Ausbreitungsfaktor von $5 \cdot 10^{-7} \frac{\text{s}}{\text{m}^3}$ und den in Tabelle 8-1 angegebenen Dosisfaktoren der 1. SSV ergibt sich danach eine radiologische Belastung von etwa $0,1 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$. Die genauen Werte sind Tabelle 8-2 zu entnehmen.

Diese radiologische Belastung am ungünstigsten Aufpunkt liegt weit unter dem momentanen deutschen Genehmigungswert von $30 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ und unter dem diskutierten amerikanischen Genehmigungswert von $5 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ (siehe Kap. 3). Die Erhöhung der natürlichen Strahlenbelastung von ca. $126 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ /43/ liegt somit im Bereich von 1 ‰. Handge und Schwarzer /126/ errechneten zudem, daß eine Überlagerung der Strahlenbelastung unberücksichtigt bleiben kann, wenn zwischen den kerntechnischen Anlagen ein Abstand von größer als 30 km eingehalten wird und beide Emittenten die jeweils gültigen Richtwerte einhalten.

Lokale Belastung durch WAA

Bei der Berechnung der radiologischen Belastung durch WAA kann nicht von festen Abgaberaten ausgegangen werden, da die sehr stark beeinflussenden Parameter Kühlzeit und Dekontaminationsfaktor allgemein noch nicht festliegen. Während für LWR- und HTGR-Brennstoff 150 Tage Kühlzeit im Gespräch sind, werden für den Brennstoff aus LMFBR 30 Tage Kühlzeit genannt /178/. Da ohne eine Abtrennung des langlebigen Nuklides Kr-85 die resultierende Strahlenbelastung bei Aufarbeitung von 1500 t/a LWR- oder LMFBR-Brennstoff oder auch von 60 t/a HTGR-Brennstoff über dem Genehmigungsgrenzwert von $30 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ liegt (Tab.8-3 gibt einen Überblick),

Tabelle 8-2 Strahlenbelastung und Edelgasabgaberate von KKW mit 1000 MW elektrischer Leistung bei einem Lastfaktor von 0,8

Reaktortyp 1000 MWe	Edelgasabgaberate $\left[\frac{\text{Ci}}{\text{a}} \right]$				resultierende Strahlenbelastung am ungünstigsten Aufpunkt*) $\left[\frac{\text{mrem}}{\text{a}} \right]$
	insgesamt	Kr-85	Xe-133	andere Kr+Xe-Isotope	
DWR	5000	1300	3200	500	0,135
SWR	4000	1200	2400	400	0,108
HTGR	2400	1300	450	650	0,065
LMFBR	5000	350	4200	540	0,138

*) berechnet mit Ausbreitungsfaktor $5 \cdot 10^{-7} \frac{\text{s}}{\text{m}^3}$ und den Dosisfaktoren der 1. SSVO (s. Tab. 8-1)

Tabelle 8-3 Strahlenbelastung durch Wiederaufarbeitungsanlagen bei verschiedenen Kühlzeiten des Brennstoffs und einem Dekontaminationsfaktor von 1

Kühlzeit [\bar{d}]	Strahlenbelastung [$\frac{\text{mrem}}{\text{a}}$]* bei Aufarbeitung von		
	1500 t/a LWR-Brennstoff	60 t/a HTGR-Brennstoff	1500 t/a LMFBR-Brennstoff
0	57348	7926	158220
30	1611	233	3696
60	483	81	500
90	461	76	410
120	460	76	405
150	460	76	405

*) berechnet mit Ausbreitungsfaktor $A = 5 \cdot 10^{-7}$ [$\frac{\text{s}}{\text{m}^3}$]
 und Dosisfaktoren $g = 0,054$ [$\frac{\text{rem} \cdot \text{m}^3}{\text{Ci} \cdot \text{s}}$] für Kr-85
 und Xe-133, $g = 0,040$ [$\frac{\text{rem} \cdot \text{m}^3}{\text{Ci} \cdot \text{s}}$] für Xe-131m auf
 der Grundlage der Tabelle 7-3

müssen bei WAA dieser Größe prinzipiell Edelgasabtrennanlagen eingebaut werden.

Welche Dekontaminationsfaktoren bei verschiedenen Kühlzeiten nötig sind, um den in der BRD gültigen Genehmigungsrichtwert von $30 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ einzuhalten, ist den Abb.8-1, 8-2 und 8-3 zu entnehmen. Dabei wurde von den Werten aus Tabelle 7-3, einem Ausbreitungsfaktor von $5 \cdot 10^{-7} \frac{\text{s}}{\text{m}^3}$ und den in der 1. SSVO verwendeten und in Tabelle 8-2 wiedergegebenen Dosisfaktoren ausgegangen.

Nach Abb.8-3 ist bei Aufarbeitung von 1500 Tonnen 30 Tage gekühltem LMFBR-Brennstoff ein Dekontaminationsfaktor von $1,3 \cdot 10^2$ nötig, was etwa einer Edelgasabtrennung mit einem Abscheidegrad von 99,2% entspricht. Wie Kap.10.1.3. zu entnehmen ist, kann etwa ab 1978 mit dem Einbau von Abtrennanlagen mit einem $DF \approx 10^3$ in WAAen gerechnet werden, so daß bei der Aufarbeitung von Schnellbrüterbrennstoff im Großen keine Überschreitung des Grenzwertes zu erwarten ist.

Für die Aufarbeitung von 1500 t/a LWR-Brennstoff ist, wie aus Abb.8-1 ersichtlich, bei einer Kühlzeit von 150 Tagen und länger eine Krypton-Abtrennung mit einem Dekontaminationsfaktor von $1,5 \cdot 10^1$ (=93%) nötig, damit der Genehmigungsrichtwert von $30 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ nicht überschritten wird. Wie Tab. 8-3 entnommen werden kann, würde für die Einhaltung einer Abgaberate von $0,1 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ (ähnlich den KKW) bei 150 Tagen Kühlzeit ein Dekontaminationsfaktor von $4,6 \cdot 10^3$ nötig sein, d.h. eine 99,97 prozentige Kr-Abtrennung aus der Abluft einer 1500 t/a-WAA.

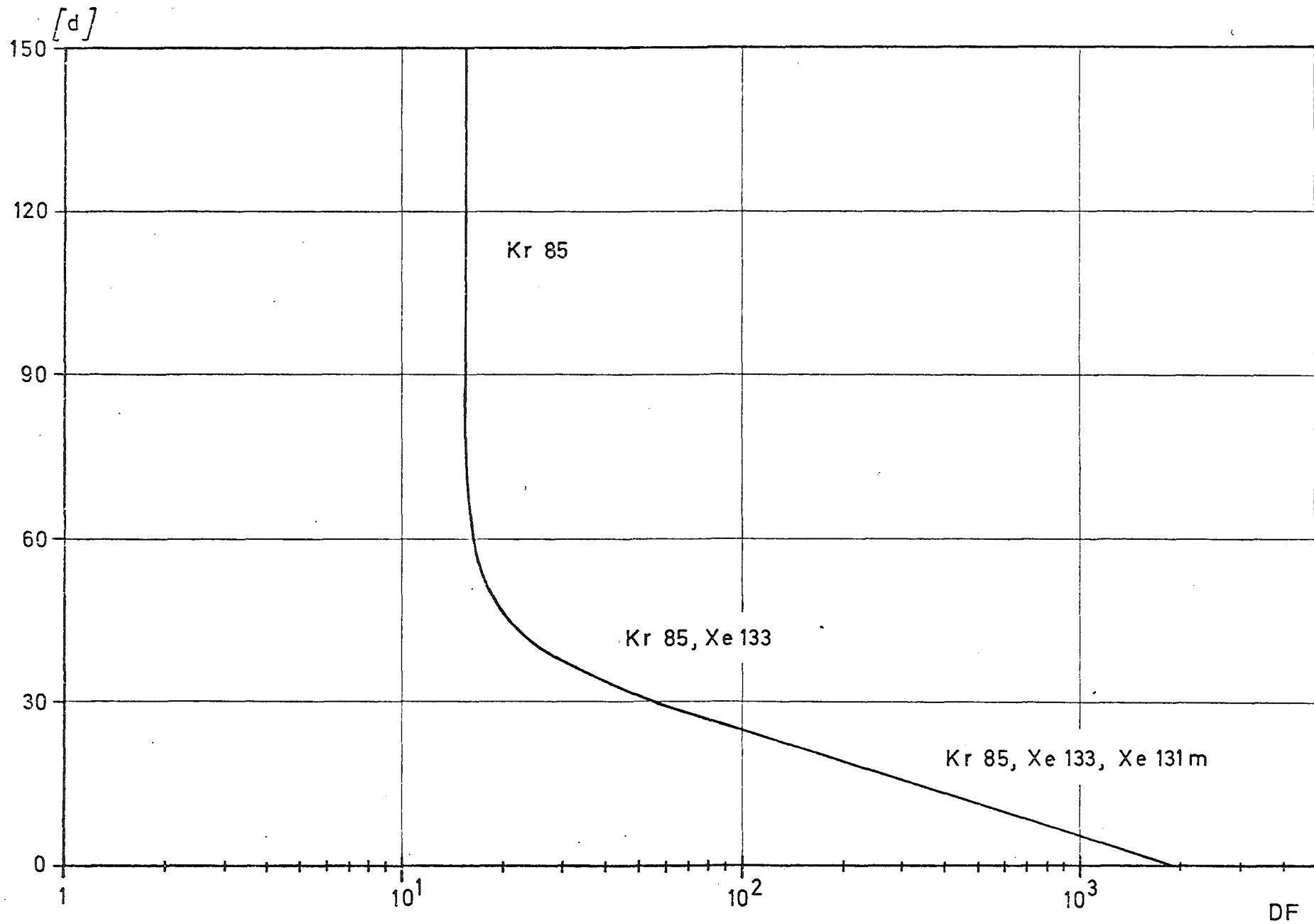


Abb.8-1 Erforderliche Kühlzeiten bei Aufarbeitung von 1500 t/a LWR-Brennstoff bei verschiedenen Dekontaminationsfaktoren, zur Einhaltung einer Dosisgrenze von 30 mrem/a

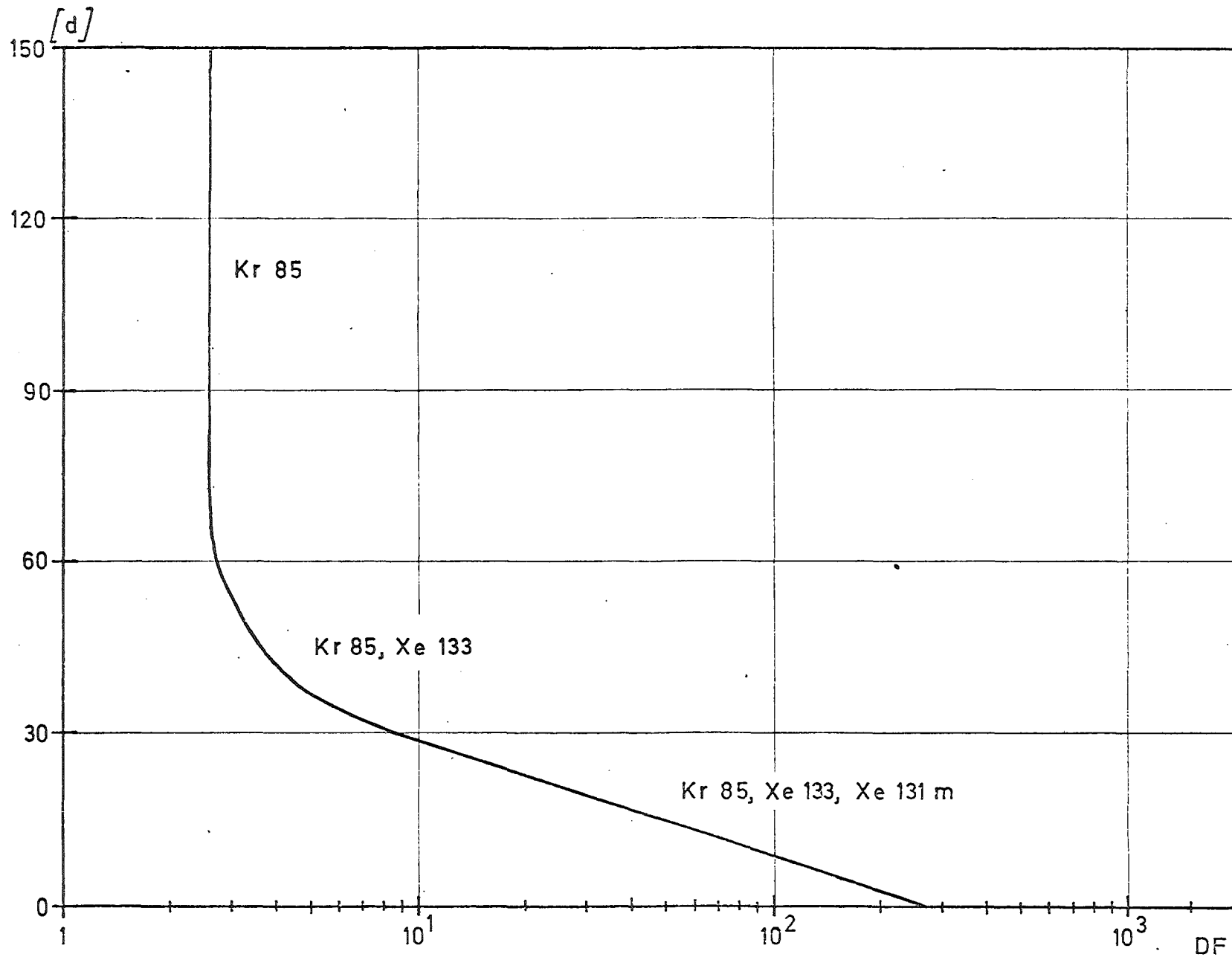


Abb.8-2 Erforderliche Kühlzeiten bei Aufarbeitung von 60 t/a HTGR-Brennstoff bei verschiedenen Dekontaminationsfaktoren, zur Einhaltung einer Dosisgrenze von 30 mrem/a

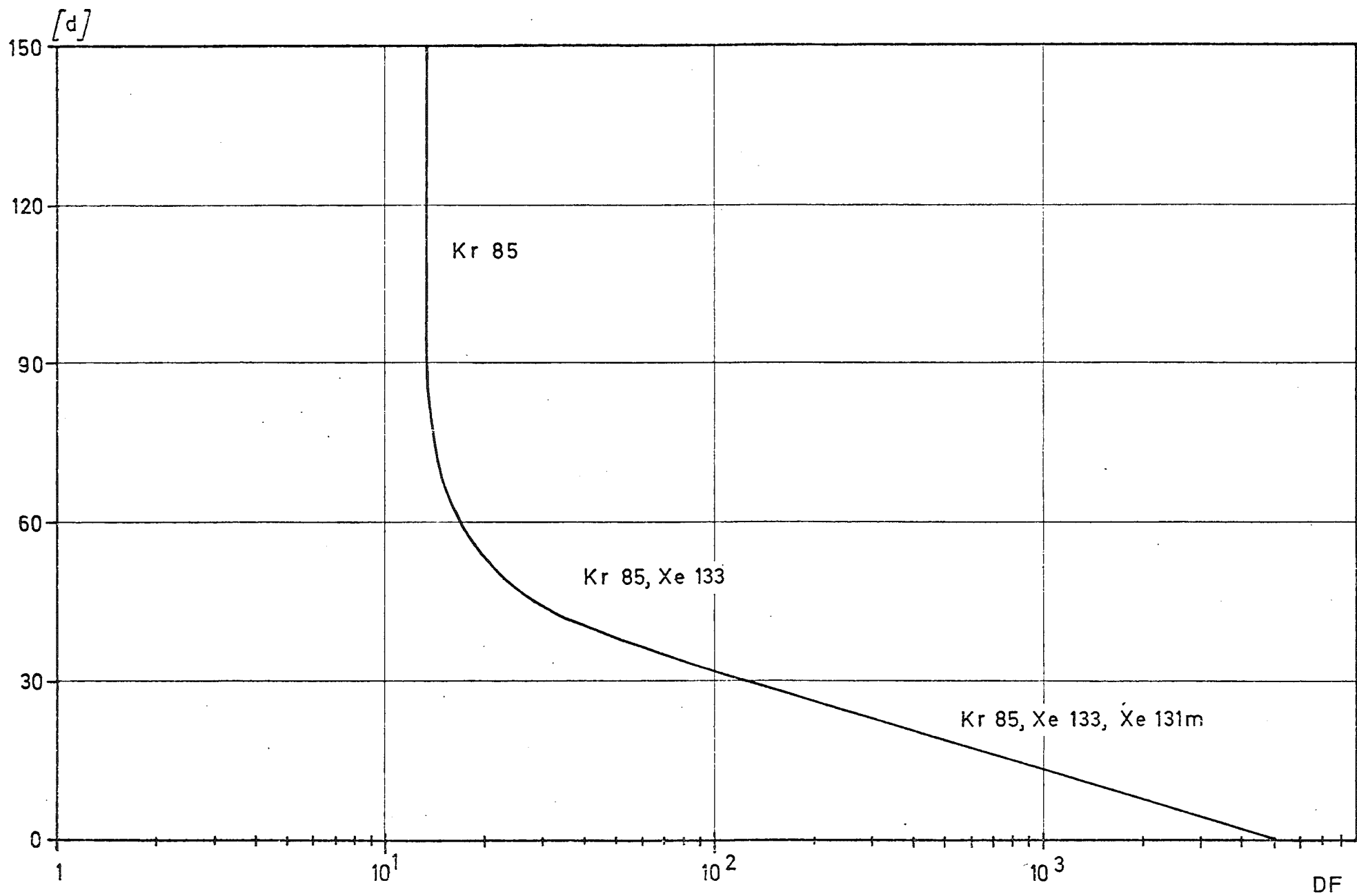


Abb.8-3 Erforderliche Kühlzeiten bei Aufarbeitung von 1500 t/a LMFBR-Brennstoff (Core und Blanket) bei verschiedenen Dekontaminationsfaktoren, zur Einhaltung einer Dosisgrenze von 30 mrem/a

8.2. Globale Belastung bis zum Jahr 2000

Von den insgesamt im Brennstoff gebildeten und bei der Wiederaufarbeitung bisher vollständig freigesetzten Edelgasisotopen kommt für die Abschätzung der globalen Belastung nur das Isotop Kr-85 wegen seiner Halbwertszeit von 10,76 a in Betracht. Mit Hilfe einer Prognose über die bis zum Jahr 2000 installierte Kernkraftwerksleistung wird im folgenden für verschiedene weltweite Luftaustauschmodelle die zu erwartende globale Strahlenbelastung durch Kr-85 abgeschätzt. Dabei wird der zeitliche Einsatz von Wiederaufarbeitungsanlagen variiert.

8.2.1. Globale Verteilung von Krypton-85

Bei der Betrachtung der globalen Verteilung von Kr-85 können folgende vereinfachende Annahmen getroffen werden.

- a) Die Menge des in die Atmosphäre freigesetzten Kr-85 reduziert sich nur durch radioaktiven Zerfall. Ablagerungsvorgänge sind vernachlässigbar.
- b) Für die weltweite Verteilung sind nur die Bewegungen der troposphärischen Luftschichten maßgebend.

Gründe für Annahme a)

Wegen der geringen Löslichkeit in Wasser ($6,2 \cdot 10^{-6}$ Vol.-%) stellen die Wassermassen auf der Erde nur unbedeutende Senken dar, so daß der gelöste Kr-85-Anteil alleine deswegen vernachlässigbar ist. Die mittleren Austauschzeiten von Gasen zwischen Troposphäre und Oberflächenschicht der Ozeane etwa bis zur noch nicht genau festliegenden Thermocline (75-200 m Tiefe) werden recht unterschiedlich mit 0,3 Jahren /200/ bis 9,3 Jahren /201/ angegeben, wobei der Fehler in der Größenordnung der Werte liegt. Die Tiefseeschichten

(tiefer als 400-1000 m) jedoch nehmen nur in einem unbedeutenden Maß an der Vermischung teil. So wurden für C-14 Verweilzeiten von 510-550 Jahren /201/ und für CO₂ bis zu 800 Jahren /202,203/ angegeben. Somit steht nur eine dünne Oberschicht der Ozeane für die Lösung in Wasser zur Verfügung.

Aufgrund ähnlicher Überlegungen kann auch das Auswaschen von Kr-85 durch Regen vernachlässigt werden. Unter der Annahme von $4 \frac{\text{mm}}{\text{h}}$ Niederschlag ergibt sich ein Washout-Koeffizient von $4 \cdot 10^{-11} \left[\frac{1}{\text{s}} \right]$ für Kr-85 /162,178,204/.

Der Mechanismus der trockenen Ablagerung reduziert das Kr-85-Inventar der Atmosphäre ebenfalls nur unmerklich. Die Adsorptionskapazität des Bodens beträgt nur $3 \cdot 10^{-8}$ g Kr/g Boden /204/. Man nimmt an, daß die Menge des adsorbierten Kr-85 im Gleichgewicht direkt proportional dem Verhältnis radioaktivem zu stabilem Krypton in der Atmosphäre ist /178/.

Eine Erniedrigung des Kr-85-Gehalts der Atmosphäre durch Anlagerung an Staubteilchen kommt nicht in Betracht. Bei einem Partikelgehalt von $1,4 \cdot 10^{-4}$ g/m³ Luft gibt Tadmor /204/ eine Adsorptionskapazität von $3 \cdot 10^{-10}$ g Kr/m³ Luft an. Bei einer Konzentration des natürlichen Krypton von $4 \cdot 10^{-3}$ g/m³ der Atmosphäre wird deutlich, daß nur ein vernachlässigbarer Anteil von 10^{-7} des stabilen und radioaktiven Krypton an Staubpartikel adsorbiert wird.

Gründe für Annahme b)

Das aus KKW und WAA freigesetzte Kr-85 verteilt sich proportional der Luftmasse über die Grundschicht (1-2 km Höhe) hinaus, innerhalb der Troposphäre bis etwa 10 km Höhe /178, 205/. Die Tropopause stellt dann eine Grenzschicht dar, was Pannetier /7/ durch Messungen nachweisen konnte. Der Kr-85-Gehalt der Stratosphäre änderte sich von 1964-1967 kaum, während die Konzentration in der Troposphäre im selben Zeitraum um 30% zunahm und eine nahezu homogene Verteilung

(in Ci Kr-85/cm³ Kr) über der Höhe zeigte. Die Tropopause kann somit in guter Näherung als eine Grenzschicht zwischen dem Krypton aus stratosphärischen Kernwaffenexplosionen und dem aus WAA freigesetzten Kr-85 verstanden werden. Pannetier /7/ schließt weiter aus Kr-85-Messungen, daß nur ein geringer Austausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre über den Polen stattfindet.

Es verbleibt als wesentlicher Einfluß für die globale Verteilung von Kr-85 noch die horizontale (meridionale) Luftbewegung. Die Beschreibung des meridionalen Luftaustausches innerhalb der Troposphäre erfolgt mit Hilfe der klassischen Dreizellen-Theorie: Die durch die einfallende Sonnenenergie in verschiedenen Breitenkreiszonen verursachten unterschiedlichen Anteile der Energiebilanz des Systems Erde-Atmosphäre machen meridionale Energietransporte erforderlich /206/. Zur Herstellung des globalen Gleichgewichts können solche riesige Wärmeenergie Transporte nur durch Luftbewegungen ermöglicht werden, was auf jeder Seite des Äquators zur Ausbildung von 3 "geschlossenen" Zirkulationszellen führt (siehe Abb.8-4). Die beiden Zellen zwischen 30 °N und 30 °S werden in der Meteorologie HADLEY-Zellen genannt. Daran schließen sich die FERREL-Zellen an. Die Zirkulation über den Polkappen wird durch das Absinken der stark abgekühlten Luft über den polaren Gebieten hervorgerufen /206/. Im folgenden wird der Einfluß der polaren Zellen vernachlässigt.

Nach Lal und Rama /207/ erfolgt eine komplette Vermischung innerhalb der Zellen binnen ca. 2 Wochen, während der meridionale Austausch zwischen HADLEY und FERREL-Zelle sehr stark von der Jahreszeit abhängt. So erfolgt eine schnelle Vermischung beider Zellen im Dezember und Januar binnen 2 Wochen, d.h. während dieses Zeitraumes kann jede Hemisphäre als eine geschlossene Zelle aufgefaßt werden. Im Juni, Juli hingegen beträgt die Austauschzeit ca. 4 Monate. Wie aus Abb.8-4 deutlich wird, stellt der Äquator ebenfalls eine Grenze für den Austausch der troposphärischen Luft dar. Nach Lal und Rama /207/ sind die jahreszeitlichen Veränderungen

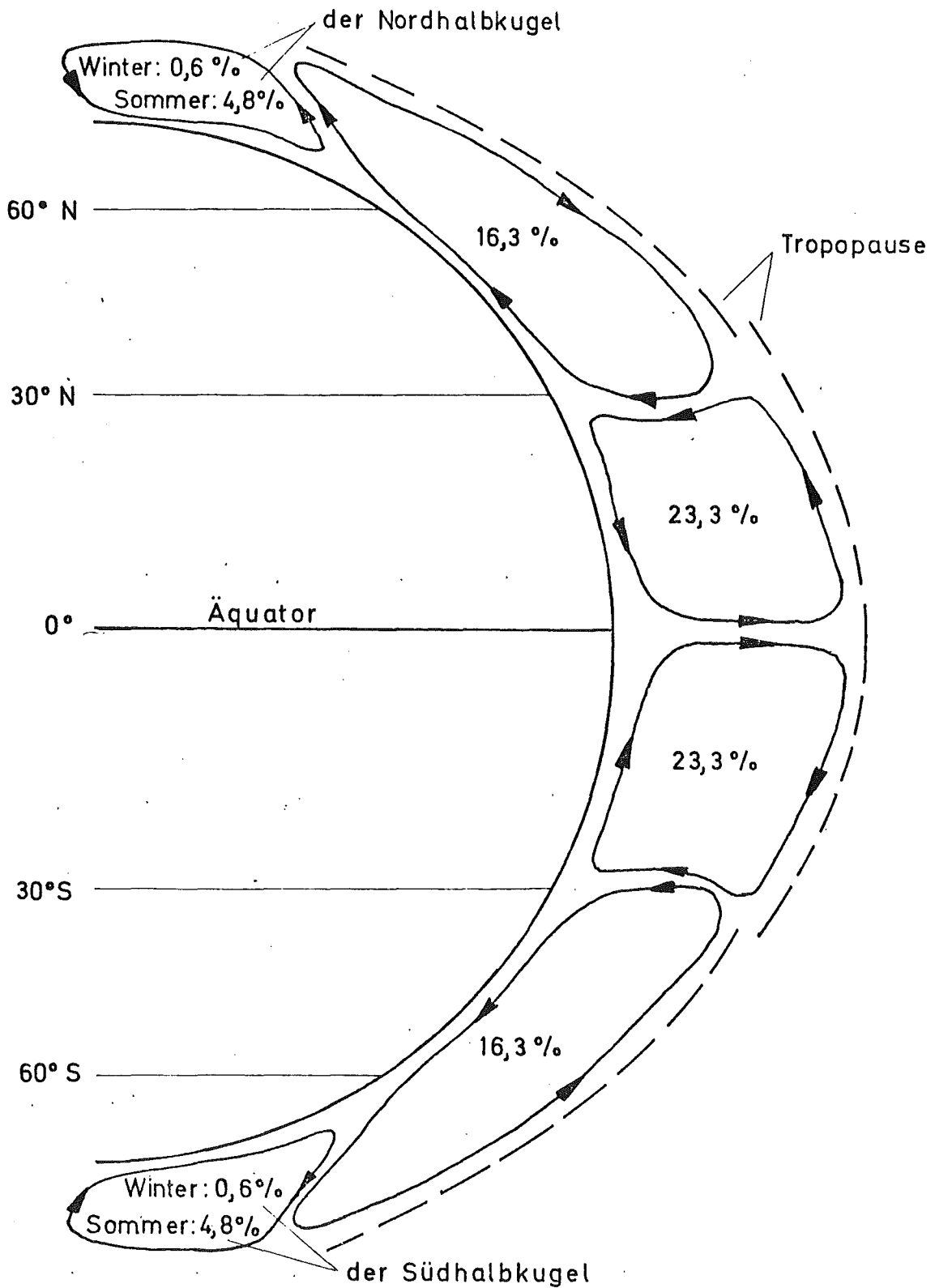


Abb.8-4 Dreizellenmodell der Troposphäre /206,207,208/ mit Angabe des prozentualen Anteiles an der Gesamtmasse der Atmosphäre von $5 \cdot 10^{18}$ kg /7/

der Austauschzeiten sehr groß und können nicht genau genug ermittelt werden. Auch in der übrigen Literatur variieren die entsprechenden Werte für die mittlere Verweilzeit in einer Hemisphäre sehr stark in einem Bereich von 7 Monaten /7/, über 0,9-4 Jahre mit einem Mittelwert von 2 Jahren /30,209/, bis zu 3 Jahren /210/.








Aufgrund dieser verschiedenen Annahmen unterscheiden sich auch die jeweils in der Literatur für die globale Kr-85-Verteilung verwendeten Modelle und Verweilzeiten. Tabelle 8-4 gibt einen Überblick. Zwei Extremfälle seien herausgestellt:

Modell 1: Ein Luftaustausch zwischen den Hemisphären findet nicht statt. Die Austauschzeiten über den 30. Breitengrad liegen bei 3 Monaten. Da Kr-85 überwiegend im Band $30^{\circ}\text{N} - 60^{\circ}\text{N}$ freigesetzt wird (Abb.8-5, 8-7, 8-8) führt dieses Modell zu einer relativ hohen Dosis im Norden.

Modell 7: Kr-85 verteilt sich sofort homogen in der gesamten Troposphäre, was im Norden zu einer entsprechend niedrigeren Dosis führt.

Um die Einflüsse der in der Literatur verwendeten verschiedenen Parameter beurteilen zu können, wurde eine Vergleichsstudie aller in Tabelle 8-4 angeführten Modelle durchgeführt.

Tabelle 8-4 In der Literatur angegebene und denkbare Modelle des globalen Luftaustausches

Symbol	Modell Nr.	Austauschfaktoren* $\left[\frac{1}{a} \right]$ (mittlere Verweilzeit)			Literatur
		C_{12}	C_{23}	C_{34}	
	1	4 (3 Monate)	0 (kein Aust.)	4 (3 Monate)	Knox, Peterson /211/
	2	18 (20 Tage)	0 (kein Aust.)	18 (20 Tage)	Zindler /205/
	3	18 (20 Tage)	0,5 (2 Jahre)	18 (20 Tage)	Bryant /13/ Junge /209/
	4	4 (3 Monate)	1,7 (7 Monate)	4 (3 Monate)	Lal und Rama /207/ Bryant /10/
	5	3 (4 Monate)	18 (20 Tage)	1,5 (8 Monate)	Pannetier /212/
	6	18 (20 Tage)	1,7 (7 Monate)	18 (20 Tage)	Zusammenstellung aus /7,30,207,209/
	7	18 (20 Tage)	18 (20 Tage)	18 (20 Tage)	Diethorn, Stocko /12/ Gerken /4/

*) C_{12} = Austauschfaktor auf der nörlichen Hemisphäre
 C_{23} = " über dem Äquator
 C_{34} = " auf der südlichen Hemisphäre

- Aus rechentechnischen Gründen wurde für $C_{ij} = \infty$ (sofortige Durchmischung) $C_{ij} = 18$ gesetzt. Der maximale Fehler ist dadurch $\leq 3,75\%$

8.2.2. Voraussichtliche Kr-85-Produktion und momentane Kr-85-Konzentration

Zur Abschätzung der globalen Strahlenbelastung durch Akkumulation von Kr-85 bis zum Jahr 2000 müssen Aussagen über die Kr-85-Produktion bzw. Abgabe an die Atmosphäre getroffen werden und die momentanen Konzentrationswerte festgestellt werden.

Voraussichtliche Kr-85-Produktion

Es wird von der - einer Arbeit von Grathwohl /213/ entnommenen und in den Abb.8-5 und 8-6 wiedergegebenen - Prognose der Kernkraftwerkentwicklung der Welt ausgegangen. Die KKW-Kapazität wird auf die Zonen 30 °N - 60 °N (Westeuropa, Nordamerika, UDSSR) und 30 °S - 30 °N (Entwicklungsländer, Australien, Japan, Neuseeland, Südafrika) aufgeteilt (Abb.8-7). Die Zellen 0°-30°N und 0°-30°S werden jeweils mit der Hälfte der Gesamtkapazität der Zone 30°S-30°N gefüllt. In der Zelle 30°S-60°S wird keine Kr-85-Produktion angenommen. Tabelle 8-5 gibt auf der Grundlage der Tabellen 7-2 und 7-3 an, welche Kr-85-Aktivität pro Jahr durch den Betrieb (Lastfaktor 0,8) der verschiedenen KKW-Typen pro 1000 MWe Leistung entsteht.

Tabelle 8-5 Durch verschiedene 1000 MWe-KKW-Typen jährlich entstehende Kr-85-Aktivität

KKW-Typ	LWR	PHWR	AGR	HTGR	LMFBR
Kr-85-Aktivität · 10 ⁶ $\left[\frac{Ci}{a \cdot 1000 \text{ MWe}} \right]$	0,417	0,54	0,28	0,31	0,29

Bei dem in Abb.8-8 dargestellten Verlauf der jährlichen globalen Kr-85-Produktion wurde berücksichtigt, daß nicht schon im ersten Reaktorbetriebsjahr Brennstoff mit 26000 MWd/t

Abb.8-5 Prognose der installierten Kernkraftwerkskapazität der Welt und einzelner Gebiete /213/

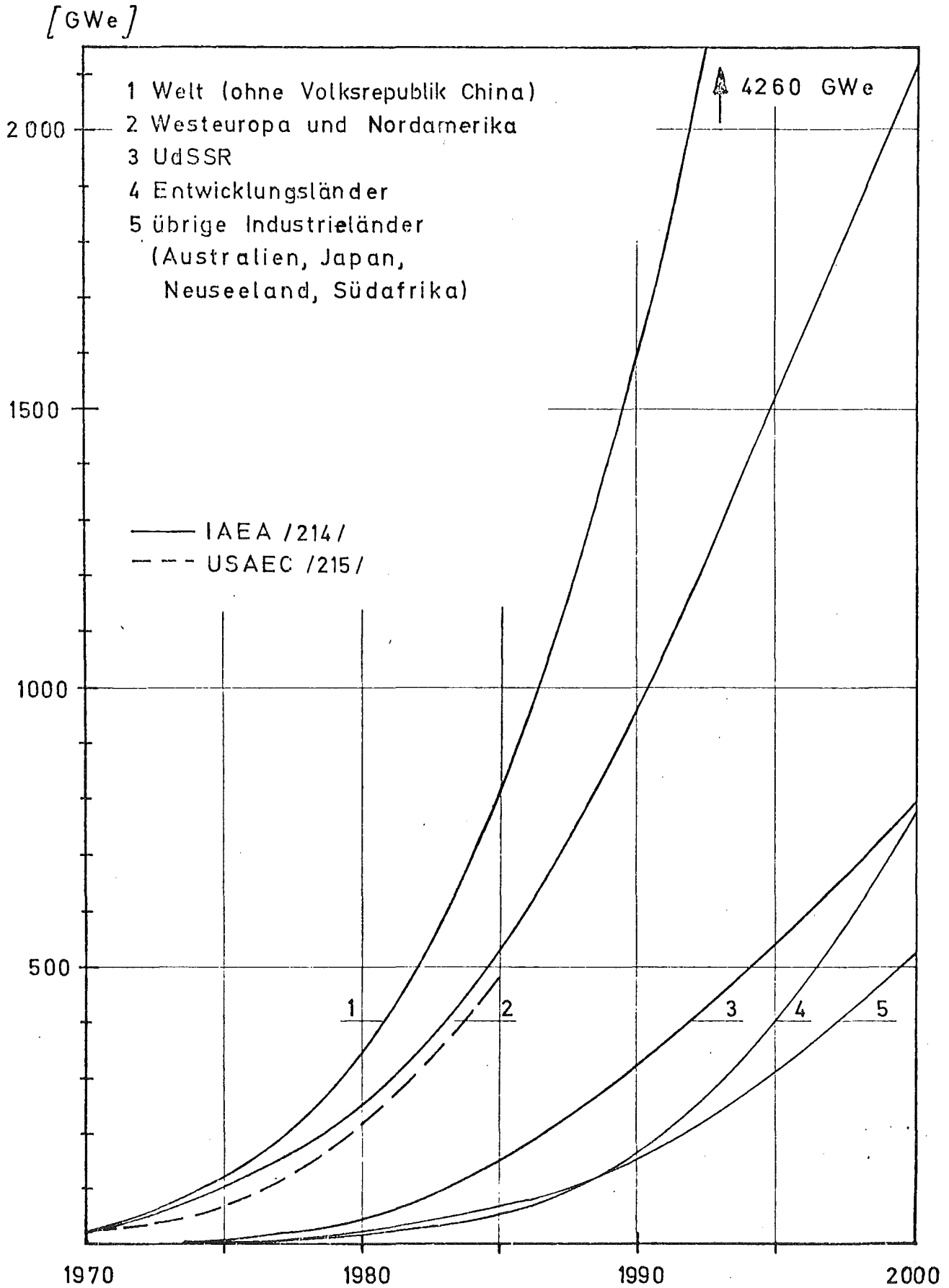
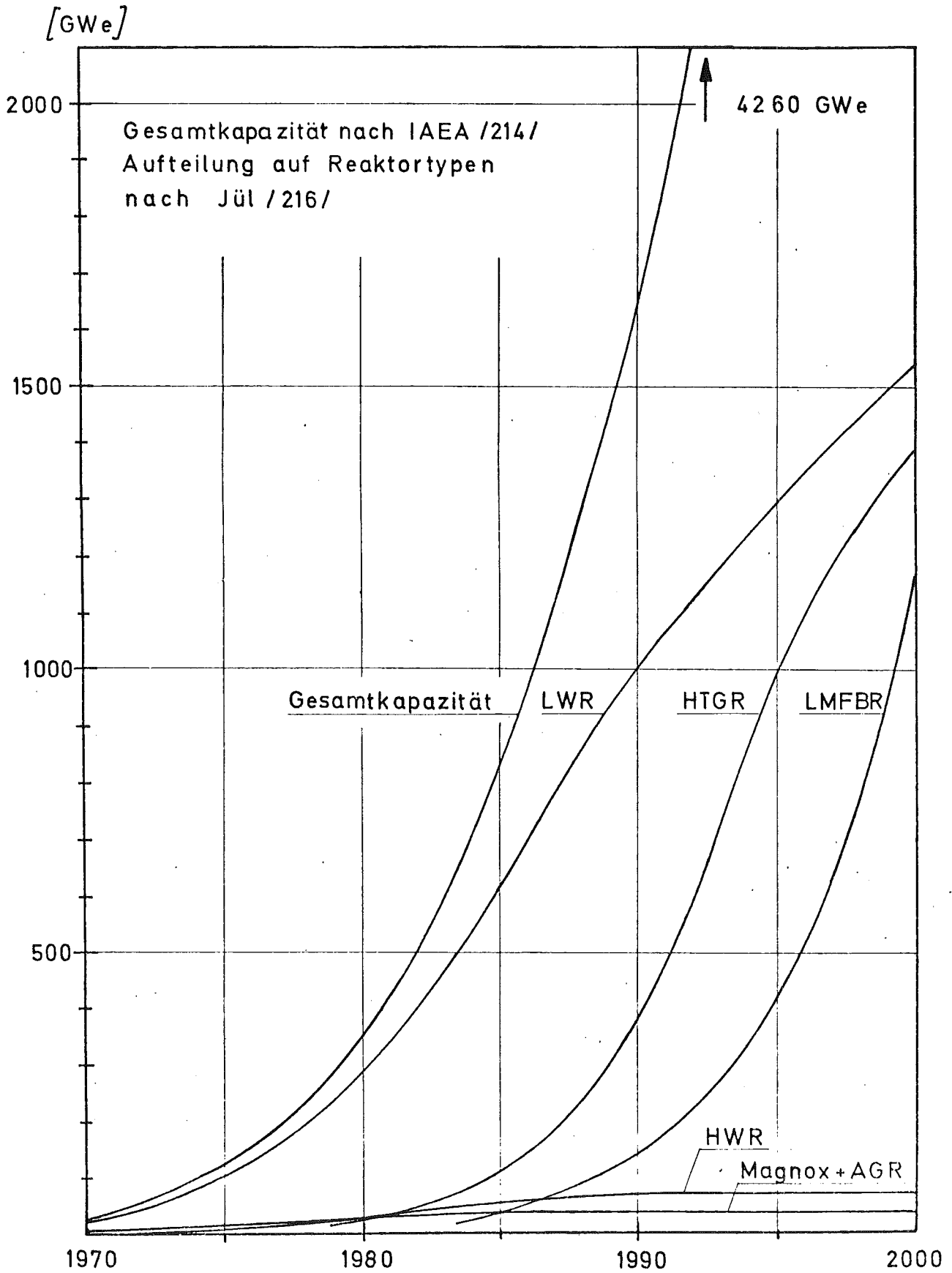


Abb.8-6 Anteil der einzelnen Reaktortypen an der installierten Kernkraftwerkskapazität der Welt /213/



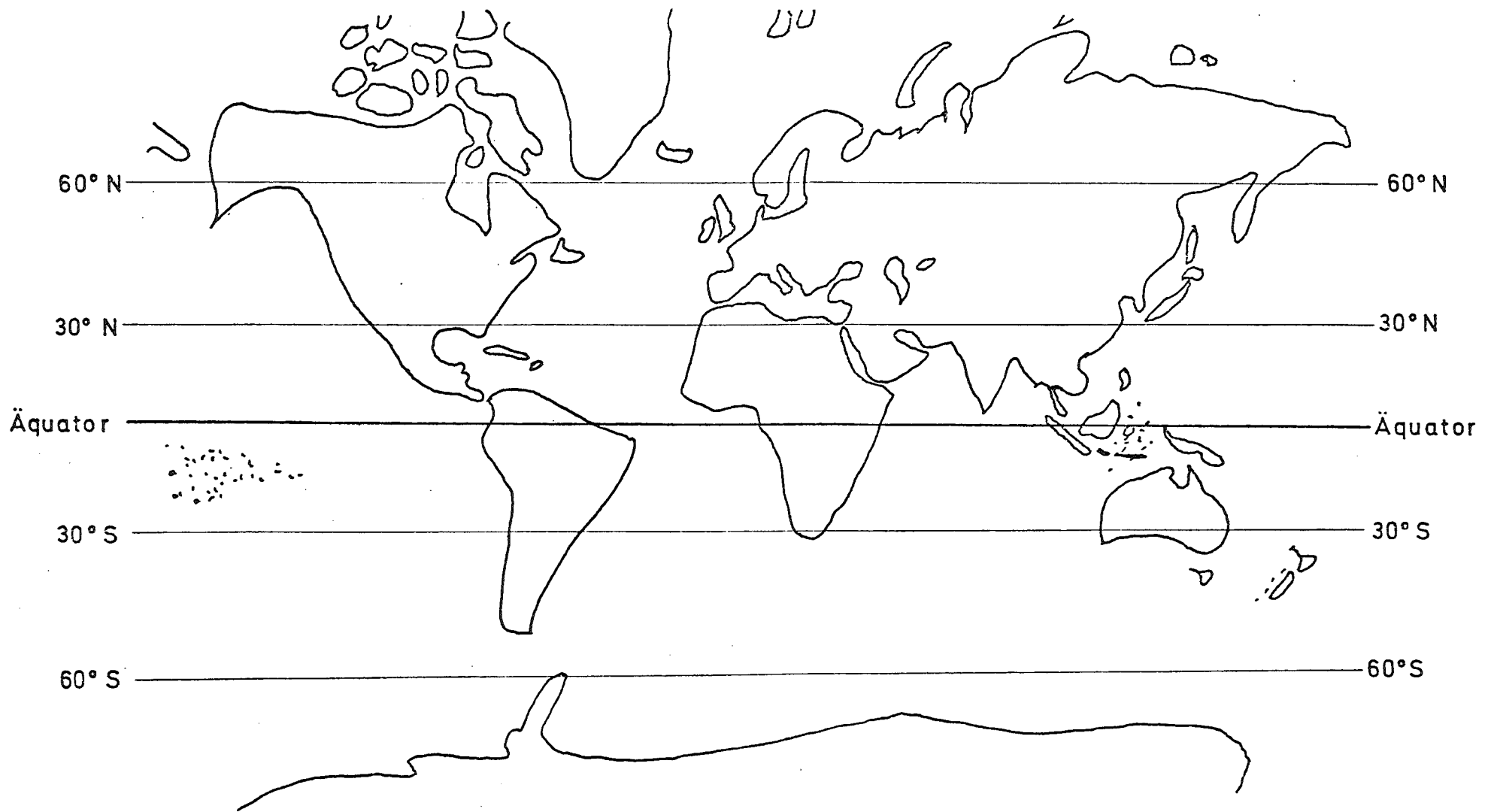
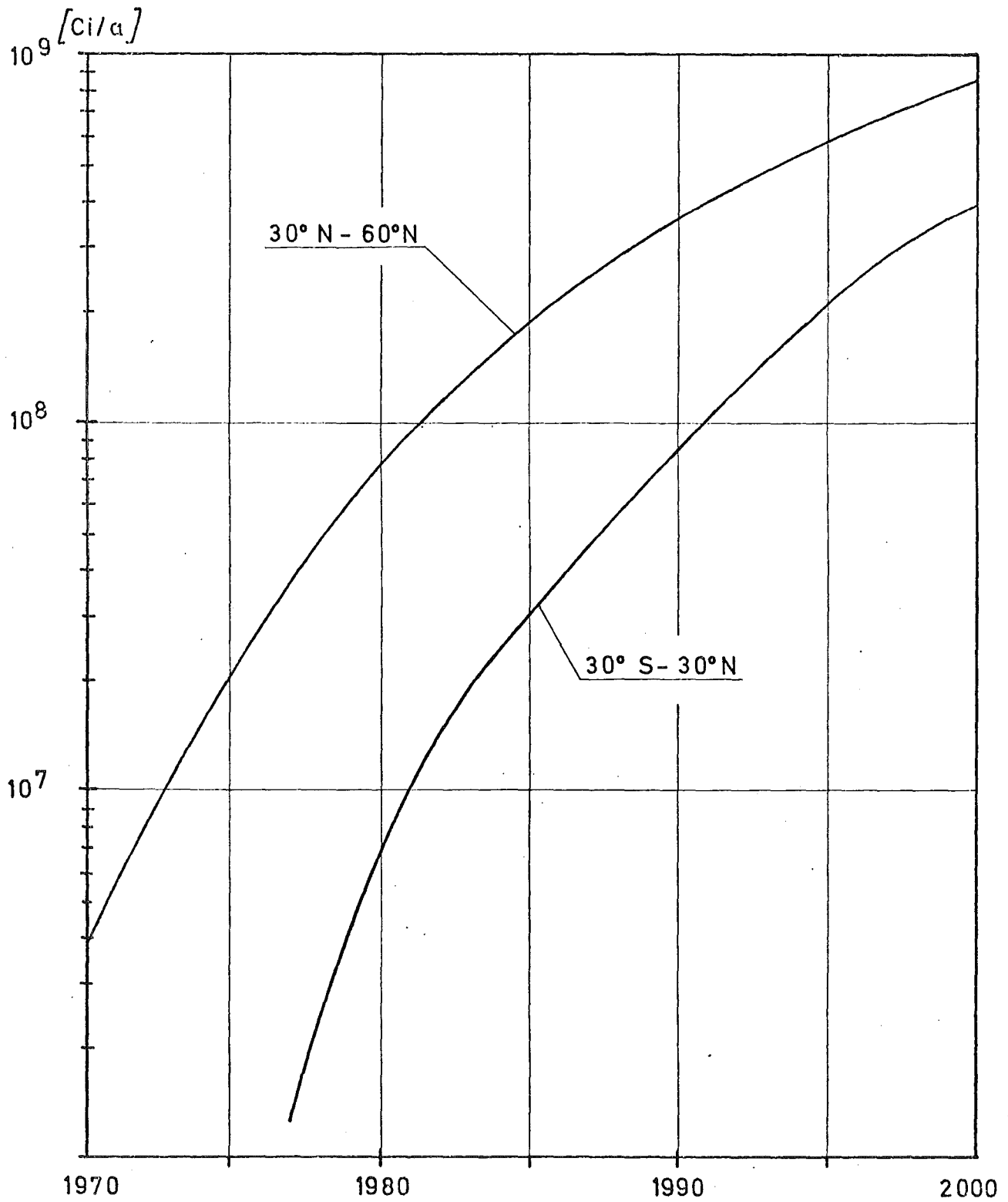


Abb.8-7 Lage der Industrie- und Entwicklungsländer in den Zonen südlicher und nördlicher Breite

Abb.8-8 Jährliche globale Kr-85-Produktion zwischen den Breitengraden bis zum Jahr 2000 ($30^{\circ}\text{S}-60^{\circ}\text{S}$: $0 \frac{\text{Ci}}{\text{a}}$)



Abbrand (LWR) zur Aufarbeitung kommt, sondern daß erst nach ca. 3-4 Jahren der Endabbrand des Gleichgewichtskerns erreicht ist. Dies geschah durch Versetzen der Kr-85-Produktion (Abb.8-8) gegenüber dem Zubau von Reaktoren (Abb.8-5) um 2 Jahre.

Kr-85-Abgaberaten

Da aus KKW nur etwa 1⁰/oo des gebildeten Kr-85 freigesetzt wird, soll im folgenden angenommen werden, daß die produzierte Kr-85-Menge vollständig in die WAA gelangt. Unter der Voraussetzung, daß in WAA auch in Zukunft keine Edelgasabtrennanlagen eingebaut werden, entspricht die Kr-85-Produktion der Abb.8-8, der jährlichen Abgabe durch Wiederaufarbeitungsanlagen.

In Zukunft wird man jedoch Edelgasabtrennanlagen zur Vermeidung lokaler Strahlenbelastung in WAA einbauen, wobei der Zeitpunkt des weltweiten großtechnischen Einbaues noch nicht festliegt. Russel und Galpin /180/ schätzen, daß ein Kr-Abtrennsystem in eine WAA etwa ab 1975 eingebaut werden kann. Ein Zeitraum bis 1978 wird nochmals für den Übergang von der Pilotanlage zur großtechnischen Anlage benötigt werden. In der Parameterstudie wird deshalb der Beginn der Edelgasabtrennung ($DF = 10^3$) in allen WAA über die Jahre 1970, 1975, 1980 und 1985 variiert.

Wie in den Abschnitten 7.2.2. und 8.1. erläutert, ist bei Erreichen eines Dekontaminationsfaktors von 10^3 in WAA, die Abgaberate etwa gleich der aus KKW, in denen keine Abtrennanlagen installiert sind. Eventuell wird man jedoch in Zukunft auch in KKW Abtrennanlagen einbauen, erste Anlagen sind bestellt (Kap.10.1.3.). Deshalb wurden in der Parameterstudie auch die Auswirkungen von Edelgasabtrennanlagen in KKW berücksichtigt.

Anfangswerte der Kr-85-Konzentration

Aus in Abb.8-12 wiedergegebenen Messungen der Kr-85-Konzentrationen in den Vereinigten Staaten /217,218/ und in der BRD /63,219/ ergibt sich ein Wert von $14 \frac{\text{pCi}}{\text{m}^3}$ Luft im Normzustand für das Jahr 1970. Messungen der Kr-85-Konzentration in anderen Breitengraden liegen nur aus dem Jahre 1964 vor /7,11/ (s. Abb.8-13). Die weltweite Verteilung der Kr-85-Konzentration für 1970 wird deshalb proportional zu der von 1964 gemessenen angenommen. Damit ergeben sich für 1970 folgende Konzentrationen:

Im Band	eine Kr-85-Konzentration von
30 N - 60 °N	$14 \frac{\text{pCi}}{\text{m}^3}$
30 °S - 30 °N	$13,2 \frac{\text{pCi}}{\text{m}^3}$
60 °S - 30 °S	$11 \frac{\text{pCi}}{\text{m}^3}$

Den Angaben in Abb.8-4 zufolge beträgt die Luftmasse der Ferrelzelle $8,15 \cdot 10^{17}$ kg und die der Hadleyzelle $1,16 \cdot 10^{18}$ kg. Rechnet man diese Massen auf das Volumen der Luft im Normzustand um, so ergibt sich für die Ferrelzelle ein Volumen von $6,3 \cdot 10^{17} \text{ m}^3$ und für die Hadleyzelle ein Volumen von $9,1 \cdot 10^{17} \text{ m}^3$. Damit errechnet sich der Aktivitätsgehalt an Kr-85 im Jahre 1970 zu

$8,8 \cdot 10^6$ Ci	im Bereich von	30 °N - 60 °N
$1,2 \cdot 10^7$ Ci	" "	" 0 °N - 30 °N
$1,2 \cdot 10^7$ Ci	" "	" 0 °N - 30 °S
$6,9 \cdot 10^6$ Ci	" "	" 30 °S - 60 °S

8.2.3. Parameterstudie

Das sich aus obigen Annahmen ergebende System von 4 Differentialgleichungen

$$\frac{dN_1}{dt} = C_{21}N_2 - C_{12}N_1 - \lambda N_1 + P_1 \quad (30^\circ\text{N}-60^\circ\text{N})$$

$$\frac{dN_2}{dt} = C_{12}N_1 - C_{21}N_2 + C_{32}N_3 - C_{23}N_2 - \lambda N_2 + P_2 \quad (0^\circ\text{N}-30^\circ\text{N})$$

$$\frac{dN_3}{dt} = C_{23}N_2 - C_{32}N_3 + C_{43}N_4 - C_{34}N_3 - \lambda N_3 + P_3 \quad (0^\circ\text{N}-30^\circ\text{S})$$

$$\frac{dN_4}{dt} = C_{34}N_3 - C_{43}N_4 - \lambda N_4 \quad (30^\circ\text{S}-60^\circ\text{S})$$

wurde mit Hilfe eines Rechenprogrammes^{*)} gelöst, wobei

N_i $\lfloor \overline{C_i} \rfloor$ = Aktivitätsinventar der Zelle i

$C_{i,j}$ $\lfloor \frac{1}{a} \rfloor$ = Austauschfaktoren für den Übergang von Zelle i zu Zelle j (nach Tabelle 8-4)

λ $\lfloor \frac{1}{a} \rfloor$ = Zerfallskonstante von Kr-85

P_i $\lfloor \frac{C_i}{a} \rfloor$ = jährliche Aktivitätsabgabe aus WAA in Zelle i

In Abb.8-9 sind die nach den Modellen 1, 3, 5 und 7 zu erwartenden Kr-85-Konzentrationen für den Bereich 30°N-60°N gezeigt. Die Ergebnisse der übrigen Modelle liegen jeweils zwischen den angegebenen Kurven. Startjahr der Berechnungen war das Jahr 1970. Abtrennanlagen wurden hier noch nicht berücksichtigt. Wie ersichtlich, weichen die Ergebnisse wenig voneinander ab. Die folgenden Berechnungen, die den Einfluß von Abtrennanlagen zeigen sollen, wurden mit Hilfe des Modells 5 durchgeführt, da dieses u.a. mit den Messungen der Jahre 1971 und 1972 übereinstimmt.

^{*)} Für die Aufstellung des Rechenprogrammes bedanke ich mich bei Herrn Dr. A. Bayer, ebenso gilt mein Dank für die Programmierhilfe Herrn DM. W. Höbel.

Abb.8-9 Voraussichtliche Kr-85-Konzentration im Bereich 30°N-60°N berechnet für verschiedene Luftaustauschmodelle und DF=1

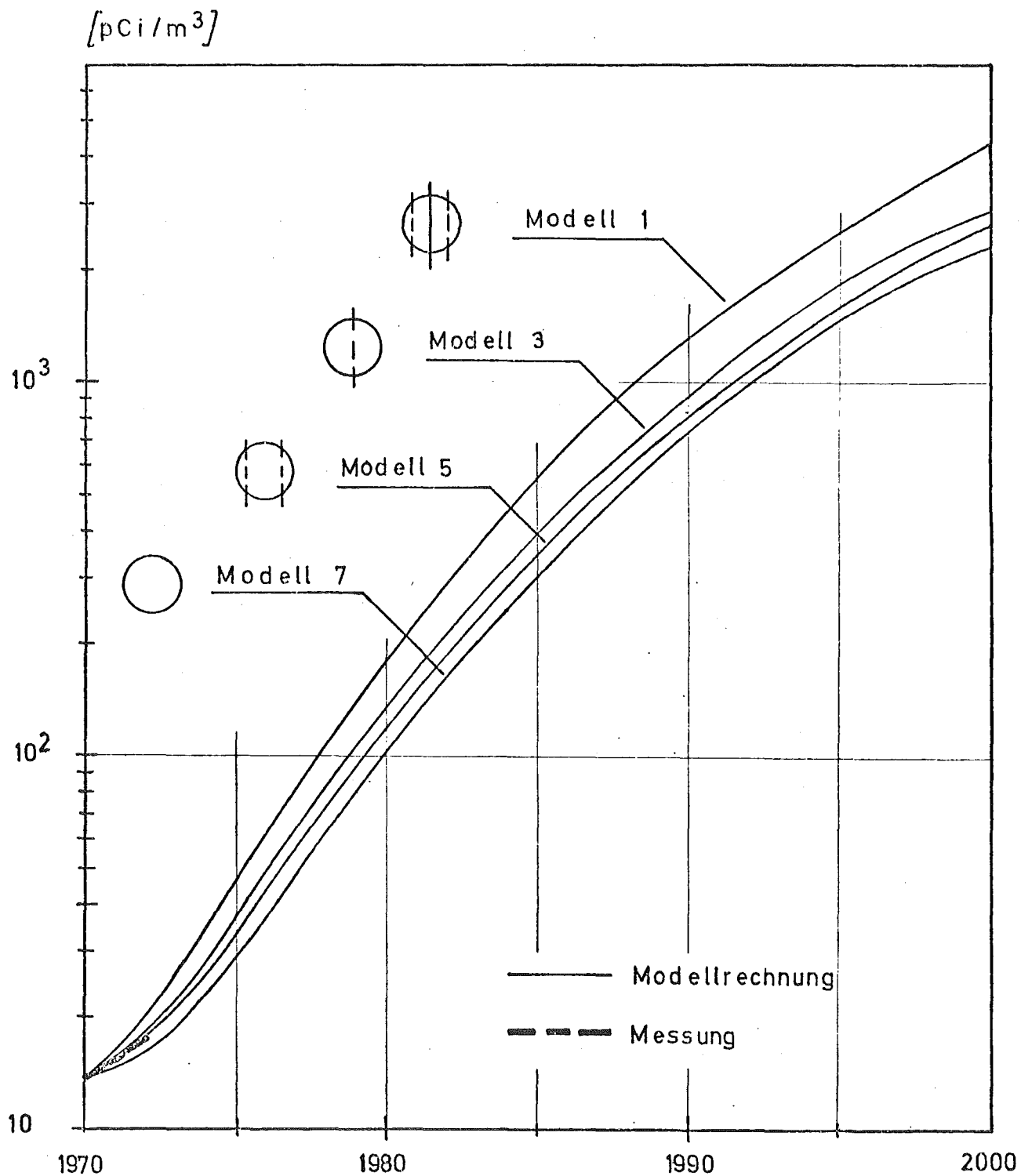


Abb.8-10 zeigt die bis zum Jahr 2000 zu erwartende Kr-85-Konzentration bei verschiedenen Einsatzzeiten von Abtrennanlagen ($DF = 10^3$). Weiterhin lassen sich die bis zum Jahr 2000 zu erwartenden β - und γ -Dosen entnehmen. Es zeigt sich, daß eine vollständige Abgabe der gesamten Kr-85-Produktion an die Atmosphäre im Jahr 2000 eine β -Dosis von $4,2 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ zur Folge hätte, während die Gonaden- und Ganzkörperdosis (γ -Dosis) bei $0,1 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ liegt. Zum Vergleich: für den Bereich $30^\circ\text{S}-60^\circ\text{S}$ errechnet sich eine β -Dosis im Jahr 2000 von $4,0 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$.

Billigt man der Kerntechnik als Ganzes eine Dosis von 2 rem in 30 Jahren (entsprechend 60 mrem pro Jahr) /1/ zu, so werden durch das vollständig freigesetzte Kr-85 im Jahr 2000 etwa 7% dieser Dosis beansprucht.

Da, wie in Kap.8.1. gezeigt, in der Umgebung von WAA die vorgeschriebenen Grenzwerte überschritten werden, ist bereits vor der Jahrhundertwende der Einbau von Abtrennanlagen notwendig, so daß dadurch auch mit einer niedrigeren globalen Belastung durch Kr-85 zu rechnen ist. Die sich ergebende Strahlenbelastung für den Einbau von Edelgasabtrennung in WAA in den Jahren 1975, 1980 und 1985 sind Abb.8-10 zu entnehmen. Es zeigt sich, daß eine zusätzliche Edelgasabtrennung ($DF = 10^3$) bei KKW nur geringen Einfluß hat. Werden, wie dies zu erwarten ist /180,221/, ab 1978 die ersten Abtrennanlagen ($DF = 10^3$) in WAA eingebaut, so wird nach Meinung des Autors die Belastung bis zum Jahr 2000 unter $0,3 \text{ mrem/a}$ bleiben.

Abb.8-11 zeigt den Verlauf der durch die Entwicklung der Kerntechnik zu erwartenden Dosis im Vergleich mit der durch natürliches Kr-85 und der durch Kernwaffentests bedingten Kr-85-Dosis. Die Strahlenbelastung durch den natürlichen Kr-85-Pegel und durch oberirdische Kernwaffentests ist demnach vernachlässigbar klein gegenüber der Belastung, die durch den Betrieb von kerntechnischen Anlagen entsteht.

Abb.8-10 Voraussichtliche globale Kr-85-Konzentration und Dosis im Bereich 30°N-60°N für verschiedene Einsatzzeiten einer Abtrennanlage mit $DF=10^3$ bei 80% Kapazitätsausnutzung

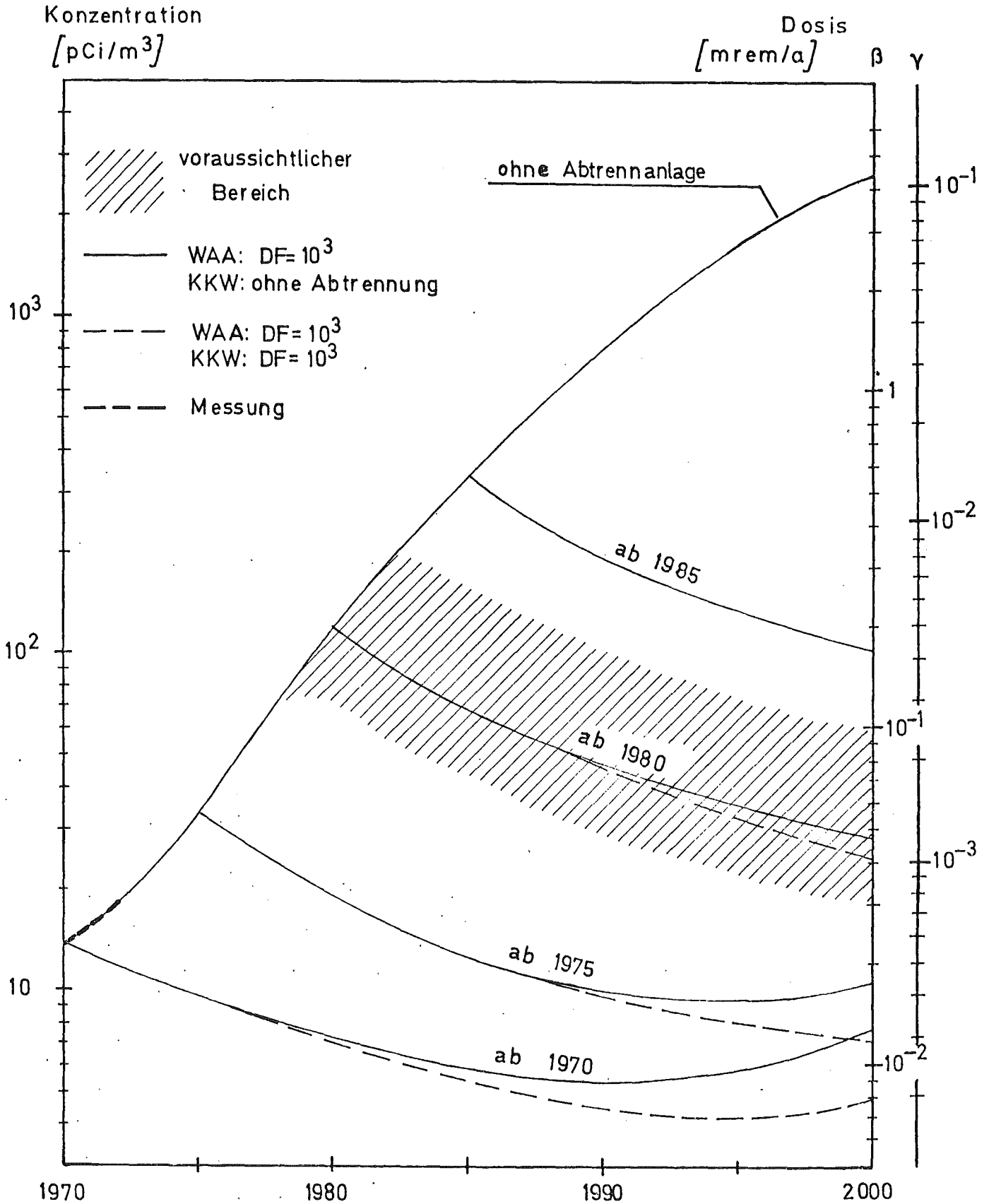
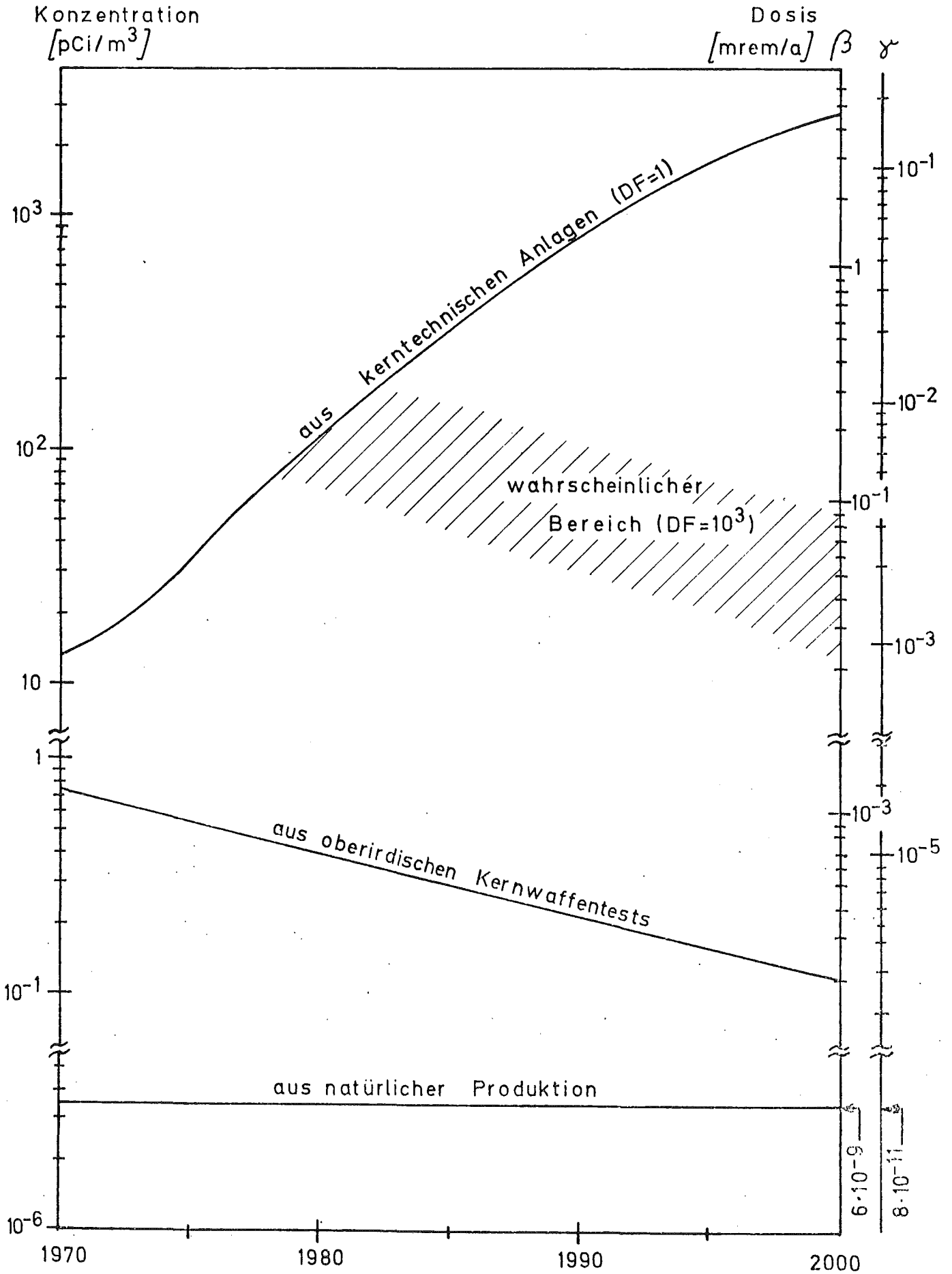


Abb.8-11 Globale Kr-85-Konzentration und Dosis bis zum Jahr 2000 aus natürlichen und künstlichen Quellen



8.2.4. Weltweite Kr-85-Messungen

Die seit 1954 auf der Nordhalbkugel gemessenen Kr-85-Konzentrationen sind in Abb. 8-12 wiedergegeben. Die globale Belastung durch radioaktives Kr-85 nahm demnach ständig zu und erreichte 1972 das Doppelte des Wertes von 1964. Geringfügige Unterschiede zwischen den jährlichen Messungen in den USA /217/ und der BRD /63/ liegen innerhalb lokal bedingter Schwankungen.

Die einzige gemessene Kr-85-Verteilung über nahezu alle Breitengrade der Erde ist in Abb.8-13 wiedergegeben. Pannetier /7,212/ führt den starken Anstieg im Süden auf die starke Kontamination durch Kernwaffenversuche, den verstärkten Austausch zwischen Tropo- und Stratosphäre und auf die geringe Masse der polaren Troposphäre zurück.

Abb.8-12 Gemessene Kr-85-Aktivität auf der Nordhemisphäre
/nach 7,11,163,212,214,218,220,222,223,224/

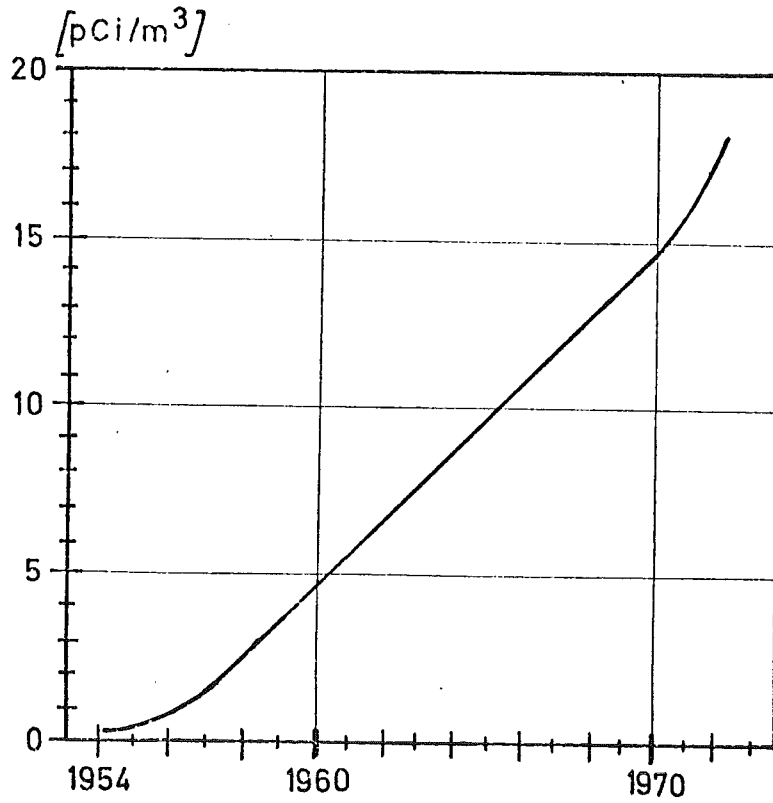
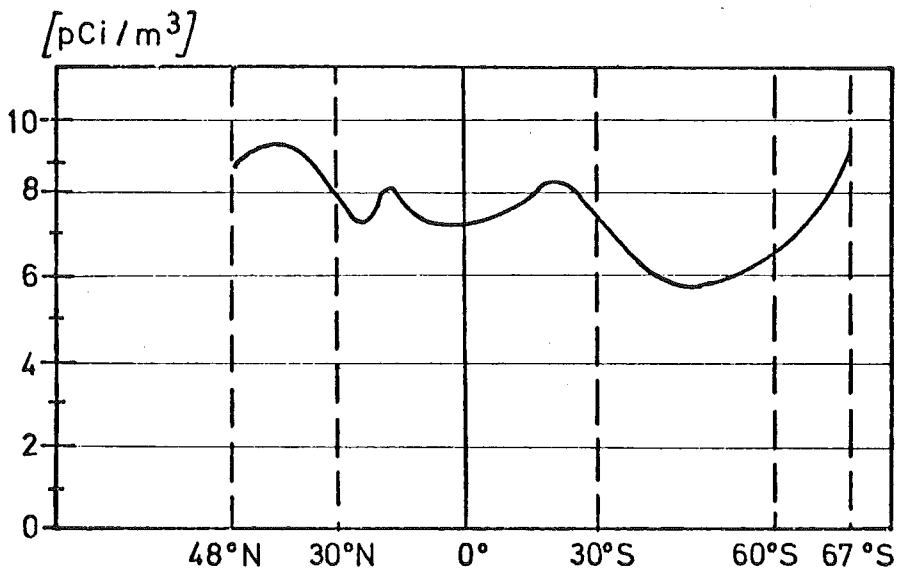


Abb.8-13 Ende 1964 über den Breitengraden gemessene Kr-85-Aktivität /7,11/



9. Zusammenfassung

Die radioaktiven Isotope der Edelgase Xenon und Krypton stellen eine wichtige Gruppe der Spaltprodukte dar, wobei das Krypton-85 wegen seiner langen Halbwertszeit von 10,76 a eine Sonderstellung in dieser einnimmt.

Quellen der genannten Isotope sind:

- a) die natürliche Entstehung durch spontane Spaltung schwerer Elemente und durch Reaktionen von stabilen Isotopen mit kosmischen Teilchen. Aufgrund der relativ kurzen Halbwertszeit aller übrigen Isotope ist nur das Krypton-85 von Bedeutung. Der natürliche Gleichgewichtswert in der Luft beträgt $3,5 \cdot 10^{-6} \frac{\text{pCi}}{\text{m}^3}$.
- b) die Entstehung bei Kernwaffenexplosionen. Diese begannen 1945 und wurden 1963 zum größten Teil eingestellt, so daß heute ebenfalls nur noch das langlebige Krypton-85 eine Rolle spielt. Für das Jahr 1970 wurde eine Konzentration durch Kernwaffentests von $0,7 \frac{\text{pCi}}{\text{m}^3}$ abgeschätzt.
- c) die Freisetzung aus in Betrieb befindlichen kerntechnischen Anlagen. Hier ist zu unterscheiden zwischen der lokalen Konzentration in unmittelbarer Nachbarschaft einer kerntechnischen Anlage und der globalen Auswirkung einer Edelgasabgabe. Während der Einfluß der kurzlebigen Isotope auf die Umgebung der Quelle beschränkt ist, besitzt das Krypton-85 globale Bedeutung.

Besonders die Freisetzung aus kerntechnischen Anlagen wurde in dieser Arbeit ausführlich behandelt, da man aufgrund der prognostizierten Expansion der Kerntechnik in den nächsten Jahrzehnten der radiologischen Belastung durch die Kerntechnik kritisch begegnet.

Es wurde die Erzeugung in den Brennelementen von Kernreaktoren und die Freisetzung aus diesen aufgrund der bisherigen Erfahrungen abgeschätzt. Für die verschiedenen Typen von Kernkraftwerken wurden schließlich unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Aktivitäten aus Kühlmittelleckage und Abgasanlage die jährlichen Abgaberraten der einzelnen Isotope berechnet und mit bisher gemessenen Abgaberraten verglichen. Es zeigt sich, daß bei Normalbetrieb moderner Druckwasser-, Siedewasser-, Hochtemperatur- und Schnellbrüterreaktoren mit einer Rückhaltezeit von etwa 50 d und einer Blockgröße von 1000 MWe ohne spezielle Abtrennanlage die lokale radiologische Belastung in der Größenordnung von $0,1 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ liegt. Das bedeutet, daß z.B. gegenüber älteren amerikanischen Siedewasserreaktoren durch Verlängerung der Rückhaltezeit eine Reduktion der radiologischen Belastung um ca. 2 Größenordnungen erreicht wurde.

In der Umgebung von großen Wiederaufarbeitungsanlagen (1500 t/a) kann eine weitaus größere radiologische Belastung auftreten. Da der größte Anteil der erzeugten Krypton- und Xenonisotope in den Wiederaufarbeitungsanlagen anfällt, wurde eine Parameterstudie durchgeführt, um den Einfluß von Abklingzeiten und Edelgasabtrennanlagen zu studieren. Es zeigt sich, daß selbst nach Abklingen aller kurzlebigen Edelgasisotope bei der Freisetzung aus einem 100 Meter hohen Kamin noch ein Dekontaminationsfaktor in der Größenordnung von $DF \approx 10-100$ erforderlich ist, um die radiologische Belastung in der Umgebung kleiner als 30 mrem/a zu halten.

Die Zunahme der globalen Konzentration von Krypton-85, die im Jahr 1970 aufgrund der Freisetzung aus kerntechnischen Anlagen bereits bei 14 pCi/m^3 lag, wurde unter Zugrundelegung der prognostizierten Entwicklung der Kerntechnik und unter Verwendung verschiedener atmosphärischer Modelle bis zum Jahr 2000 berechnet. Unter der Annahme, daß keine Abtrennanlagen zum Einsatz kommen, würde die Kon-

zentration dann etwa $25 \cdot 10^3 \frac{\text{pCi}}{\text{m}^3}$ betragen, was einer Dosis von ca. $4-5 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$ entspräche. Aufgrund der derzeitigen technischen Entwicklung wird jedoch durch den in den Achtziger Jahren geplanten großtechnischen Einsatz von Abtrennanlagen in Wiederaufarbeitungsanlagen bis zum Jahr 2000 die Konzentration den Wert $200 \frac{\text{pCi}}{\text{m}^3}$ ($\cong 0,35 \frac{\text{mrem}}{\text{a}}$) nicht überschreiten. Das Problem einer Endlagerung von Krypton-85 ist noch nicht endgültig geklärt, doch bestehen unter der Voraussetzung kostengünstiger Anreicherungsverfahren eine Reihe ausgezeichneter Verwendungsmöglichkeiten.

10. Anhang

10.1. Rückhaltung, Abtrennung und Lagerung von Krypton- und Xenonisotopen

10.1.1. Verzögerung

1) Verzögerungsstrecken

Die einfachste und billigste Methode, die relativ kurzlebige Aktivität aus der Gasreinigungsanlage vor Abgabe über den Kamin zu reduzieren, besteht in der Installation von langen Rohrleitungen.

Mit diesem Verfahren, das wegen der großen Menge an anfallendem Gas besonders bei SWR (Kap.6.3.2.) eingesetzt worden ist, wurden mit bisherigen Ausführungen Rückhaltezeiten von 2 bis 40 Minuten erreicht /65,134/. Beim SWR Gundremmingen (KRB) beträgt z.B. bei einem Abluftanfall von $\approx 10 \frac{\text{m}^3}{\text{h}}$ (nach Rekombination von Wasserstoff und Sauerstoff) die Verzögerungszeit in der 60 m langen Rohrleitung (NW 450) etwa 40 Minuten /132/.

2) Gasabklingbehälter

Eine andere Möglichkeit, die Aktivität vor der Freisetzung am Kamin zu reduzieren, ist das Sammeln der Abgase aus der Reinigungsanlage in Behältern, deren Inhalt erst nach entsprechender Abklingzeit über den Kamin abgegeben wird /65/. Dieses Verfahren wurde bisher bei DWR (Kap.6.3.1.) angewandt, da die anfallende Gasmenge aus der Primärwasserreinigung relativ gering ist und sich je nach Behältergröße Rückhaltezeiten von 30 bis 150 Tagen erreichen lassen /108, 134/. Der DWR Stade (KKS) ist z.B. mit 4 Gasabklingbehältern mit je 25 m^3 Volumen ausgestattet, die für einen Druck von 10 atü ausgelegt sind. Da ein Behälter in Reserve gehalten wird, lassen sich je nach Gasanfall und aufgewendetem Druck Rückhaltezeiten zwischen 15 und 30 Tagen erreichen /225/. Nach 30 Tagen Rückhaltezeit ist die Aktivität der

verbliebenen Xenonisotope und des Kr-85 etwa gleich groß. Wie aus Tabelle 6-9 ersichtlich, würde durch eine Rückhaltezeit von 60 Tagen die Edelgasabgabe am Kamin im wesentlichen auf Kr-85 beschränkt bleiben. Eine längere Lagerung, um auch Kr-85 abklingen zu lassen, würde nach Martin /108/ unverhältnismäßig hohe Kosten verursachen.

3) Befristete Adsorption an Aktivkohle bei Raumtemperatur

Als Verzögerungsstrecken dienen hier mit Aktivkohle gefüllte Kammern. Dieses Material hat die besten Adsorptionseigenschaften und erfordert geringste Mengen /28/. Die Aktivkohlebetten werden von dem zu dekontaminierenden Abluftstrom kontinuierlich durchströmt. Während das stets leichtere Trägergas (Argon, Helium, Luft) die Kohle in etwa einer Stunde durchströmt /226/, wird durch die adsorptive Wirkung das Durchströmen der schwereren Elemente Krypton und Xenon verzögert. Für Krypton und Xenon ergeben sich dabei unterschiedliche Rückhaltezeiten.

Die Vorgänge und Einflüsse bei der befristeten Adsorption von Krypton und Xenon an Aktivkohle sind sehr vielfältig und wurden eingehend untersucht. Einen guten Überblick über die dabei auftretenden Phänomene geben die Arbeiten von Förster /227/, Slansky /228/ und Kadoya /229/. Hier sei nur ein kurzer Überblick gegeben:

Die mittlere Rückhaltezeit t_m eines Edelgases läßt sich nach Förster /227/ mit folgender Formel berechnen:

$$t_m = k \cdot \frac{M}{Q}$$

wobei

t_m [h] = mittlere Rückhaltezeit

k [$\frac{\text{dm}^3}{\text{kg}}$] = dynam. Adsorptionskoeffizient des Edelgases

M [kg] = Masse der Aktivkohle

$$Q \left[\frac{\text{dm}^3}{\text{h}} \right] = \text{Volumenstrom des Gases bei Normalbedingungen}$$

Der dynamische Adsorptionskoeffizient k hängt von sehr vielen Parametern ab. Für die gute Auslegung eines Kohlebettes ist daher die Kenntnis der verschiedenen Einflüsse entscheidend. Je höher z.B. die Temperatur und der Druck des Gases oder der Wassergehalt der Kohle, desto kleiner ist k /229/. k hängt weiterhin vom Siedepunkt des Gases und von der Gaskonzentration ab /136,193,227/. Eine allgemeingültige Beziehung läßt sich nicht angeben. Das empirisch bestimmte Verhältnis von $\frac{k(\text{Xe})}{k(\text{Kr})}$ liegt je nach Wahl der anderen Parameter bei einer Temperatur von 300 °K zwischen 10 und 20.

Bei Raumtemperatur sind wegen obiger Zusammenhänge relativ große Kohlebetten erforderlich. Bei einer Rückhaltezeit von 70 Tagen für Xenon und von 3 Tagen für Krypton sind für einen 1100 MWe-SWR /128,230/ 5 Aktivkohletanks mit je 1,8 bis 2,7 m Durchmesser und 15 m Länge erforderlich. Für zur Zeit geplante SWR und DWR wird die Aktivkohleanlage so ausgelegt, daß sich Rückhaltezeiten von 2 Tagen für Krypton und 40 Tagen für Xenon ergeben /136/. Die Abgaszusammensetzung entspricht damit etwa der in den Kap.6.3.1. und 6.3.2. angegebenen.

4) Befristete Adsorption an Aktivkohle bei tiefer Temperatur

Bei tiefer Temperatur (bis -100 °C) ist nur die Hälfte bis ein Fünftel der bei Raumtemperatur nötigen Aktivkohlemenge erforderlich /136/. Nachteilig wirken sich die Kosten der Kühlung und wegen obiger Zusammenhänge die Empfindlichkeit gegen Temperatur- und Druckwellen aus. Somit ist das Verfahren gegenüber dem mit Raumtemperatur arbeitenden kaum konkurrenzfähig.

10.1.2. Abtrennung

Gelingt es, die Spalteredelgase Krypton und Xenon einschließlich des langlebigen Nuklides Kr-85 aus dem Abgasstrom nahezu vollständig abzutrennen, so ergeben sich wesentlich geringere Edelgasemissionen. Zu den verschiedenen Abtrennverfahren erschienen in letzter Zeit einige Übersichtsartikel /28,41,108,128,131,134,136,228,232,233/.

1) Tieftemperaturadsorption

Das Verfahren der Adsorption an Aktivkohle läßt sich bei diskontinuierlicher Arbeitsweise auch zur Abtrennung der Spalteredelgase verwenden /28/. Anlagen, die bei Raumtemperatur arbeiten, waren bisher nur im Labor in Betrieb und sind nur bei großen Verdünnungen wirksam. Wird dagegen bei der Temperatur des fl. Stickstoffes (-193°C) gearbeitet, so können wesentlich kleinere Kohlebetten verwendet werden. Durch wechselweise Erwärmung werden die Kohlebetten regeneriert und die dabei gewonnenen Edelgase auf Stahlflaschen abgefüllt. Der Dekontaminationsfaktor für Xenon beträgt 10^7 , der für Krypton 10^4 .

Wegen der hohen Betriebskosten, insbesondere für Kühlung, läßt dieses Verfahren jedoch keine wirtschaftliche Abtrennung und Rückgewinnung des Krypton und Xenon zu. Ein weiterer Nachteil besteht in der Gefahr der Ozonbildung, falls das Trägergas Sauerstoff enthält, was zu explosionsartigen Reaktionen führen kann /136/. Wasser und andere kondensierbare Stoffe, welche bei diesen Temperaturen ausfrieren und die Adsorber verstopfen würden, müssen vorher aus dem Abgas entfernt werden /128/.

Tieftemperaturadsorptionsanlagen waren bisher großtechnisch auf der N.S. Savannah und in der Idaho Chemical Processing Plant (ICCP) in Betrieb. Die Savannah-Anlage wurde demonstert, nachdem sich die Brennelemente als sicher erwiesen haben /136/. Wegen der hohen Betriebskosten wurde die ICCP-Anlage durch eine Tieftemperaturdestillationsanlage ersetzt.

2) Tieftemperaturdestillation

Die Destillation ist ein Trennverfahren, das abhängig ist von der Verteilung der Stoffe in der flüssigen und gasförmigen Phase /41/.

Zur Verflüssigung der Edelgase Krypton und Xenon muß aufgrund ihres niedrigen Siedepunktes das Abgas auf etwa -160°C abgekühlt werden /28/. Durch flüssigen Stickstoff, der dem Gas entgegenströmt, werden die Edelgase ausgewaschen und sammeln sich im unteren Teil der Säule. Nach mehrmaliger Destillation findet schließlich eine vollständige Fraktionierung statt, wobei zuerst Sauerstoff, dann Krypton, dann Xenon übergehen /28/. Wasser und kondensierbare Gase müssen vorher abgetrennt werden. Bei großen WAA besteht wiederum die Gefahr der Ozonbildung durch radioaktive Strahlung, was zu Explosionen führen kann /128/.

Die Anlagenkosten sind ungefähr die gleichen wie für Aktivkohleanlagen, doch verringert sich der Raumbedarf, da fl. Stickstoff als Absorbens verwendet wird. Die kompakte Tieftemperaturanlage der ICCP arbeitet seit Jahren mit einer Edelgasabtrennung von 83-95% zufriedenstellend und ist in einem Kühlbau mit einer Grundfläche von $0,28\text{ m}^2$ und einer Höhe von 3,65 m untergebracht /28,136/. In den USA werden von einigen Herstellern technische Anlagen kommerziell für SWR angeboten und Dekontaminationsfaktoren von 10^4 garantiert /136/. Vier Anlagen wurden in den USA bereits von Reaktorbetreibern bestellt (Newbold Island 1/2 und Limerick 1/2) /128,136/. Die Tieftemperaturdestillation ist damit eines der vielversprechendsten Abtrennverfahren /234,235/.

3) Selektive Absorption mit Lösungsmitteln

Auf der größeren Löslichkeit der Edelgase in einer Reihe von Lösungsmitteln beruht dieses Abtrennverfahren, bei dem die Edelgase aus dem Abgasstrom gleichsam ausgewaschen werden /28/. In einer anschließenden Fraktioniersäule

wird das Edelgas konzentriert, im Desorber (Stripper) aus dem Lösungsmittel zurückgewonnen und schließlich auf Flaschen gezogen /41,136/. Das Verfahren arbeitet in seinen einzelnen Stufen bei Temperaturen zwischen -10°C bis -60°C und Drücken bis 70 atm. Als Lösungsmittel kommen Kerosin, Tetrachlorkohlenstoff, Freone, flüssiges Stickstoffmonoxid und flüssiges Kohlendioxid in Betracht. Besonders geeignet erscheinen Freon 11 (CCL_3F) und Freon 12 (CCL_2F_2), die auch unter der Bezeichnung R-11 und R-12 (Refrigerant) bekannt sind /236, 237,238/. Mit Freon wurden Dekontaminationsfaktoren für Krypton von 10^2 bis 10^3 erreicht und für Xenon von $2,5 \cdot 10^3$ bis 10^4 /136/. Allerdings ist Freon 12 relativ teuer, weswegen die Versuche in der Pilotanlage in Oak Ridge zeitweise auf Freon 11 umgestellt wurden, womit sich jedoch solch hohe Dekontaminationsfaktoren nicht erreichen lassen /136/.

In Jülich wird zur Zeit unter der Bezeichnung AKUT-Prozeß (Abtrennung von Krypton und Tritium) ein Verfahren entwickelt, bei dem fl. Kohlendioxid als Lösungsmittel verwendet wird /165,175,176,193/. Das gleiche Verfahren wird in Oak Ridge unter der Bezeichnung KALC (Krypton Absorption in Liquid Carbon Dioxide) untersucht. Während in Jülich bei Raumtemperatur und 70 atm gearbeitet wird, arbeiten die Amerikaner bei -20°C bis -40°C und 20 atm Druck /239/. Da die Löslichkeit von Krypton im preiswerten CO_2 überraschend gut ist, hat dieses Verfahren gute Aussichten und ist speziell für die Abtrennung aus Verbrennungsgasen geeignet (s.Kap.7.1.2.). Xenon wird unter diesen Bedingungen wegen der unterschiedlichen Löslichkeit nicht vom CO_2 abgetrennt. Eine 150-tägige Kühlzeit würde jedoch nahezu den vollständigen Zerfall dieser relativ kurzlebigen Isotope ermöglichen.

Die Methode der Selektiven Absorption bietet den Vorteil, daß sich mit ihr vielseitig, kontinuierlich und großtechnisch einfach arbeiten läßt. Gegenüber den obigen Verfahren besteht eine wesentlich geringere Gefahr bezüglich Feuer und Explosion. Noch nicht geklärt sind die Probleme der Strahlenbeständigkeit des Lösungsmittels und der Korrosion

durch Fluor und Chlor /128/. Somit stellt die Methode der Selektiven Absorption neben der Tieftemperaturdestillation ein weiteres vielversprechendes Abtrennsystem dar.

4) Permselektive Membranen

Das Durchtreten eines Gases durch eine permselektive Membrane schließt folgende Schritte ein:

- a) Auftreffen des Gases auf die Hochdruckseite der Membrane
- b) Lösung in der Membrane
- c) Diffusion durch die Membrane
- d) Absaugen der Gase auf der Unterdruckseite der Membrane /231/.

Da die effektive Permeabilität von Membranen aus Silikongummi z.B. für Krypton 5 bis 10mal größer ist als die für Stickstoff und etwa 2mal größer als die für Sauerstoff, lassen sich durch Hintereinanderschaltung mehrerer Membranen Dekontaminationsfaktoren für Krypton bis zu $5 \cdot 10^2$ erreichen. Xenon wird zu 99,9% abgetrennt /231/.

Die Methode ist in Oak Ridge, wo sie auch entwickelt wurde, noch im Laborstadium. Ihr Vorteil liegt vor allem darin, daß man bei Zimmertemperatur arbeiten kann und nur relativ kleine Anlagen notwendig sind /136/. 30 m^2 Membrane finden in 18 dm^3 Platz /41/. Ein begrenzender Faktor dürften die Kosten sein, bedingt durch den hohen Herstellungspreis der Membranen und den hohen Energiebedarf der Kompressoren (10 atü) /28,136/. Erfahrungen über die Reinigung der Filterflächen von Aerosolen sind bisher nicht bekannt geworden /136/. Die bisherigen Laborarbeiten in Oak Ridge wurden zugunsten der Selektiven Absorption eingeschränkt /128/.

5) Andere Verfahren

Die nachfolgend aufgezählten Verfahren sind grundsätzlich ebenfalls zur Abtrennung von Krypton und Xenon geeignet:

- a) Ultrazentrifuge /41/
- b) Diffusionsverfahren
- c) Trenndüsenverfahren
- d) Thermodiffusion /136/
- e) elektrostatische Diffusion /136/
- f) chemische Abtrennung, Xe-Fluorverbindung /41,240/

Sie wurden zum Teil im Labor untersucht und haben nach dem gegenwärtigen Stand wegen ihrer geringen Wirtschaftlichkeit oder ihrer technischen Schwierigkeiten keine Aussicht auf großtechnische Realisierung /28,41/.

10.1.3. Zukunftsaussichten der Verfahren

Tabelle 10-1 gibt einen Überblick über den Wirkungsgrad, die Vor- und Nachteile, den Entwicklungsstand und die geschätzten Kosten der verschiedenen Verfahren zur Edelgasabtrennung.

Bei den zur Zeit geplanten und zum Teil im Bau befindlichen Reaktoren (Grafenrheinfeld, Biblis, Nordenham, KKB, KKP, Sequoyah) ist eine befristete Adsorption an Aktivkohle bei Raumtemperatur vorgesehen. Mit Rückhaltezeiten von etwa 40-50 Tagen für Xenon und 2,5 Tagen für Krypton ergeben sich voraussichtlich die in Tabelle 8-2 zusammengefaßten Abgaberaten.

Im Sinne eines "minimum"- oder gar "zero-release"-Konzepts denkt man daran, Kr-85 auch aus der Abluft von KKW abzutrennen. Bisher wurden nur die Verfahren der Tieftemperaturadsorption und -destillation großtechnisch betrieben. Da die Kostensichtspunkte für die kryogene Destillation sprechen, wurden von amerikanischen Betreibern für einen 1975/77 in Betrieb gehenden SWR solche Abgassysteme bestellt /128/.

Das Verfahren der Selektiven Absorption ist technisch und wirtschaftlich aussichtsreich, doch fehlen Erfahrungen mit größeren Anlagen /28/. Wegen des strahlenchemischen Verhaltens der Freone scheint dieses Verfahren, das viele Vor-

Tabelle 10-1 Verfahren zur Abtrennung von Spaltdelgasen /nach 28,108,228,230/

Verfahren	erreichte Kr-Abtrennung	Vorteile	Nachteile	Entwicklungsstand	Einsatz	Investitionskosten (WAA 3 t/d) [1000 \$]	Betriebskosten/t [\$/]
1. Adsorption an Aktivkohle oder Molsieben bei Raumtemperatur	99%	einfache Arbeitsweise, wirksam bei großen Verdünnungen	große Mengen Adsorber notwendig, Kohle kann sich entzünden, oxydierende Gase vorher beseitigen	Entwicklung im Labor beendet, Vergrößerung möglich	Anlagen vorwiegend für KKW	1000	170
2. Tieftemperaturadsorption an Aktivkohle oder Silicagel	99,9%	geringes Bettvolumen, wirksam bei großen Verdünnungen	Kohle kann sich entzünden, osydierende Gase, CO ₂ und H ₂ O vorher entfernen, hoher Verbrauch an flüssigem N ₂ große Betriebskosten; die Adsorber müssen druckfest sein	Entwicklung beendet, Anlagen in Betrieb	Einsatz in KKW (Xe-, Kr-Rückhaltung aus Abgasen, Reinigung des Primärkühlmittels He)	1000	150
3. Tieftemperaturdestillation	99,99%	relativ geringe Invest- und Betriebskosten, kleine Anlage	Explosionsgefährdung durch Bildung von Ozon	Verfahren in der konventionellen Technik erprobt, durch Industrie angeboten	Einsatz bei ICCP, für SWR bestellt	800	100
4. Selektive Absorption	99,9%	Verwendung von Freon 12, keine Explosionsgefahr, keine große Vorbehandlung des zu reinigenden Abgases notwendig, kleine Anlage, Verwendung von CO ₂	Absorption bei 14 atü, bei 1 atü Volumen des Extraktionsmittels zu groß	Entwicklung im Labor beendet, größere Anlage geplant, Laborerprobung	für WAA für WAA	800	100
5. Permselective Membranen	99,92%	Anlage arbeitet kontinuierlich, kleine Anlage, keine Feuergefahr	Membrane sind gegenüber Chemikalien empfindlich, große Energiekosten	nur Laborarbeiten	Verfahren könnte Anwendung finden für: Abluftreinigung aus KKW, Reinigung der Abgase aus WAA, Reinigung von Schutzgas des LMFBR	1500	200

teile bietet, für die Abgase aus WAA geeigneter zu sein. Man nimmt an, eine Kr-Abtrennanlage mit einem Dekontaminationsfaktor von ungefähr 10^3 nach Fertigstellung der Pilotanlage 1975 bereits 1978 in WAA einbauen zu können /180,221/. Bei Bedarf kommen zum sofortigen Nachbau nur die Verfahren der Tieftemperaturadsorption und der -destillation in Frage, die allerdings die Gefahren der Entzündung oder Explosion mit sich bringen können /28/.

Die permselektiven Membranen erfordern noch viel Entwicklungsarbeit; ferner sind die voraussichtlichen Kosten so hoch, daß dieses Verfahren nur unter besonderen Umständen in Frage kommen dürfte /28/.

Nach Nichols und Binford /128/ ist es angebracht, mit der Installation von Kr- und Xe-Abtrennanlagen in WAA erst in einigen Jahren zu beginnen, um die Entwicklung von niedrig strömenden Abgassystemen abzuwarten, welche die Möglichkeit der Tritium- und verbesserten Jodabtrennung beinhalten.

10.1.4. Langzeitlagerung

Nach der Abtrennung von Kr-85 stellt sich das Problem der Lagerung über 100 bis 200 Jahre (vgl. Abb. 6-9). Die bisher gemachten Vorschläge kamen über das Stadium der theoretischen Erörterung bzw. über Laborversuche nicht hinaus. Clark und Blanco /241/ geben einen Überblick über die verschiedenen Einschluß- und Lagermöglichkeiten.

Die einzig sinnvolle Lagerung scheint das Abfüllen in konventionelle Gashochdruckflaschen zu sein /136/. Wieviel Gasflaschen zur jeweiligen Lagerung nötig sind, hängt davon ab, ob Krypton (zusammen mit dem langlebigen Nuklid Kr-85) allein oder zusammen mit Xenon gelagert wird. Je nach aufgewendetem Kompressionsdruck enthält eine Flasche 5000 bis 10000 Liter Gas bei etwa 50 Liter Fassungsvermögen.

Die Stahlflaschen sollen in wassergefüllten Tanks gekühlt und in übertägigen Spezialbehältern /128,205/ oder in Salzformationen /28/ gelagert werden. Eine andere Möglichkeit besteht im Versenken der Stahlflaschen auf den Meeresgrund, wobei eine kontrollierte Gasabgabe über Ventile erwogen wird, da Tiefseeschichten nur mit sehr großen Austauschzeiten (s.Kap.8.2.1.) an der Vermischung mit Oberflächenwasser teilnehmen /176/. Die Verfahren bedürfen jedoch noch der eingehenden Bewertung hinsichtlich der erhöhten Dichtigkeitsanforderungen und des Strahlenschutzes der Umgebung /134/.

Außerdem werden folgende Lagerungsmöglichkeiten theoretisch erörtert oder im Labor untersucht:

- Dispersion in Feststoffe, Glas, Metall, Epoxidharze
Kunststoff /241/
- Einschluß in Molekularsiebe /242/, Clathrate
- Feste Fluorverbindungen
- Injektion in geeigneten Untergrund /128,134,243,244,245/

10.2. Verwendungsmöglichkeiten für Krypton und Xenon

Wie in Kap.8.1. gezeigt, ist bei großen WAA eine Abtrennung der Edelgase nötig. Mit den im vorigen Abschnitt beschriebenen Verfahren lassen sich Krypton und Xenon zu etwa 99% zurückgewinnen. In einer 1500 t/a WAA fallen dabei täglich etwa 4 bis 6 m³ Spalteredelgase an /178/. Sie bestehen zu ungefähr 90 Vol.-% aus Xenon, welches zum Zeitpunkt der Aufbereitung (bzw. seiner späteren Verwendung) keine radioaktiven Isotope mehr enthält (vgl. dazu Abb. 6-9). In den restlichen 10 Vol.-% Krypton ist das langlebige Isotop Kr-85 zu etwa 7 Vol.-% enthalten und stellt damit 0,7 Vol.-% /28,178,246/ der gesamten Spaltgasmenge dar. Eventuell ist der Kr-85-Gehalt sogar kleiner als 0,6 Vol.-% /246/. Beide Elemente lassen sich ohne große Schwierigkeiten voneinander trennen. Dadurch hat man eine Quelle für inaktives Xenon und Krypton mit Kr-85.

Wegen der Notwendigkeit der Trennung (platzsparende Lagerung von Kr-85) stehen in Zukunft relativ große Mengen von Krypton und Xenon zu annehmbaren Preisen zur Verfügung. Es liegt demnach nahe, nicht nur an Endlagerung, sondern auch an eine praktische Nutzung dieser Bestände zu denken.

Xenon

Xenon, das als Nebenprodukt bei der Sauerstoffgewinnung aus Luft gewonnen wird, kostet derzeit je nach Reinheitsgrad zwischen 40 und 200 Mark pro Liter /28,246/. Es findet wegen seines relativ hohen Preises nur für Spezialzwecke Anwendung, z.B. zur Füllung von Blaskammern und Proportionalzählern /28,247/. Winzige Mengen des radioaktiven Isotopes Xe-133 finden Verwendung bei der Diagnose von Bronchialkarzinomen, bei der die γ -Strahlung gemessen wird. Die Strahlenbelastung ist dabei viel geringer als bei einer gewöhnlichen Röntgenaufnahme /248/.

Im Zuge der Krypton-Abtrennung bei WAA wird in Zukunft Xenon in großen Mengen und sehr preiswert anfallen. Die einzigen

zusätzlichen Kosten werden dadurch entstehen, daß das Xenon auf einen kleinen Krypton- und damit Kr-85-Gehalt gebracht werden muß. Tieftemperaturtechniken, welche die geforderte Qualität ermöglichen, stehen bereit. So konnte kürzlich das Spaltprodukt Xenon mit einer Reinheit von 99,93% hergestellt werden /246/. Große experimentelle Mengen wurden bis auf weniger als 1 mCi Kr-85 pro Liter Xenongas gebracht. Rohrmann /246/ schätzt, daß durch die Gewinnung von Xenon als Nebenprodukt bei der Krypton-Abtrennung der Preis auf etwa $\frac{1}{10}$ des heutigen Preises gesenkt werden kann.

Eine weitere Anwendungsmöglichkeit, die bisher am Preis scheiterte, ist die im Bereich der menschlichen chirurgischen Anästhesie /28,246/. Xenon ist bereits seit 20 Jahren als Narkosemittel mit außerordentlich rascher Wirkung und unbedeutenden Nachwirkungen bekannt /249/. Als Füllgas in Glühlampen ist Xenon noch günstiger als das bereits z.T. verwendete Krypton /28/. Auch ist an eine mögliche Verwendung als Atmosphäregas in Elektronenröhren und als Arbeitsmedium in großen Generatoren für die Stromerzeugung in der Raumfahrt nach dem Joule-Prozeß (vereinzelt auch Brayton-Zyklus genannt) gedacht /246,250,251/.

Da Spaltxenon einen etwa 30% größeren Anteil an schweren Isotopen enthält gegenüber dem natürlichen Xenongemisch, könnte es auch in vielen Spezialanwendungen Vorteile gegenüber dem natürlichen Xenon bieten /28,246/.

Krypton

Neben Argon wird zur Füllung von Glühlampen auch stabiles Krypton verwendet, da es infolge seines hohen Molekulargewichtes und seiner niedrigen Wärmeleitfähigkeit die Verdampfung des Glühfadens verringert und höhere Temperaturen erlaubt /28/.

Weitere Verwendungsmöglichkeiten beruhen auf den Eigenschaf-

ten des radioaktiven Isotopes Kr-85:

- ausreichend lange Halbwertszeit,
- nur 1% γ -Strahlung,
- energiereiches β -Spektrum
- als Edelgas geht Krypton keine chemische Reaktion ein.

1 Ci Kr-85 kostet heute etwa 55 Mark; dies entspricht 85000 Mark für 1 Liter /246/. Für technische Verwendungszwecke, wie Dicken- und Dichtemessung ($20-100 \frac{\text{mg}}{\text{cm}^2}$ /252,253/), werden Aktivitäten von 5 bis 500 mCi /254/ benötigt. Kr-85 wird vor allem bei der Dickenmessung von Stahl und bei der berührungslosen Flächengewichtsmessung in der Textilindustrie verwendet /253/.

Ein weiteres Anwendungsgebiet ist die Überwachung der Entlüftung in Bergwerken. In bestimmten Abständen aufgestellte Detektoren messen die Aktivität der Luft, der geringe Mengen Kr-85 zugesetzt wurden /252/. Für Luftwechseluntersuchung in Ställen wurde ebenfalls Kr-85 verwendet /255/. Zur Feststellung von defekten Stellen an der Isolierung telefonischer Überlandkabel wurde mit Erfolg Kr-85 unter Druck in ein Kabel geleitet.

Um den Zündverzug bei gasgefüllten Röhren, in denen eine gesteuerte Entladung stattfinden soll, zu vermindern, wird dem Füllgas eine geringe Menge Kr-85 (mit stabilem Krypton im Verhältnis 5:95 gemischt) beigelegt. Durch die Ionisierung und elektrische Leitfähigkeit läßt sich die Steuerungsenergie herabsetzen und die Frequenz der Impulse erhöhen /252/.

Nach Rohrmann /246/ ist in Zukunft die Verwendung des gesamten verfügbaren Kr-85 gewährleistet, wenn es gelingt, Kr-85 preisgünstig auf etwa 50% anzureichern. Bringt man derart konzentriertes radioaktives Krypton in eine geeignet geformte, mit einer Phosphorschicht belegte Lampe ein, so lassen sich netzunabhängige "Atomleuchten" herstellen /248/. Es ist gelungen, Lampen herzustellen, in deren Licht man in 1-2 m Entfernung lesen kann /256/. Höhere Intensitäten sind prinzipiell mög-

lich, doch dürfte das Hauptanwendungsgebiet dort liegen, wo eine kontinuierliche, schwach intensive Leuchtwirkung erforderlich ist, wie z.B. bei Leuchtschirmen, Hinweisschildern und Markierungsgegenständen aller Art. Diese Leuchtquellen können mehr als 10 Jahre ohne Elektrizitätsanschluß und Energiezufuhr ein schwaches Licht geben. Dadurch wird die wartungsfreie Belichtung von explosionsgefährdeten Räumen, Kellern, Turmuhren, Fahrinnen, Landebahnen u. dgl. möglich. Bei einem Bruch der Lampe ist wegen der raschen Verdünnung des Kryptons durch die Luft der Umgebung eine Gefährdung ausgeschlossen.

10.3. Berechnung der Kr-85-Produktion durch Kernwaffenexplosionen

Die Rechnung basiert auf den - nach Glasstone /257/ - "etwas willkürlichen" 10^{12} Kalorien pro Detonation von 1 Kilotonne TNT.

Die Ausbeute von Kr-85 bei Kernwaffentests ist nicht genau bekannt. Da Angaben über Spaltausbeuten bei Kernwaffentests nicht veröffentlicht wurden, unterscheiden sich die Rekonstruktionsversuche verschiedener Autoren, wie Tabelle 10-2 zeigt, bis zu 30%. Für eine erste Abschätzung wird meist die Kr-85-Ausbeute bei thermischer Spaltung des Uran-235 verwendet, die 0,271% /70/ beträgt. Damit läßt sich folgende Rechnung durchführen:

$$1 \text{ MT (TNT)} = 10^{15} \text{ cal} = 1,16 \cdot 10^9 \text{ kWh}$$

$$1 \text{ Spaltung} = 180 \text{ MeV} = 8 \cdot 10^{-18} \text{ kWh}$$

$$1 \text{ MT (TNT)} = \frac{1,16 \cdot 10^9}{8 \cdot 10^{-18}} = 1,46 \cdot 10^{26} \text{ Spaltungen}$$

$$1 \text{ MT (TNT)} = 3,96 \cdot 10^{23} \text{ Atome Kr-85} = 22 \cdot 10^3 \text{ Ci Kr-85}$$

Für die entsprechenden Ausbeuten bei Schnellspaltung von

U-235 ($0,31 \cdot 10^{-2}$ /70/) und Pu-239 ($0,145 \cdot 10^{-2}$ /70/) sind die entstehenden Aktivitätsmengen in Tabelle 10-2 zusammengestellt.

Tabelle 10-2 Kr-85-Produktion durch Kernwaffenexplosionen nach verschiedenen Autoren und bei verschiedenen Spaltstoffen

Autor, Datum	1 MT (TNT) entspricht einer Kr-85-Menge von:
Pannetier 1968 /7/	$25,6 \cdot 10^3$ Ci
Whipple 1969 /61/	$29,0 \cdot 10^3$ Ci
Fowler 1969 /41/	$24,7 \cdot 10^3$ Ci
Unruh 1970 /62/	$30,0 \cdot 10^3$ Ci
Diethorn 1972 /12/	$19,4 \cdot 10^3$ Ci
Bei Spaltung von	
U-235 thermisch /70/	$22,0 \cdot 10^3$ Ci
U-235 schnell /70/	$24,8 \cdot 10^3$ Ci
Pu-239 schnell /70/	$11,8 \cdot 10^3$ Ci

Der Mittelwert liegt bei etwa $22 \cdot 10^3$ Ci Kr-85 pro MT TNT.

Meinen Dank möchte ich Herrn Professor Dr. K. Wirtz
aussprechen für die Anregung zu dieser Arbeit sowie
Herrn Dr. A. Bayer für seine Betreuung.

Literatur

- /1/ J. Schwibach:
Strahlenschutzrichtwerte für die Genehmigung der Ab-
leitung radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen
7. IRS-Fachgespräch, Köln, 8./9. November 1971,
Bericht IRS-T-23 (1972), S.19
- /2/ National Academy of Sciences:
The Biological Effects of Atomic Rad.
Summary Reports (1956), 60-63
- /3/ K.E. Cowser u.a.:
Kr-85 and Tritium in an Expanding World Nuclear Power
Industry
Health Physics Division Annual Progress Report 1965/66,
ORNL-4007
- /4/ A. Gerken:
Das Spaltprodukt Kr-85
Diplomarbeit am Institut für Neutronenphysik und Reak-
tortechnik, Kernforschungszentrum Karlsruhe (1966)
- /5/ J.R. Coleman, R. Liberace:
Nuclear Power Production and Estimated Kr-85 Levels
Rad. Data and Reports 7 (1966), 615-621
- /6/ J.E. Mountain u.a.:
Survey of Individual Radionuclides Production in
Water-cooled Reactors
University of Cincinnati Summary Report, Phases I
and II of Contract Ph 86-67-218 (1968)
- /7/ R. Pannetier:
Distribution, transfert atmospherique et bilan du
Kr-85
Rapport CEA-R-3591 (1968)

- /8/ I.L. Karol u.a.:
Global Contamination of the Atmosphere by Kr-85 from
Worldwide Nuclear Power Plants and Rad. Danger
Report IPRS 53174 (1971)
- /9/ H. Bonka:
Die globale Umweltverschmutzung durch in Kernreaktoren
erzeugtes Tritium und Kr-85 in der Zukunft
ISU, 2, 1 (1972) 99-108
- /10/ Pamela M. Bryant, J.A. Jones:
The Future Implications of some Long-lived Fission Product
Nuclides Discharged to the Env. in Fuel Reprocessing
Wastes
Report NRPB-R8 (1972)
- /11/ Ionizing radiation: Levels and effects
A Report of the UN Scientific Committee on the Effects
of Atomic Radiation of the General Assembly
UN, New York, Vol.1 (1972)
- /12/ W.S. Diethorn, W.L. Stockho:
The Dose to Man from atmospheric Kr-85
Health Physics 23, 11 (1972), 653-662
- /13/ Pamela M. Bryant, J.A. Jones:
Estimation of Radiological Exposure Associated with
Inert Gas Radionuclides Discharged to the Environment
by Nuclear Industry
IAEA-Symposium on Environmental Behaviour of Radio-
nuclides Released in the Nuclear Industry,
Aix-en-Provence, 14-18 Mai 1973, SM-172-5
- /14/ B. Kahn u.a.:
Radiological Surveillance Studies at a BWR
Report BRH/DER 70-1 PHS (1970)

- /15/ B. Kahn u.a.:
Radiological surveillance studies at a PWR
Report RD 71-1 (1971)
- /16/ G. Schmitz, L. Sütterlin:
Erfahrungs- und Erwartungswerte für die Ableitung
radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen
7. IRS-Fachgespräch 1971 /1/, S.43
- /17/ G. Herrmann:
Abgabe rad. Stoffe bei Normalbetrieb aus Leicht-
wasserreaktoren in der BRD
Bericht IRS-W-1 (1972)
- /18/ W. Vinck u.a.:
Stand und Entwicklung der Kernenergie
Kommission der EG, GD III/C/4 (1972)
- /19/ H. Büker, P. Jansen, W. Sassin, W. Schikarski:
Kernenergie und Umwelt
Studie im Auftrag des BM für Forschung und Techno-
logie
Berichte Jül-929-HT-WT, KFK-1366 (1973)
- /20/ M. Haïssinsky, P. Adloff:
Radiochem. Lexikon der Elemente und ihrer Isotope
Dümmler Verlag, Bonn, 1968
- /21/ J.Z. Holland:
Rad. Pollution of the Atmosphere
Report CONF-690303 (1969) 125-127
- /22/ H. Hintenberger u.a.:
Krypton and Xenon in the Oceans
Zeitschrift Naturforschung, 19a (1964) 1227-1228

- /23/ D'Ans-Lax
Taschenbuch für Chemiker und Physiker, Band I
Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York,
1964
- /24/ C.G. Mattson u.a.:
Thermal Neutron Capture in Natural Krypton
Physica Scripta 5 (1972) 58-62
- /25/ K. Rankama:
Progress in Isotope Geology
Interscience Publishers John Wiley & Sons,
New York, London, 1963
- /26/ S.Y. Yeh, R.F. Peterson:
Solubility of Carbon Dioxide, Krypton, and Xenon
in Aqueous Solution
J. Pharm. Sci. 53 (1964) 822-824
- /27/ J.R. Merriman u.a.:
Treatment of Airborne Radioactive Wastes
Proc. of a Symposium, New York, 26.-30. Aug. 1968
- /28/ W. Guber u.a.:
Abtrennung, Behandlung und Lagerung von Spalteredel-
gasen aus kerntechnischen Anlagen
Bericht KFK-1789 (1973)
- /29/ W.P. Kirk:
Kr-85 A Review of the Literature and an Analysis of
Rad. Hazards
Env. Prof. Agency, Washington (1972)
- /30/ C.E. Junge:
Note on the Exchange Rate between the Northern and
Southern Atmosphere
Tellus, Stockholm 14 (1962) 242-246

- /31/ W. Comper:
Berechnung der Dosisfaktoren wichtiger Nuklide
Bericht KFK-1615 (1972)
- /32/ K. Tomura, N. Miyaji:
Gamma Rays of Short Lived Xenon Isotopes
Radiochimica Acta 10 (1968) 173
- /33/ B. Ehrenberg, S. Amiel:
Independent Yields of Krypton and Xenon Isotopes in
Thermal-Neutron Fission of U-235. Observation of an
Odd-Even Effect in the Element Yield Distribution
Physical Rev. C 6, 2 (1972), 618-628
- /34/ K.H. Lindackers u.a.:
Kernenergie - Nutzen und Risiko
Deutsche Verlagsanstalt Stuttgart (1970)
- /35/ M.M. Hendrickson:
The Dose from Kr-85 Released to the Earth's Atmosphere
Vortrag auf dem IAEA-Symposium "Environmental Aspects
of Nuclear Power Stations", New York, 10.-14. August
1970, p.237 oder Report BNWL-SA-3233A
- /36/ H.J. Dunster, B.F. Warner:
The Disposal of Noble Gas Fission Products from the
Reprocessing of Nuclear Fuel
Report AHSB(RP), R101 (1970)
- /37/ B. Denecke u.a.:
The Gamma Ray Branching of Kr-85
Technical Notes, Nuclear Science Eng. 28 (1967), 305
- /38/ Radiological Health Handbook (Rev.)
Bureau of Radiological Health and the Training Institute,
Environmental Control Administration, U.S. Dept. of
Health, Education and Welfare, Public Health Service,
Consumer Protection and Environmental Health Service,

Rockville,
Md. 20852 (Jan. 1970)

- /39/ M.S. Terpilak u.a.:
Dose Assessment of Ionizing Radiation Exposure to the
Population
Rad. Data and Rep. 12, 4 (1971), 171-188
- /40/ Landolt-Börnstein:
Energieniveaus der Kerne A=5 bis A=257, Gruppe 1,
Band 1
Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York (1961)
- /41/ T.W. Fowler, D.E. Voit:
A Review of Radiological and Environmental Aspects
of Kr-85
Report NF-69-16 (1969)
- /42/ C.M. Lederer u.a.:
Table of Isotopes, 6th Edition, New York (1967)
- /43/ E. Schrüfer (KWU Frankfurt):
Vorlesung über Reaktormesstechnik an der Universität
(TH) Karlsruhe (1973)
- /44/ M.K. Loken, G.S. Kush:
Handling, Uses and Radiation Dosimetry of Xe-133
Medical Radionuclides: Radiation Dose and Effects
AEC Symposium Series 20 (1970), 253-270
- /45/ Recommendations of the ICRP
ICRP Publication 2, Pergamon Press, 1959
- /46/ ICRP Publication, 9. Recommendations of the Inter-
national Commission on Rad. Protect. (Adopted Sept.17,
1965)
Pergamon Press, 1966

- /47/ 1. Strahlenschutzverordnung vom 15.10.1965
Bundesgesetzblatt Nr. 61 der BRD
- /48/ United States Code of Federal Regulations,
Title 10 "Atomic Energy"
(Part 20 - Standards for Protection Against Radiation)
ab 1957
- /49/ Atomic Energy Law Reports, 10 CFR 50
Atomic Energy Clearing House 17, 24 (1971), 2-11
- /50/ Report of the United Nations Scientific Committee on
the Effects of Atomic Radiation
Suppl. No.17 (A/3838), New York (1958)
- /51/ G. Fuchs:
Die Strahlengefährdung des Menschen in der gegen-
wärtigen Zivilisation
Akademie-Verlag, Berlin (1971)
- /52/ W. Schikarski:
Kernenergie und Umwelt
Atom und Strom 1, 2 (1972), 37-44
- /53/ USAEC
Proposed Rule Making Action:
Numerical Guides for Design Objectives and Limiting
Conditions for Operation to meet the Criterion
"As Low as Practicable" for Radioactive Material in
Light-water-cooled Nuclear Power Reactor Effluents
Report WASH-1258 (1973), Vol.1+2
- /54/ C.G. Mattson u.a.:
Thermal Neutron Capture in Natural Krypton
Physica Scripta 5 (1972), 58-62
- /55/ T. Suzuki, K. Inoue:
Radiokrypton in Atmosphere
J. Nucl. Sci. Technol. 9 (1972), 55

- /56/ B.G. Young, H.G. Thode:
Can. J. Phys. 33, 1 (1960)
- /57/ M. Eisenbud:
Environmental Radioactivity
Mc Graw-Hill, New York-London, 1963
- /58/ I. Zander, R. Araskog:
Nuclear Explosions 1945-72, Basic Data
Report FOA4 A 4505-A1 (1973)
- /59/ J.Z. Holland, J.E. Miller:
Radioactive Contamination of the Upper Atmosphere,
aus A.M.F. Duhamel (Ed.), Progress in Nuclear Energy,
Series XII, Health Physics, Vol.2, Part I
Pergamon Press, 1969
- /60/ F.W. Stead:
Distribution in Groundwater of Radionuclides from
Underground Nuclear Explosives
Report TID-7695 (1964), 127-138
- /61/ G.H. Whipple:
Approaches to the Calculation of Limitations on Nuclear
Detonations for Peaceful Purposes
Reports PB-187349 und SWRHL-82 (1968)
- /62/ C.M. Unruh:
Nuclear Power as a Source of Contamination on a Global
Scale
Report BNWL-SA-3665 (1970)
- /63/ J. Schröder, D.H. Ehhalt, K.O. Münnich:
Kr-85 in the Troposphere
Nature 233 (1971), 614
- /64/ Jacobs:
Theoretical Evaluation of Consumer Products from

Project Gasbuggy
Report ORNL-4646 (1971)

- /65/ E. Schrüfer (Herausgeber d. Buches):
Strahlung und Strahlungsmessung in Kernkraftwerken;
Kapitel 7: Nachweis von Brennelementschäden,
Verfasser: R. Hock, 1974
- /66/ N.D. Dudey:
Review of Low-Mass Atom Production in Fast Reactors
Report ANL-7434 (1968)
- /67/ Boroughs, Craven, Drake:
A Set of evaluated Nuclear Data for U-233
Report GA-8854 (1968)
- /68/ K.F. Flynn, L.E. Glendenin:
Yields of Fission Products for Several Fissionable
Nuclides at Various Incident Neutron Energies
Report ANL-7749 (1970)
- /69/ 300 MWe THTR Prototyp-Kernkraftwerk Sicherheitsbericht
Konsortium THTR, BBC, Band 1 (1969)
- /70/ M.E. Meek, B.F. Rider:
Summary of Fission Product Yields for U-235, U-238,
Pu-239, Pu-241 at Thermal Fission Spectrum and 14 MeV
Neutron Energies
Report APED-5398-A (1968)
- /71/ W.J. Maek, J.E. Rein:
Burnup Determinations of Nuclear Fuels: Project Report
for the Quarter July 1-September 30, 1965
USAEC Doc. IDO-14667 (1965), Experimental Capsule
6-4-1
- /72/ S. Katcoff, W. Rubinson:
Yields of Kr-85 in Thermal Neutron Fission of U-235

and Pu-239

J. Inorg. Nucl. Chem. 27 (1965), 1447

- /73/ Schweizerische Vereinigung für Atomenergie:
Informationstagung über die Sicherheit von Kernkraft-
werken und die Probleme der Radioaktivität, 4.-6. Nov.
1970, Bern
Separatdruck aus Neue Technik B5, B6 (1970) sowie 1
(1971) Zürich
- /74/ R. Holzer:
Spaltgasaustritt aus Urandioxyd
Kerntechnik 7, 8/9 (1965), 378-383
- /75/ R.M. Carroll, O. Sisman:
Fission-Gas release during fissioning in UO_2
Nucl. Appl. 2 (1966), 142-150
- /76/ E. Hoinkis:
Chemische Aspekte der Reaktorsicherheit
Bericht HMI-B 99 (1970)
- /77/ Booth:
A Method of calculating Fission Gas Diffusion from
 UO_2 -Fuel and its Application to the X-2-f Loop Test
Reports CRDC-721, AECL 496 (1957)
- /78/ R.M. Carroll:
Fission-Gas Behaviour in Fuels
Nucl. Saf. 10, 3 (1969), 210-216
- /79/ R.M. Carroll and O. Sisman:
In-Pile Fission-Gas Release from Fine-Grain UO_2
J. Nuclear Materials, 17 (1965), 305-312
- /80/ J.R. Mac Ewan, P.A. Morel:
Migration of Xenon through a UO_2 Matrix Containing
Trapping Sites
Nucl. Appl. 2 (1966), 158-170

- /81/ M.J.F. Notley, J.R. Mac Ewan:
The Effect of UO_2 Density on Fission Product Gas
Release and Sheath Expansion
Nucl. Appl. 2 (1966), 117-122
- /82/ W. Chubb u.a.:
Observations relating to the mechanisms of swelling
and gas release in UO_2 at high temperatures
J. of Nucl. Mat. 44 (1972), 136-152
- /83/ Hj. Matzke, R. Lindner:
Eigenschaften und Verhalten von Hochtemperaturkern-
brennstoffen
Atomkernenergie 1 (1964), 2-46
- /84/ C. Ronchi, H. Matzke:
Calculations on the in-pile Behaviour of Fission Gas
in Oxide Fuels
J. Nucl. Mat. 45 (1972/73) 15-28
- /85/ P.H.W. Wolf:
To contain, or not to contain
IAEA Symposium, Containment and Siting of Nuclear
Power Plants, Wien, 3.-7. April 1967, p.619
- /86/ H. Böck:
Die Diffusion von Spaltedelgasen durch Brennelement-
hüllen
Atomkernenergie 21 (1973), 189-191
- /87/ V. Heinzel:
Unterlagen und Daten von neueren Leistungsreaktoren
Arbeitsbericht INR-Nr. 412/70 (1970), unveröffentlicht
- /88/ Eigenwillig:
Grundlage für die Berechnung der Edelgas- und der
Jodfreisetzung aus dem Kern eines SWR
AEG-Memorandum-AC-46, AEG-E3-2283 (1972)

- /89/ Blomeke:
Management of Radioactive Wastes at Nuclear Power
Stations
Report ORNL 4070 (1968)
- /90/ Sicherheitsbericht für den 864 MWe-Block mit SWR
im Kernkraftwerk Nord
KWU, Frankfurt (1970)
- /91/ D. Bedenig:
Gasgekühlte Hochtemperaturreaktoren
Verlag Thiemig, München, Bd.44 (1972)
- /92/ Gasbrüter-Memorandum
Bericht KFK-1375 (1971), P.A.IV2
- /93/ J. Baier u.a.:
Das Verhalten von beschichteten Brennstoffteilchen
in hohem schnellen Neutronenfluß
Reaktortagung Berlin, 20.-22. April 1970, S.446
- /94/ R.S. Lowrie u.a.:
Determination of the rad. Nuclides present in the
Off-Gas Stream generated by the Head-End Steps in
reprocessing HTGR Type Fuels
Report Conf. 720823-11 (1972)
- /95/ P.E. Reagan u.a.:
Fission-Gas Release from Pyrolytic-Carbon-Coated
Fuel particles during Irradiation at 2000 to 2500 °F
Nuclear Science and Eng., 23 (1965), 215-223
- /96/ E. Wallura u.a.:
Ein Beitrag zur Urankontamination in der Pyrokohlen-
stoffhülle von beschichteten Brennstoffteilchen
Reaktortagung Karlsruhe, 10.-13. April 1973, S.219

- /97/ W.V. Goeddel, J.N. Siltanen:
Materials for High-temperature Nuclear Reactors
Ann. Rev. Nucl. Sci. 17 (1967), 189 und Report
GA-7858
- /98/ J.L. Scott, J.W. Prados:
Coated-particle Survey Irradiation Tests
Report ORNL-3885
- /99/ M. Hrovat u.a.:
Blockförmiges Brennelement hoher Leistung für Hoch-
temperatur-Reaktoren
Reaktortagung Hamburg, 11.-14. April 1972, S.295
- /100/ K. Röllig, A. Schmidt:
Spaltproduktfreisetzung von kugelförmigen HTR-Elementen
unter Test- und Betriebsbedingungen
Reaktortagung 1970 /93/, S.442
- /101/ K. Röllig:
Spaltgasfreisetzung von HTR-Brennelementen
Reaktortagung 1972 /99/, S.303
- /102/ E. Balthesen u.a.:
Bestrahlungserprobung von HTR-Brennelementen
Reaktortagung 1973 /96/, S.231
- /103/ L. Aumüller u.a.:
Bestrahlungserprobung der Brennelemente für den
THTR
Reaktortagung Bonn, 30.3.-2.4.1971, S.622
- /104/ G. Ivens:
Bestrahlungsverhalten der Brennelemente im AVR
Reaktortagung 1971 /103/, S.626
- /105/ E. Gross:
Detection of failed Fuel Elements
Nucl. Safety 13, 3 (1972), 220-224

- /106/ D. Schoenfeldt:
Matrixmaterialien für HTGR-Brennelemente
Reaktortagung 1972 /99/, S.291
- /107/ H.G. Heitmann:
Maßnahmen zur Begrenzung von Ableitungen aus der
Sicht der Industrie
7. IRS-Fachgespräch 1971 /1/
- /108/ J.E. Martin u.a.:
Technology Assessment of Risk Reduction Effectiveness
of Waste Treatment Systems for LWR
Rad. Data and Rep. 14, 1 (1973), 1-8
- /109/ M.I. Goldmann:
United States Experience in the Management of Gaseous
Wastes from Nuclear Power Stations
IAEA-Symposium, Treatment of Airborne Radioactive
Wastes, New York, 1968, p.763-783
- /110/ W. Braun, K. Traube:
Safety of LWR designed in the Federal Republic of
Germany
4. UN International Conference on the Peaceful
Uses of Atomic Energy, Genf, 6.-16. Sept. 1971,
p.51, Vol.3
- /111/ M. Eisenbud:
Review of USA Power Reactor operating Experience
IAEA, New York, 1970 /35/, p.861
- /112/ USAEC
Report on Release of Radioactivity from Reactors
in Effluents during 1970
Report WASH 1198 (1970)
- /113/ Technical Data
Nuclear Eng. Int. 16, 176/77 (1971), 100-113

- /114/ Betriebsergebnisse der deutschen Kernkraftwerke 1970
Atomwirtschaft 16 (1971), 373-377
- /115/ J.E. Logsdon:
Rad. Waste Discharges to the Environment from Nuclear
Power Facilities
Rad. Data Rep. 13, 3 (1972), 117-129
- /116/ USAEC
Report on Releases of Radioactivity in Effluents from
Nuclear Power Plants for 1971
Report WASH 1198 (1971)
- /117/ B. Kahn:
Environmental Experience with Radioactive Effluents
from Operating Nuclear Power Plants
Genf, 1971, /110/, P.559, Vol.11
- /118/ Kommission der EG:
Radioaktive Ableitungen von Kernkraftwerken der
Gemeinschaft
Bericht (1972)
- /119/ Betriebserfahrungen in Kernkraftanlagen, Jahres-
berichte
Atom und Strom 15, 11 (1969), 193-208
16, 9 (1970), 129-144
17, 6 (1971), 97-112
18, 5/6 (1972), 73- 88
- /120/ J.A. Richardson:
Radioactive Waste quantities produced by LWR and
Methods of Storage, Transportation and Disposal
J. of the British Nuc. Eng. Soc. 12, 2 (1973),
199-213

- /121/ W. Stephan:
Private Mitteilung (1973)
KWO, Kernkraftwerk Obrigheim GmbH
- /122/ K. Aurand, M. Ruf, W. Schikarski, J. Schwibach:
Environmental Exposure due to Radionuclides in
Gaseous and Liquid Effluents from Nuclear Power
Plants in the FRG
Genf 1971 /110/, p.591, Vol.11
und Bericht KFK-1515
- /123/ W. Keller:
Fortschritte bei den wassergekühlten Reaktoren -
1. Druckwasserreaktoren
Atomwirtschaft, 15, 9/10 (1970), 469-472
- /124/ H. Mandel:
Standortfragen bei Kernkraftwerken
Atomwirtschaft, 16, 1 (1971), 22-26
- /125/ J.H. Wright:
Environmental Radiation from PWR
J. Inst. Nuc. Eng. - Jan./Febr.71, 8-12 und
Transactions of ANS, 13, 1 (1970), 221
- /126/ P. Handge, W. Schwarzer:
Probleme der Konzentrierung von Kernkraftwerken
auf engem Raum - Grundlagen für Belastungspläne
7. IRS-Fachgespräch 1971 /1/, S.77
- /127/ L. Sütterlin:
Erwartungswerte aufgrund von Erfahrungen mit Demon-
strationskraftwerken
7. IRS-Fachgespräch 1971 /1/, S.67
- /128/ J.P. Nichols, F.T. Binford:
Status of Noble Gas Removal and Disposal
Report ORNL-TM-3515 (1971)

- /129/ T.J. Thompson:
Environmental Effects of Producing Electric power
Hearings before the Joint Committee on Atomic Energy
Congress of the United States, Washington, 28. Okt.-
7. Nov. 1970, P.153, Part 1
- /130/ H. Engel:
Betriebserfahrungen mit Brennelementen und Aktivitäten
in SWR-Kernkraftwerken
Atomwirtschaft 15, 11 (1970), 523-527
- /131/ USAEC
The Safety of Nuclear Power Reactors (light-water-cooled)
and Related Facilities - Final Draft
Report WASH-1250, Juli 1973
- /132/ H.J. Schröder u.a.:
Die Abgasanlage im KKW Gundremmingen
Kerntechnik 13, 5 (1971), 205-273
- /133/ H. Loog:
Persönliche Mitteilung, Sept. 1973
Kernkraftwerk Lingen
- /134/ G. Richter u.a.:
Beseitigung radioaktiver Gase aus Kernenergieanlagen
Kernenergie 15, 9 (1972), 293-302
- /135/ M.J. Shmulkarsky:
Environmental Radioactivity in Illinois, 1970
Rad. Data Rep. 13, 11 (1972), 589-602
- /136/ T. Vollmer:
Methoden zur Trennung von rad. Edelgasen aus Reaktor-
abgasen
PNS-Notiz 23, RB-Bericht 4/72 des KFZ Karlsruhe
unveröffentlicht

- /137/ W.L. Brinck u.a.:
Radionuclides in Effluents from BWR
ANS, 13, 2 (1970), 674
- /138/ J. Kirk, R.S. Taylor:
Design for Safety of Gas-Cooled Reactors
Genf 1971 /110/, P.151, Vol.3
- /139/ D. Smidt:
Reaktortechnik, Band 1+2
G. Braun, Karlsruhe, 1971
- /140/ R.B. Pepper, P.A. Carter:
Radiological Conditions and Effluent Releases at
CEGB Nuclear Stations
Genf 1971 /110/, P.67, Vol.11
- /141/ BBC:
Inhärente Sicherheit, Betriebssicherheit, Beherrschung
von Störungen sowie radiologische Belastung in der
Umgebung eines AGR
BBC-KR, April 1967, unveröffentlicht
- /142/ Exploitation of the AGR for Hinkley Point B, Second
Issue
The Nuclear Power Group Lmtd., Knutsford, 1967
- /143/ BBC:
AGR-Kernkraftwerk
Vorläufiger Sicherheitsbericht für ein Verbundkraft-
werk, Frankfurt/Main, Juni 1968, unveröffentlicht
- /144/ J.J. Hillary, J.C. Taylor:
The Release of Fission Products from AGR Fuel at
around 1000 °C
Report TRG-2317 (W), (1972)

- /145/ W.F. Shilling u.a.:
Das 1160-MW-Hochtemperatur-Kernkraftwerk-Projekt
Atomwirtschaft, 17, 9/10 (1972), 520-524
- /146/ M. Kempken:
Verzeichnis der KKW der Welt
Atomwirtschaft, 17, 9/10 (1972), 512-517
- /147/ atw-Schnellstatistik, Kernkraftwerke 1972
Atomwirtschaft, 18, 3 (1973), 142-144
- /148/ R. Gilli u.a.:
Die Helium-Reinigungsanlage
Atomwirtschaft, 11, 5 (1966), 259-261
- /149/ C.B. v.d. Decken u.a.:
Stand der Heliumtechnologie bei Hochtemperatur-
reaktoren
Atomwirtschaft, 16, 8/9 (1971), 468-472
- /150/ W.J. Knapp jr.:
High temperature Gas Cooled Reactor Waste Disposal
AIChE Symp. Series 68, 123 (1972), 45-51
- /151/ D. Holm:
Abgabe radioaktiver Stoffe in die Abluft beim HTR-
Versuchskraftwerk der AVR in Jülich
Reaktortagung 1973 /96/, S.598
- /152/ G. Gough, D. Kern:
Studies on the Coating of Fuel Particles for the
Dragon Reactor Experiment
J. Nucl. Eng. 21 (1967), 623
- /153/ H. Kiefer u.a.:
Personal Dose Burden Caused by Nuclear Research
Centres
Genf 1971 /110/, P.141, Vol.11

- /154/ BBC:
Sicherheitsbericht des THTR-Prototyp 300 MWe KKW
2. Nachtrag vom 1.1.1971, unveröffentlicht
- /155/ J.W. Landis:
Environmental Effects of Producing Electric Power
Washington 1970 /129/, P.1617, Part 2
- /156/ A.W. Castleman:
LMFBR Safety, 1. Fission-Product Behaviour in Sodium
Nucl. Safety 11, 5 (1970), 379-390
- /157/ G.W. Keilholtz, G.C. Battle jr.:
Fission-Product Release and Transport in Liquid-Metal-
Cooled Fast Breeder Reactors
Nucl. Safety 9, 6 (1968), 494-509
- /158/ Konsortium SNR:
Sicherheitsbericht: SNR 300 MWe Prototyp-Kernkraftwerk
mit Schnellem Natriumgekühlten Reaktor
Oktober 1969 und März 1971 (unveröffentlicht)
- /159/ G.L. O'Neill u.a.:
Demonstration of Fission-Gas Venting from Fast Oxide
Reactor Fuel Elements
Trans. Amer. Nucl. Soc., 7, 1 (1964), 92-93
- /160/ W. Schikarski, H. Wild:
Zur Umweltbelastung durch ein natriumgekühltes Schnell-
brüter-Kraftwerk
Reaktortagung 1971 /103/, S.502
- /161/ K. Thormeier:
Die Löslichkeit von Edelgasen im Reaktorkühlmittel
Natrium und sich daraus ergebende Sicherheitsaspekte
Berichte KFK-1166 (1970)

- /162/ K.E. Cowser u.a.:
Kr-85 and Tritium in an Expanding World Nuclear Power
Economy
Health Physics Division Annual Progress Report 1966/67,
ORNL-4168
- /163/ USAEC:
Final Environmental Statement, Liquid Metal Fast Breeder
Reactor Demonstration Plant
April 1972
- /164/ J.A. Cochran u.a.:
An Investigation of Airborne Radioactive Effluent
from an operating FRP
Report BRH/NERHL 70-3, (1970)
- /165/ H. Beaujean u.a.:
Gaseous Rad. Emissions from Reprocessing Plants and
their possible Reduction
Aix-en-Provence 1973 /13/, SM-172/17
- /166/ Koch:
Entwicklung des Freonverfahrens zur Abscheidung von
Edelgasen aus der Abluft von Wiederaufarbeitungs-
anlagen
PNS-Notiz Nr. 35/73 des Kernforschungszentrums
Karlsruhe, unveröffentlicht
- /167/ D.E. Ferguson u.a.:
Recovery of Liquid-Metal Fast-Breeder Reactor
(LMFBR) Fuels
Genf 1971 /110/, P.395, Vol.8
- /168/ ORNL Chemical Technology Division Annual Progress
Report for Period Ending, March 31, 1971
Report ORNL-4682 (1972)

- /169/ J.A. Martin jr.:
Calculations of Environmental Radiation Exposures
and Population Doses Due to the Effluents from a
Nuclear Fuel Reprocessing Plant
Rad. Data and Rep. 14 (1973), 59-76
- /170/ B. Shleien:
An Estimate of Radiation Dose received by Individuals
living in the vicinity of a NFRP in 1968
Report BRH/NERHL 70-1 (1970)
- /171/ R. v. Ammon:
Zusammensetzung der Abgase aus Wiederaufarbeitungs-
anlagen
PNS-Notiz Nr. 36/73 des Kernforschungszentrums Karlsruhe,
unveröffentlicht
- /172/ P. Kotrappa u.a.:
Study of Airborne Radioactivity in the operation of
a Fuel Reprocessing Plant
IAEA-Symposium: Assessment of Airborne Radioactivity,
Wien, 3.-7. Juli 1967, P.161
- /173/ H. Fessler u.a.:
Preliminary Experience Gained in Monitoring Kr-85-
Immissions in the Neighbourhood of the Karlsruhe
Reprocessing Plant
Aix-en-Provence 1973 /13/, SM-172/23
- /174/ E. Merz:
Aufarbeitung bestrahlter Brenn- und Brutstoffe aus
Thorium-Reaktoren
Atomwirtschaft 13, 8/9 (1968), 417-421
- /175/ H. Beaujean u.a.:
Behandlung gasförmiger und flüssiger hochradioaktiver
Abfallprodukte aus der Wiederaufarbeitung von HTGR-
Brennelementen
Reaktortagung 1972 /99/, S.267

- /176/ M. Laser u.a.:
Off-Gas Treatment and Krypton Disposal in HTGR-Fuel
Element Reprocessing
IAEA Symposium: Management of Radioactive Wastes from
Fuel Reprocessing, Paris, 27. Nov. - 1. Dez. 1972, P.77
- /177/ K.E. Cowser, J. Tadmor:
Kr-85 and Tritium in an Expanding World Nuclear Power
Economy
Health Physics Division Annual Progress Report 1967/68,
ORNL-4316
- /178/ Siting of FRP and Waste Management Facilities
Report-ORNL-4451 (1970)
- /179/ Wm. L. Lennemann:
Management of Radioactive aqueous Wastes from U.S. Atomic
Energy Commissions Fuel Reprocessing Operations, Experience
and Planning
Paris 1972 /176/, Discussion, P.406
- /180/ J.L. Russel, F.L. Galpin:
A Review of Measured and Estimated Doses at Fuel
Reprocessing Plants
Paris 1972 /176/, P.99
- /181/ E.E. Sinclair u.a.:
Existing and Projected Plants and Processes for thermal
Reactor Fuel Recovery
Genf 1971 /110/, P.445, Vol.8
- /182/ A.W. Kenny, M.T. Mitchell:
United Kingdom Waste management policy
IAEA-Symposium, Management of Low-and Intermediate-
Level Radioactive Wastes, Wien, 1970, P.339-357

- /183/ T.G. Hughes u.a.:
Development, Design and Operation of the Oxide Fuel
Reprocessing Plant at the Windscale Works of British
Nuclear Fuels Ltd.
Genf 1971 /110/, P.367, Vol.8
- /184/ J.G. Boyle u.a.:
Operating Experience with the United Kingdom Fuel
Reprocessing Plants at Windscale and Dounreay
Genf 1971 /110/, P.525, Vol.8
- /185/ F. Baumgärtner, E. Merz:
Die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen in der
BRD
Bericht KFK-1178 (1970)
- /186/ P. Faugeras:
Traitement des combustibles hautement irradiés
Genf 1971 /110/, P.429, Vol.8
- /187/ R. Kraemer u.a.:
Beschreibung eines Kontrollexperimentes in der WAA
EUROCHEMIC
Bericht KFK-907 (1969)
- /188/ H. Eschrich u.a.:
Management of Fuel Reprocessing Wastes at Eurochemic
Paris 1972 /176/, P.313
- /189/ C.J. Joseph u.a.:
Operating Experience and Planned Improvements in the
Eurochemic Reprocessing Plant
Genf 1971 /110/, P.349, Vol.8
- /190/ W. Schüller u.a.:
Start-up Experience with the Karlsruhe Reprocessing
Plant and Long-Range Fuel Reprocessing Development
Objectives in the FRG
Genf 1971 /110/, P.483, Vol.8

- /191/ G. Calleri:
Italian Progress Report on Reprocessing of Irradiated
Fuel
Genf 1971 /110/, P.375, Vol.8
- /192/ J.E. Logsdon, W.N. Hickey:
Radioactive Waste Discharges to the Environment from
a Nuclear Fuel Reprocessing Plant
Rad. Data and Reports 12, 6 (1971), 305-312
- /193/ F. Schuhmann:
Rückhaltung von Krypton durch Aktivkohle
Isotopenpraxis 9, 1 (1973), 23-32
- /194/ Washington 70 /129/
P.1715, Part 2
- /195/ A.W. Eitz, H. Ramdohr:
Die Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe
Atomwirtschaft 15, 2 (1970), 74-76
- /196/ H. Kiefer, W. Koelzer:
Jahresbericht 1971 der Abteilung Strahlenschutz
und Sicherheit
Bericht KFK-1565 (1972)
- /197/ H. Kiefer, W. Koelzer:
Jahresbericht 1972 der Abteilung Strahlenschutz
und Sicherheit
Bericht KFK-1818 (1973)
- /198/ J. Schwibach:
Persönliche Mitteilung
Bundesgesundheitsamt Berlin, Sept.73
- /199/ G. Blässer, K. Wirtz:
Nukleare Grundlagen für Standort- und Gebäudewahl
von Kernreaktoren
Nukleonik 3, 4 (1961), 164-178, 3, 5 (1961), 210-231

- /200/ R.H. Bieri u.a.:
The Noble Gas Contents of Pacific Seawaters
J. of Geophys. Research 71, 22 (1966), 5243-5265
- /201/ A. Walton u.a.:
Carbon-14 Concentrations in the Atmosphere and
Carbon Dioxide Exchange Rates
J. of Geophys. Research 75, 5 (1970), 3089-3098
- /202/ W.S. Broecker:
Natural Radiocarbon in the Atlantic Ocean
J. of Geophys. Research 65, 9 (1960), 2903-2931
- /203/ K.K. Turekian:
The Oceans, Streams and Atmosphere
Handbook of Geochemistry, Springer-Verlag Berlin-
Heidelberg-New York, 1969
- /204/ J. Tadmor:
Deposition of Kr-85 and Tritium Released from a
Nuclear Fuel Reprocessing Plant
Health Physics 24 (1973), 37-42
- /205/ H. Zindler:
Zu einigen Problemen der Abgabe rad. Gase und
Aerosole aus Kernanlagen an die Atmosphäre
Bericht SZS 17/69 (1969)
- /206/ H. Fortak:
Meteorologie
"Das Wissen der Gegenwart", C.A. Koch's-Verlag 1971
- /207/ D. Lal, Rama:
Characteristics of Global Tropospheric Mixing based
on Man-Made C-14, H-3 and Sr-90
J. of Geophys. Research 71, 2 (1966), 2865-2874

- /208/ H. Faust:
Das große Buch der Wetterkunde
Econ Verlag, Düsseldorf-Wien, 1968
- /209/ C.E. Junge:
Studies of Global Exchange Processes in the Atmosphere
by Natural and Artificial Tracers
J. of Geophys. Research 68, 13 (1963), 3849-3856
- /210/ D.H. Peirson, R.S. Cambray:
Interhemispheric Transfer of Debris from Nuclear
Explosions using a simple Atmospheric Modell
Nature, 216, 25 (1967), 755-758
- /211/ J.B. Knox, K.R. Peterson:
Estimates of Dose to Northern Hemisphere Population
Groups from Kr-85 Emitted by a single Nuclear Fuel
Reprocessing Plant
Nucl. Safety 13, 2 (1972), 130-135
- /212/ R. Pannetier:
Original Use of the Rad. Tracer Gas Kr-85 to Study
the Meridian Atmospheric Flow
J. of Geophys. Research 75, 10 (1970), 2985-2989
- /213/ G. Grathwohl:
Erzeugung und Freisetzung von Tritium durch Reaktoren
und Wiederaufbereitungsanlagen und die voraussichtliche
Belastung der Hydrosphäre bis zum Jahr 2000
Bericht KFK-Ext 4/73-36
- /214/ B.I. Spinrad:
The Role of Nuclear Power in Meeting World Energy
Needs
Proceedings of the IAEA-Symposium on Environmental
Aspects of Nuclear Power Stations, New York,
10.-14. August (1970), 57-82

- /215/ Forecast of Growth of Nuclear Power
Report Wash-1139 (1971)
- /216/ R. Boehnert, H. Bonka:
Zu erwartende Tritiumverunreinigung durch Kern-
reaktoren in der Luft und im Wasser bei homogener
Verteilung bis zum Jahr 2000
Bericht JÜl-763-RG (1971)
- /217/ R.E. Shuppig u.a.:
Kr-85 Levels in the Environment Determined from
Dated Kr-Gas-Samples
Rad. Data and Rep. 11, 12 (1970), 671-672
- /218/ R.L. Shearin u.a.:
Study of the Feasibility of Measuring Kr-85 through
a National Surveillance System
IAEA Symposium: Rapid Methods for Measuring Radio-
activity in the Environment, Neuherberg, 5.-6. Juli
1971, P.649
- /219/ H. Kiefer, W. Koelzer:
Jahresbericht 1970 der Abteilung Strahlenschutz und
Sicherheit
Bericht KFK-1365 (1971)
- /220/ D. Ehhalt u.a.:
Kr-85 in the Atmosphere
Genfer Konferenz 1964, P.45
- /221/ J. Le Bouhellec:
Problemes posés par le comportement et le confinement
des produits de fission au cours du traitement des
combustibles de surgenerateurs
Paris 1972 /176/, P.1057

- /222/ N.I. Sax u.a.:
Surveillance for Kr-85 in the Atmosphere
Rad. Data and Reports, 10, 3 (1969), 99-101
- /223/ B.W. Bentley:
1970 Annual Report of Environmental Radiation in
New York State
Albany, N.Y. New York, Dept. of Environmental
Conservation (1972)
- /224/ 1971 Annual Report of the Eastern environmental
rad. laboratory
Report NP-19449 (1972)
- /225/ H. Frewer, W. Keller:
Das 660 MW-Kernkraftwerk Stade mit Siemens Druck-
wasserreaktor
Atomwirtschaft 12, 12 (1967), 568-573
- /226/ H. Stünkel:
Geschlossener Kühlmittel- und Gashaushalt des DWR's
Reaktortagung 1972 /99/, S.686
- /227/ K. Förster:
Die Verzögerung radioaktiver Spaltedelgase in Schutz-
oder Abgasen von Reaktoren mit Aktivkohlestrecken
Kerntechnik 13, 5 (1971), 214-219
- /228/ C.M. Slansky:
Separation processes for Noble-Gas Fission Products
from the Off-Gas of Fuel-Reprocessing Plants
Atomic Energy Review 9, 2 (1971), 423-440
- /229/ S. Kadoya u.a.:
Protecting the Ocean and Atmosphere from Contamination
by Radioactive Waste Disposal Activities
Genf 1971 /110/, P.305

- /230/ C.M. Slansky et al.:
Nuclear Power Growth spurs Interest in Fuel Plant
Wastes
Environ. Sci. Technol. 3 (1969), 446-451
- /231/ G.W. Keilholtz:
Krypton-Xenon Removal Systems
Nuclear Safety 12, 6 (1971), 591-599
- /232/ O.O. Yarbrow u.a.:
Env. Protection during Fuel Processing
Report Conf-720522-5 (1972)
- /233/ Ullmann u.a.:
Reinigung gasförmiger Auswürfe von rad. Aerosolen
und Gasen
Bericht SZS-142 (1972)
- /234/ K. Hain u.a.:
Kr- und Xe-Abscheidung aus der Abluft kerntechnischer
Anlagen
in PNS 1. Halbjahresbericht 1972
Bericht KFK-1702 (1972), 14-17
- /235/ Cryogenics Challenges Charcoal for BWR Off-Gas
Nucleonics Week 12, 20 (1971), 4-5
oder
Kälte-destillation der Abgase aus SWR
IRS Kurzinformation 71/54/D (1971)
- /236/ M.J. Stephenson u.a.:
Experimental Investigation of the Removal of Kr
and Xe from contaminated Gas Streams by Selective
Absorption in Fluorocarbon Solvents
Phase I USAEC Rep. K-1780 (1970)
Phase II USAEC Rep. K-1794

- /237/ M.J. Stephenson u.a.:
Recent Developments in Controlling the Release of
Noble Gases by Absorption in Fluorocarbons
Report K-L-6292 (1972)
- /238/ M.J. Stephenson u.a.:
Experimental Demonstration of the Selective Absorption
Process for Krypton-Xenon Removal
Report K-L-6294 (1972)
- /239/ M.E. Whathley u.a.:
Decontamination of HTGR Reprocessing Off-Gases
Report Conf-720823-12 (1972)
- /240/ C.K. Beck u.a.:
Regulatory perspectives and emphasis and safety
experience for Nuclear Power Reactors
Genf 1971 /110/, P.95, Vol.3
- /241/ W.E. Clark. R.E. Blanco:
Encapsulation of Noble Fission Product Gases in
Solid Media prior to Transportation and Storage
Report ORNL-4473 (1970)
- /242/ U. Schneider:
Untersuchungen zur Fixierung von Spaltedelgasen
in Linde-Molekularsieben
Atomkernenergie 18, 1 (1971), 88
- /243/ P.C. Reist:
The disposal of Waste Rad. Gases in Porous Underground
Media
Nucl. Appl. 3, 8 (1967), 474-480
- /244/ D.G. Jacobs:
Behaviour of Radioactive Gases Discharged into the
Ground
Nucl. Safety 8, 2 (1967), 175-178

- /245/ Tadmor, K.E. Cowser:
Underground Disposal of Kr-85 from Nuclear Fuel
Reprocessing Plant
Nucl. Eng. and Design 6 (1967), 243-250
- /246/ C.A. Rohrman:
Availability and applications of radioactive and
stable by-products from the chemical processing
of spent Nuclear Power
Report BNWL-SA-4108 (1971)
- /247/ C.A. Cook:
Argon, Helium and the Rare Gases, Bd. II
New York: Interscience Publishers 1961
- /248/ A. Römpp:
Isotope
Kosmos-Verlag, Stuttgart, Band 238, 1963
- /249/ S.C. Cullen, E.G. Gross:
The Anesthetic Properties of Xenon in Animals and
Human Beings, with Additional Observations on
Krypton
Science 113 (1951), 580-582
- /250/ H.H. Koelle:
Handbook of astronautical Engineering
Mc Graw-Hill Book Company Inc., 1961, 1. Ausgabe
- /251/ R.W. Haywood:
Analysis of engineering cycles
Pergamon Press, 1967, 1. Ausgabe
- /252/ Piraux:
Radio-Isotope und ihre Anwendung in der Industrie
Philips techn. Bibliothek, 1965

- /253/ Schmidt-Küster:
Anwendung rad. Isotope in der Textilforschung und
Technik
Verlag Karl Thiemig KG, München, 1964
- /254/ R.-H. Müller:
Umgang mit rad. Stoffen
Carl Hauser Verlag, München, 1966
- /255/ K. Götting u.a.:
Die Technik der Luftwechselbestimmung mit rad. Kr-85
und ihre Anwendung auf Untersuchungen in Ställen
Bericht KFK-1524 (1972)
- /256/ Anwendung der Isotope in der Technik
Jahrestagung der Isotopen-Studiengesellschaft e.V., 1959
Schriftenreihe des Bundesministers für Atomkernenergie
und Wasserwirtschaft, Heft 2
- /257/ Glasstone:
Die Wirkung der Kernwaffen
Carl Heymanns Verlag, Köln, 1964