

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

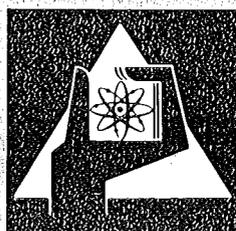
August 1975

KFK 2153

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
Projekt Nukleare Sicherheit

Erzeugung und Freisetzung von
Sr-89, Sr-90, Ru-103, Ru-106, Cs-134, Cs-135, Cs-137, Ce-141 und Ce-144
durch Kernreaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen
und die voraussichtliche radiologische Belastung
bis zum Jahr 2000

D. Schiesser



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 2153

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
Projekt Nukleare Sicherheit

Erzeugung und Freisetzung von Sr-89, Sr-90, Ru-103, Ru-106,
Cs-134, Cs-135, Cs-137, Ce-141 und Ce-144 durch Kernreaktoren
und Wiederaufarbeitungsanlagen und die voraussichtliche
radiologische Belastung bis zum Jahr 2000

D. Schiesser

Diplomarbeit, Fakultät für Maschinenbau,
Universität Karlsruhe (1975)

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

Erzeugung und Freisetzung von Sr-89, Sr-90, Ru-103, Ru-106, Cs-134, Cs-135, Cs-137, Ce-141 und Ce-144 durch Kernreaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen und die voraussichtliche radiologische Belastung bis zum Jahr 2000

Es wird die natürliche Produktion der langlebigen radioaktiven Isotope der Elemente Strontium, Ruthenium, Cäsium und Cer angegeben sowie die Produktion durch Kernwaffenexplosionen und kerntechnische Anlagen. Für die verschiedenen Typen von Kernkraftwerken (1000 MWe) werden die spezifischen Produktionsraten berechnet und die zur Zeit üblichen Abgaberraten zusammengestellt. In gleicher Weise werden die Abgaberraten der zugehörigen 1500t/a- bzw. 60t/a-Wiederaufarbeitungsanlagen dargestellt, basierend auf derzeitig erreichbaren Dekontaminationsfaktoren. Dabei wird die Abklingzeit als Parameter variabel gehalten. Es werden aus der Freisetzung der Nuklide aus Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungsanlagen resultierende lokale Strahlenbelastungen angegeben. Ausgehend vom prognostizierten Einsatz von Kernenergieanlagen wird die akkumulierte Aktivität der aus diesen Anlagen bis zum Jahr 2000 freigesetzte Einzelnuclide berechnet.

Production and Release of Sr-89, Sr-90, Ru-103, Ru-106, Cs-134, Cs-135, Cs-137, Ce-141, and Ce-144 by Nuclear Power Plants and Reprocessing Plants and the Expected Radiological Burden until the Year 2000

The natural production of long-lived radioisotopes of the elements strontium, ruthenium, cesium and cer is summarised in this report together with the yields from nuclear weapons tests and nuclear facilities. Specific production rates and the consequent release rates, representative of time are evaluated for the different types of nuclear power plants (1000 MWe). Estimated release rates from the inherent 1500t/a- respectively 60t/a - fuel reprocessing plants are also included, based on attainable decontamination factors at present. Therewith the decay-time is kept variable as a parameter. Local radiological burdens are specified, resulting from the releases of nuclides by nuclear power plants and reprocessing plants. Based on the forecasted onset of nuclear facilities, the global accumulated activity of single-nuclides released of these facilities until the year 2000 is calculated.

I N H A L T

	Seite
<u>1. Einleitung</u>	1
<u>2. Natürliches Vorkommen und Eigenschaften</u>	5
2.1 Natürliches Vorkommen, physikalische und chemische Eigenschaften	5
2.2 Kernphysikalische Eigenschaften von radioaktiven Isotopen	8
<u>3. Strahlengefährdung, kritische Organe sowie zulässige Werte für Dosis und Konzentration</u>	15
3.1 Strahlengefährdung	15
3.1.1 Strahlengefährdung durch Inkorporation	15
3.1.2 Strahlengefährdung durch an der Erdoberfläche abgelagerte Nuklide	20
3.2 Maximal zulässige Dosis- und Konzentrationswerte	22
<u>4. Natürliche Strahlungsquellen</u>	27
<u>5. Aktivitätserzeugung und -freisetzung durch Kernexplosionen</u>	30
5.1 Oberirdische Explosionen	30
5.1.1 Bis Ende 1972 erzeugte und freigesetzte Aktivität	30
5.1.2 Eigenschaften und Verhalten von radioaktiven Aerosolen	34
5.2 Kratererzeugende und abgeschlossene unterirdische Explosionen	37
<u>6. Aktivitätserzeugung und -freisetzung durch Kernkraftwerke</u>	40
6.1 Aktivitätserzeugung im Brennstoff	40
6.1.1 Spaltprodukte	40
6.1.2 Aktivierungsprodukt Cs-134	45

	Seite
6.2 Aktivitätsfreisetzung aus dem Brennelement	50
6.2.1 UO ₂ -Brennstäbe	50
6.2.2 Beschichtete Brennstoffteilchen	55
6.3 Aktivitätsfreisetzung durch Kernkraftwerke	60
6.3.1 Leichtwasserreaktoren	60
6.3.2 Schwerwasserreaktoren	75
6.3.3 Gasgekühlte Reaktoren	75
6.3.4 Schnelle natriumgekühlte Brutreaktoren	80
<u>7. Aktivitätsfreisetzung durch Wiederaufarbeitungs-</u> <u>anlagen</u>	 83
7.1 Wiederaufarbeitung und Aktivitätsfluß	83
7.2 Aktivitätsabgaben und Dekontaminations-	
faktoren von Wiederaufarbeitungsanlagen	88
<u>8. Voraussichtliche radiologische Belastung bis zum</u> <u>Jahr 2000</u>	 99
8.1 Lokale Belastung	99
8.2 Globale Belastung	106
<u>9. Zusammenfassung</u>	123
<u>10. Anhang</u>	126
10.1 Definition von Aerosolen	126
10.2 Berechnung der weltweit aus kerntechnischen	
Anlagen freigesetzten akkumulierten Aktivität	127
10.3 Technische Verwendungsmöglichkeiten lang-	
lebiger Spaltprodukte	131
10.4 Endlagerungs- und Beseitigungsmöglichkeiten	
für radioaktive Abfälle	133
10.4.1 Vorübergehende Lagerung	134
10.4.2 Endgültige Lagerung	136
10.4.3 Endgültige Beseitigung	140
<u>Literaturverzeichnis</u>	143

1. Einleitung

Die langlebigen Isotope der Elemente Strontium, Ruthenium, Cäsium und Cerium gehören zu jener Isotopengruppe, die bei Normalbetrieb kerntechnischer Anlagen weniger durch relativ große Freisetzungsraten gekennzeichnet ist, wie z.B. die Edelgase oder Tritium; ihre Bedeutung liegt ähnlich wie bei den Jodisotopen darin, daß ihr Beitrag zur radiologischen Belastung erst über Anreicherungs Vorgänge in der Biosphäre und durch Akkumulationsvorgänge im menschlichen Körper zum Tragen kommt.

Von den in dieser Arbeit erfaßten Nukliden Sr-89, Sr-90, Ru-103, Ru-106, Cs-134, Cs-135, Cs-137, Ce-141 und Ce-144 können zur Zeit nur Sr-90 und Cs-137 meßtechnisch im menschlichen Körper nachgewiesen werden. Ihre Anwesenheit ist auf den Fallout der oberirdischen Kernwaffenexplosionen zurückzuführen /1/. Bei diesen bisherigen oberirdischen Explosionen wurden große Aktivitätsmengen freigesetzt, die, wie in dieser Arbeit gezeigt wird, im Fall von Sr-90 und Cs-137 bis zum Jahr 2000 noch über den Mengen liegen werden, die bis zu diesem Zeitpunkt durch kerntechnische Anlagen freigesetzt werden. Erste vorausschauende Studien zur radiologischen Belastung durch kerntechnische Anlagen /2/ messen den genannten Nukliden ebenfalls größere Bedeutung bei, insbesondere den Cäsiumisotopen.

Die langlebigen Strontium-, Ruthenium-, Cäsium- und Ceriumisotope entstehen bei der Kernspaltung vornehmlich indirekt (zu 80 bis 100%) durch β^- -Zerfall von Vorläufern, mit Ausnahme des Cs-134, das durch (n, γ)-Reaktion aus Cs-133 gebildet wird. Ein geringer Anteil der im Brennstoff erzeugten Nuklide gelangt während des Reaktorbetriebs aufgrund defekter Brennstabhüllen in das Reaktorkühlmittel. Von diesen ausgetretenen Mengen wird der überwiegende Anteil durch Filterung, Verdampfung, Ionenaustausch und Fällung aus dem Abwasser entfernt bzw. mit Abluftfiltern zurückgehalten. Der restliche

sehr geringe Anteil wird auf dem Abwasserwege oder - bedingt durch technisch nicht vermeidbare Kühlmittelleckagen - über den Abluftkamin in Form von Aerosolen in die Atmosphäre freigesetzt.

Die in den Brennelementen verbliebenen Nuklide gelangen mit dem abgebrannten Brennstoff zur Wiederaufarbeitungsanlage, wo sie bei den Auflösungsprozessen freigesetzt werden, wobei wiederum ein geringer Anteil in die Hydrosphäre bzw. Atmosphäre gelangt. Der weitaus größte Anteil der Nuklide kommt zur Endlagerung.

Eine radiologische Belastung durch die freigesetzten Nuklide ist über mehrere Bestrahlungspfade möglich (Inhalation, Direktbestrahlung usw.), der weitaus größte Beitrag wird über die Nahrungsmittelkette erwartet; lediglich bei den Cäsiumisotopen wird durch äußere γ -Strahlung von abgelagerten Isotopen noch ein bemerkenswerter Beitrag zur Dosisbelastung geleistet.

Vom Körper aufgenommene Strontiumisotope lagern sich wie Calcium im Knochen ein und verbleiben dort fast während der gesamten Lebenszeit. Die Cäsiumisotope verteilen sich aufgrund ihrer chemischen Ähnlichkeit mit Kalium über den gesamten Körper, in Knochen lagern sie sich ebenfalls ab. Für eingenommenes Ruthenium ist der Magen-Darm-Trakt das kritische Organ. Cerium reichert sich in Knochen, Leber und im Magen-Darm-Trakt an.

Die lokale Belastung durch Aktivitätsaustritt langlebiger Radionuklide aus einzelnen Kernkraftwerken /3,4,5,6,7,8,9,10, 11,12,13,14/ und Wiederaufarbeitungsanlagen /13,14,15,16, 17,18,19/ wurde in einer Reihe von Studien untersucht. Über regional bis zum Jahr 2000 zu erwartende Dosen liegen nur in geringem Umfang Veröffentlichungen /2,20/ vor, häufig wurden nur der Fallout aus Kernexplosionen und die Nuklide Sr-90, Cs-134 und Cs-137 /21,22,23,24/ berücksichtigt, was auch bei den einzigen dem Autor bekannten globalen Dosisabschätzungen /22,24/ der Fall ist. In einer Reihe von

Arbeiten /25,26,27/ wurde ferner die bis zum Jahr 2000 weltweit zu erwartende aus kerntechnischen Anlagen akkumulierte Aktivität an Sr-90 und Cs-137 abgeschätzt.

Unter dem Gesichtspunkt, daß in den nächsten Jahrzehnten mit einem steilen Anstieg der Kerntechnik, verbunden mit einer starken Konzentrierung kerntechnischer Anlagen in Gebieten hoher Industrie- und Bevölkerungsdichte zu rechnen ist, werden vorausschauende Studien, welche die lokal, regional oder global durch diese Anlagen zu erwartenden Strahlenbelastungen abschätzen, als dringend notwendig erachtet. Zur Durchführung derartiger Studien bedarf es der kritischen Durchsicht und Bearbeitung der bisherigen Erfahrungswerte (Aktivitätsabgaberraten) von in Betrieb befindlichen kerntechnischen Anlagen. Dies gilt besonders für Wiederaufarbeitungsanlagen, bei denen die Parameter Abklingzeit und Dekontaminationsfaktor allgemein noch nicht festliegen. Hier sind meistens nur Abschätzungen der Freisetzungsraten aufgrund zur Zeit erreichter Dekontaminationsfaktoren möglich.

In der vorliegenden Arbeit wird nach einer kurzen Beschreibung der Eigenschaften von Strontium, Ruthenium, Cäsium und Cerium auf die radiologische Gefährdung durch die genannten langlebigen Isotope eingegangen. Die Aktivitätsfreisetzungen aus natürlicher Produktion (Spontanspaltung) sowie von oberirdischen und unterirdischen Kernexplosionen werden abgeschätzt.

Unter Zugrundelegung bisher gesammelter Erfahrungswerte wird versucht, eine Abschätzung der Einzelnuclidabgaben verschiedener 1000 MWe-Reaktortypen zu geben. In ähnlicher Weise wird der Aktivitätsfluß in Wiederaufarbeitungsanlagen beschrieben, und aus den vorliegenden Aktivitätsabgaben und dem Brennstoffdurchsatz von zum Teil noch nicht voll ausgelasteten WAA werden zur Zeit erreichbare Dekontaminationsfaktoren ermittelt. Daraus werden die Einzelnuclidabgaben von im europäischen Raum geplanten großen Wiederaufarbeitungsanlagen mit 1500 t/a (LWR- bzw. LMFBR-Brennstoff) oder 60 t/a (HTGR-Brennstoff) Durchsatz sowie die resultierenden radio-

logischen Belastungen mit der Abklingzeit als Parameter berechnet.

Es wird die weltweit bis zum Jahr 2000 an Einzelnucliden akkumulierte Aktivität durch Freisetzungen aus kerntechnischen Anlagen berechnet, wobei Kernkraftwerke und Wiederaufarbeitungsanlagen getrennt behandelt werden. In einem Anhang werden die verwendeten Rechenverfahren detailliert dargestellt, die evt. technische Verwendungsmöglichkeit langlebiger Spaltprodukte untersucht und verschiedene Endlagerungsmöglichkeiten für radioaktive Abfälle diskutiert.

Zum Studium wurde die zugängliche Literatur herangezogen, soweit sie bis 1. Juni 1974 erschien.

2. Natürliches Vorkommen und Eigenschaften

2.1 Natürliches Vorkommen, physikalische und chemische Eigenschaften

Einen Überblick über die in der Natur vorhandenen Elemente Strontium, Ruthenium, Cäsium und Cerium gibt Tabelle 2-1. Wie ersichtlich, ist das Vorkommen im Meer gegenüber demjenigen in der Erdkruste vernachlässigbar. Die Luft enthält ebenfalls nur äußerst geringe Mengen der genannten Elemente. Die Masse der Erdkruste (bis 60 km Tiefe) beträgt $9 \cdot 10^{19}$ t /28/, die Masse des gesamten Wassers $1,37 \cdot 10^{18}$ t /29/.

Tabelle 2-1 Natürliches Vorkommen in der Erdkruste und im Meer /30,31,32,33,34/

Element	Erdkruste [g/t]	Meer [g/t]	gesamtes Vorkommen [t]
Strontium	300	8	$27 \cdot 10^{15}$
Ruthenium	$\approx 0,001$	$0,7 \cdot 10^{-6}$	$90 \cdot 10^9$
Cäsium	7	$0,3 \cdot 10^{-3}$	$0,63 \cdot 10^{15}$
Cerium	46	$1,2 \cdot 10^{-6}$	$4,14 \cdot 10^{15}$

Die chemischen und physikalischen Eigenschaften sind besonders im Hinblick auf das Verhalten im Reaktor, in der Atmosphäre, Hydrosphäre und Biosphäre sowie das Stoffwechselverhalten beim Menschen von Bedeutung. In Tabelle 2-2 sind einige wichtige Eigenschaften zusammengestellt. Die hier behandelten Elemente gehören chemisch zur Gruppe der Metalle.

Tabelle 2-2 Physikalische und chemische Eigenschaften
/31,32,35,36/

	Strontium	Ruthenium	Cäsium	Cerium
Ordnungszahl	38	44	55	58
Elementsymbol	Sr	Ru	Cs	Ce
Atomgewicht	87,63	101,7	132,91	140,13
Gruppe im Periodensystem	2.Hauptgruppe (Erdalkalimet.)	8.Nebengr.	1.Hauptgr. (Alkalimet.)	Lanthanide
Wertigkeit	2	3;4;5;8	1	3;4
Kristallstruktur		hexagonal	krz	kfz*
Dichte [\bar{g}/cm^3]	2,6	12,41	1,87	6,77*
Atomvolumen [$\bar{\text{cm}}^3/\text{g-Atom}$]	33,7	8,18	70,32	20,7
Schmelzpunkt [$^{\circ}\text{C}$]	757	≈ 2250	28,5	795
Siedepunkt [$^{\circ}\text{C}$]	1366	3900	670	3468
therm. Neutronenabsorptionsquerschnitt [$\bar{\text{barn}}$]	1,16	2,46	29	0,70

* gilt für $-10^{\circ}\text{C} < T \leq 730^{\circ}\text{C}$;

für $T > 730^{\circ}\text{C}$: krz; $\rho = 6,67 \text{ g}/\text{cm}^3$

Strontium

Das Erdalkalimetall Strontium gehört zu den häufigsten Elementen, in der Natur tritt es nur gebunden auf. Für Pflanzen und Tiere spielt es die Rolle eines Spurenelements. In den Knochen kann es aufgrund seiner chemischen Ähnlichkeit mit Calcium dieses teilweise ersetzen /32/. Diese Eigenschaft

des Strontium ist von besonderer Bedeutung. Für Wachstum und Entwicklung von Pflanzen scheint Strontium nicht wichtig zu sein /35/. Natürliches Strontium setzt sich aus den folgenden stabilen Isotopen zusammen /37/:

Sr-84	0,56%
Sr-86	9,86%
Sr-87	7,02%
Sr-88	82,56%

Der Anteil der natürlichen radioaktiven Strontiumisotope beträgt nur etwa $10^{-16}\%$. Auf sie wird in Kapitel 4 näher eingegangen.

Ruthenium

Zu den seltensten Edelmetallen gehört Ruthenium, es tritt in der Natur in geringen Beimengungen als Begleiter des Platins auf /31,32/. Mineralisch kommt es auch als Laurit (RuS_2) in Südafrika vor /32,35/. Es existieren folgende stabile Rutheniumisotope /37/:

Ru-96	5,51%
Ru-98	1,87%
Ru-99	12,72%
Ru-100	12,62%
Ru-101	17,07%
Ru-102	31,61%
Ru-104	18,58%

Der Anteil der radioaktiven Isotope ist mit etwa $10^{-12}\%$ äußerst gering.

Cäsium

Das Alkalimetall Cäsium kommt in der Natur nicht in gediegener Form vor, bedeutendstes Cs-Mineral ist das Pollucit (Elba) /32/.

Natürliches Cäsium besteht zu 100% aus dem stabilen Isotop Cs-133 /37/. Die radioaktiven Cäsiumisotope machen nur etwa $10^{-9}\%$ des gesamten Cäsiumvorkommens aus. In seinen Eigenschaften ist Cäsium dem Element Kalium ähnlich.

Cerium

Cerium gehört zu den sogenannten "seltenen Erden", es ist jedoch häufiger in der Erdkruste vorhanden als z.B. Zinn und Blei. In der Natur kommt es sehr verstreut als Mineral vor, am stärksten konzentriert im Monazitsand und im Cerit /32,35/. Natürliches Cerium setzt sich aus folgenden stabilen Isotopen zusammen /37/:

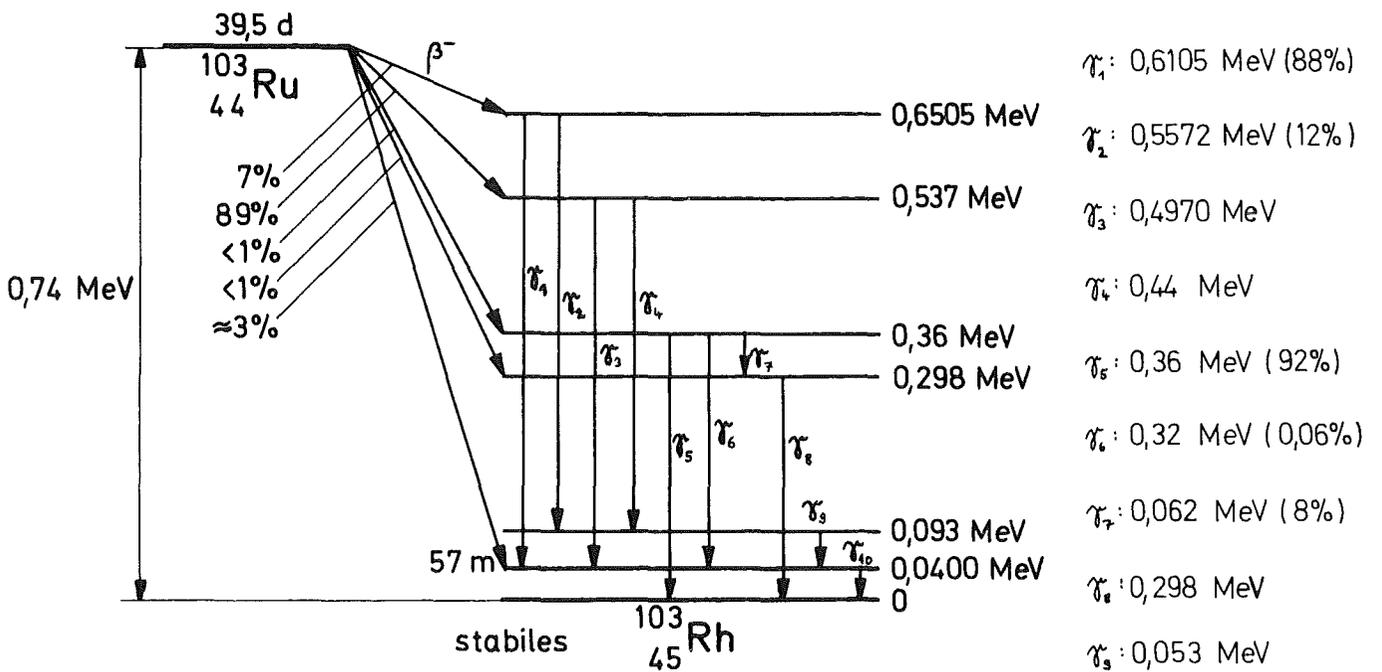
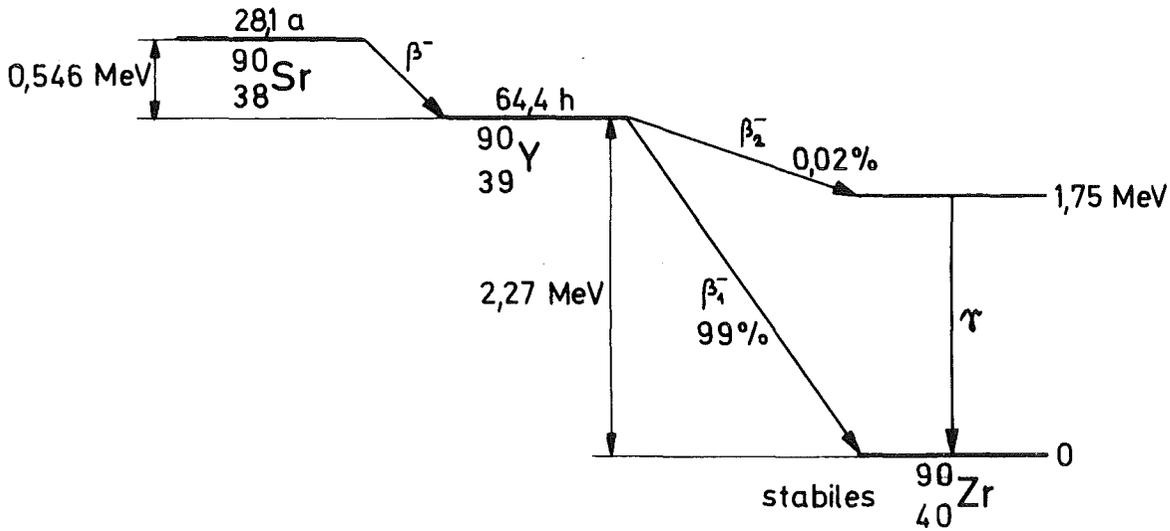
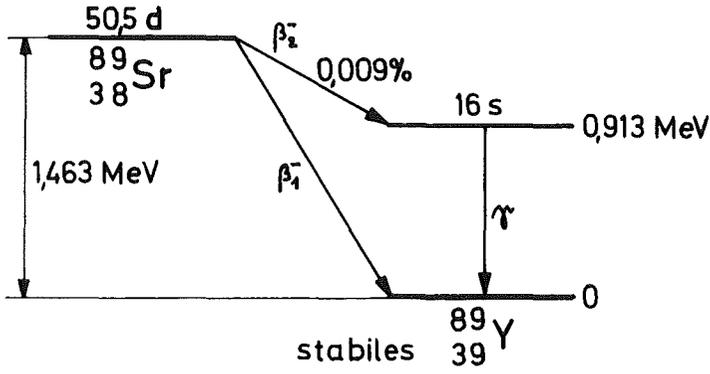
Ce-136	0,193 %
Ce-138	0,250 %
Ce-140	88,48 %
Ce-142	11,07 %

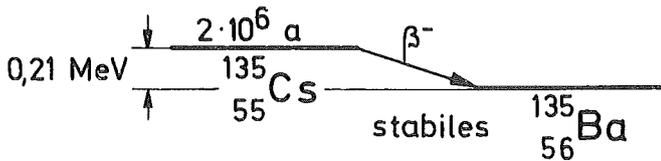
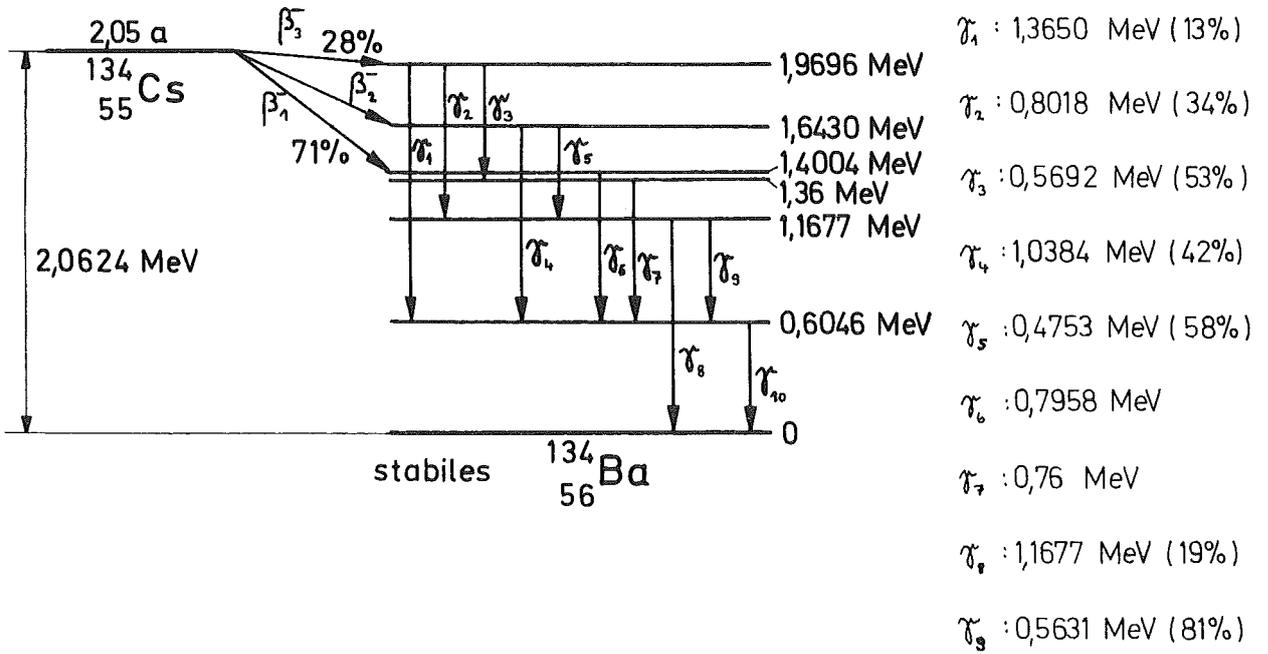
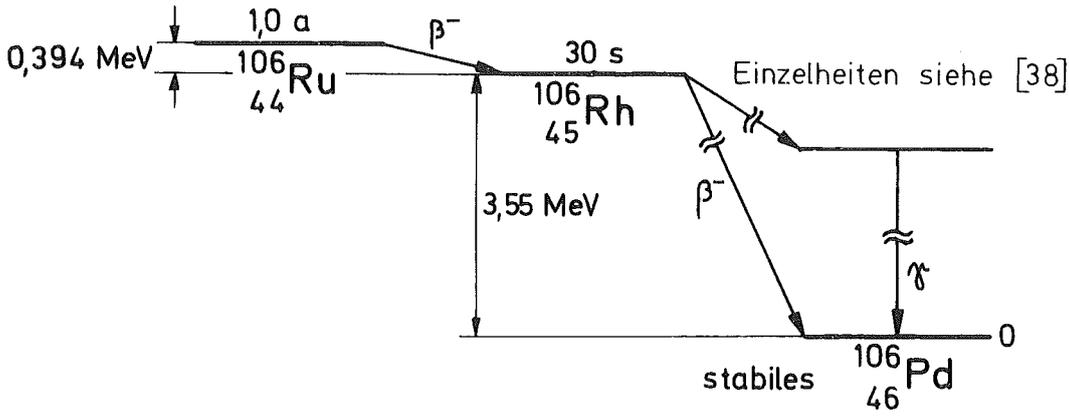
Der Anteil der natürlichen radioaktiven Isotope ist mit etwa $10^{-16}\%$ vernachlässigbar gering.

2.2 Kernphysikalische Eigenschaften von radioaktiven Isotopen

Von den bei der Kernspaltung entstehenden radioaktiven Nukliden sind die in der Tabelle 2-3 aufgeführten wegen ihrer relativ großen Halbwertszeiten von Bedeutung. Cs-135 nimmt mit $T_{1/2} = 2 \cdot 10^6$ a eine Sonderstellung ein, seine spezifische Aktivität ist aufgrund der extrem großen Halbwertszeit jedoch nur gering. Von den restlichen Nukliden sind Sr-90 ($T_{1/2}=28,1$ a) und Cs-137 ($T_{1/2} = 30,0$ a) besonders zu beachten. Die Zerfalleigenschaften der einzelnen Nuklide bzw. ihrer Nachfolger (sofern es sich dabei nicht um stabile Nuklide handelt) sind in Abb.2-1 zusammengestellt.

Abb.2-1 Zerfallseigenschaften /37,38/





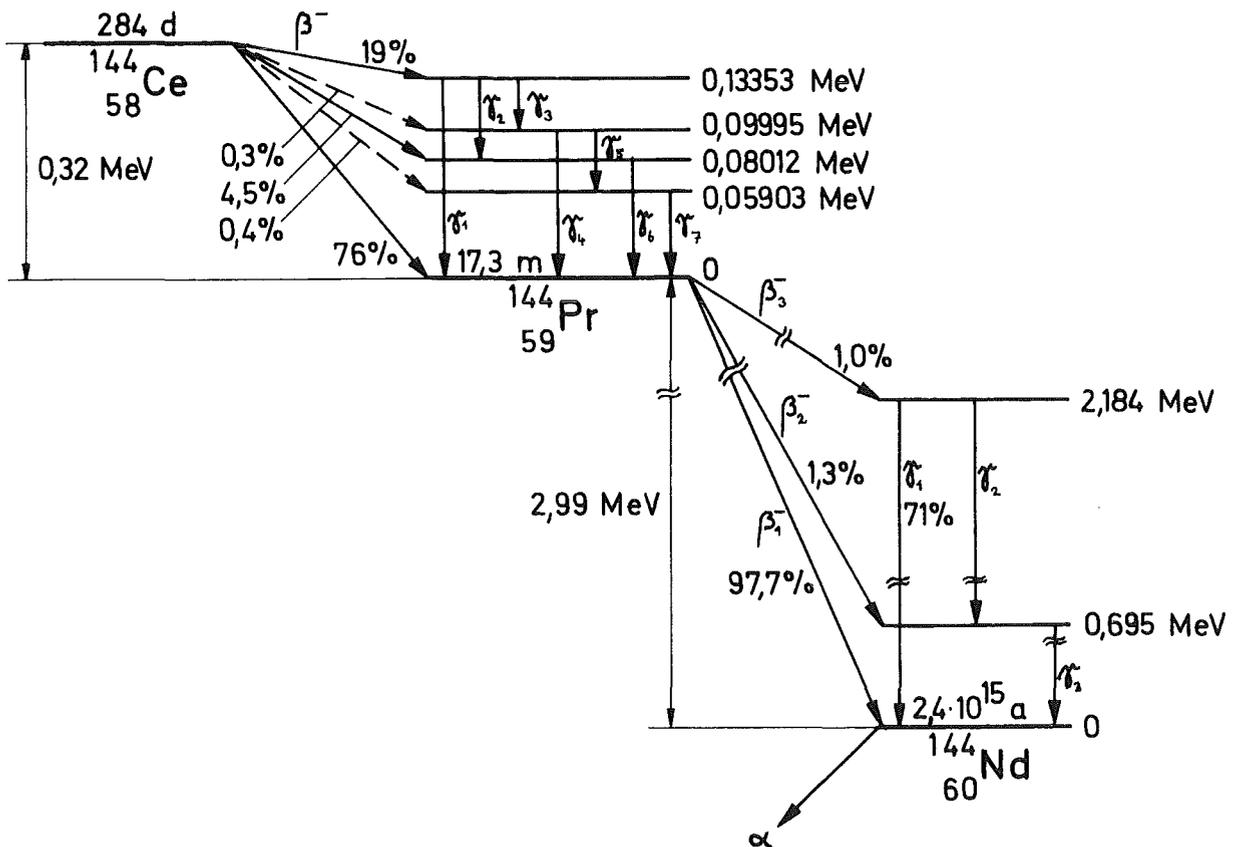
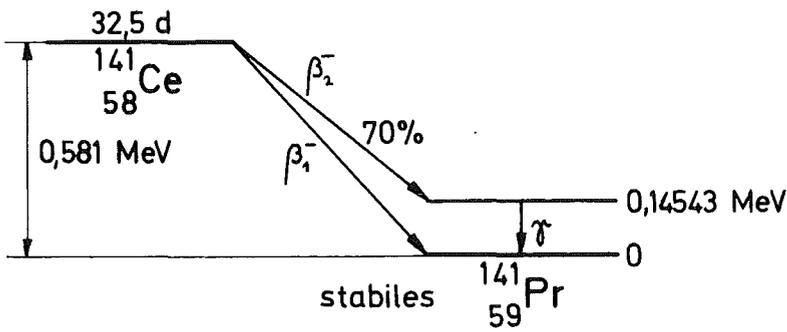
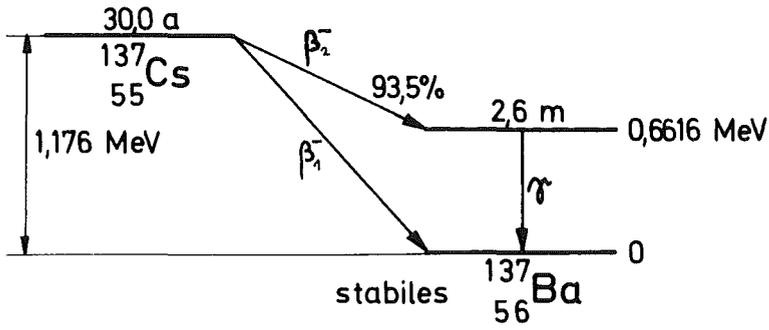
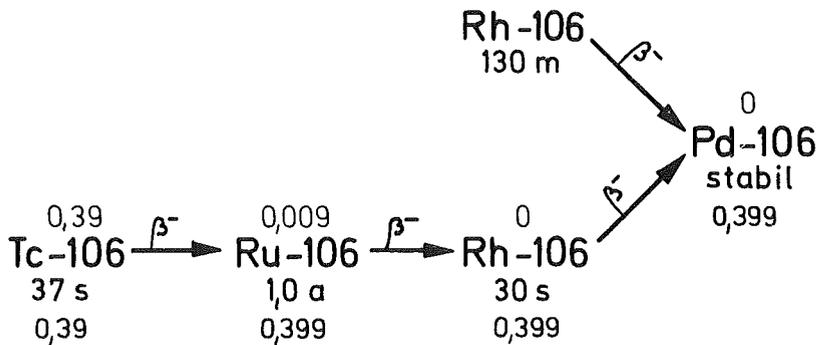
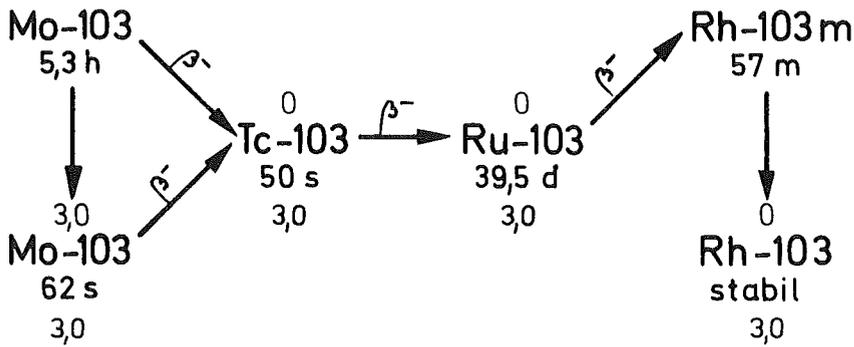
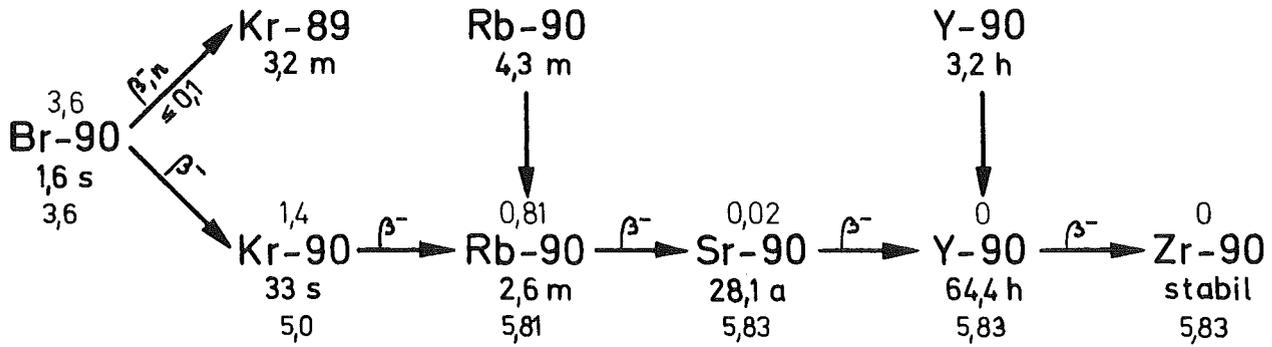
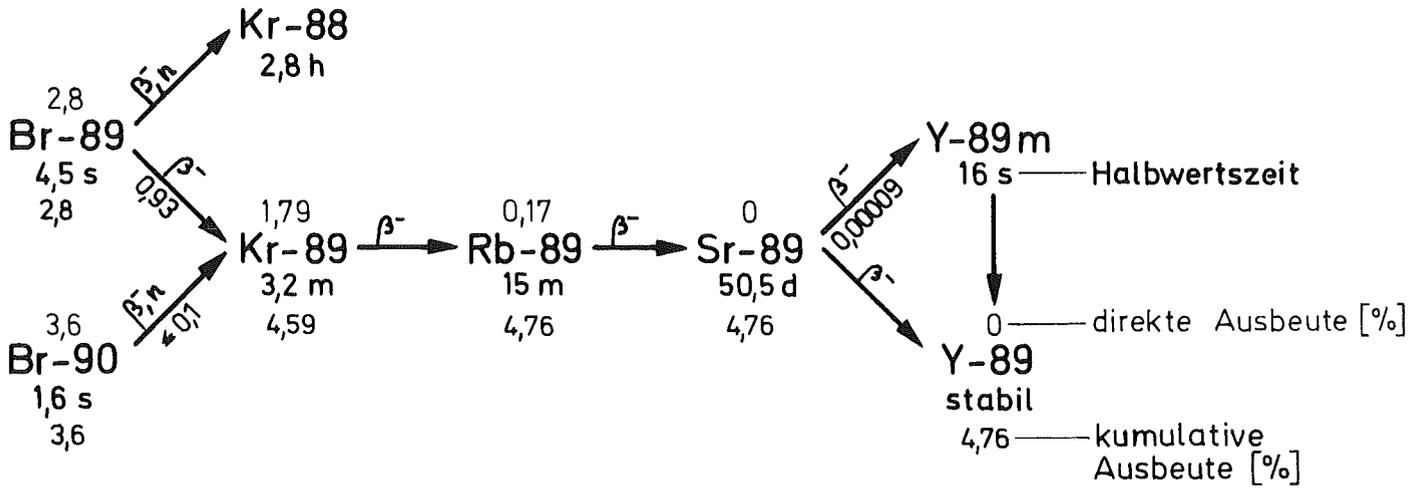


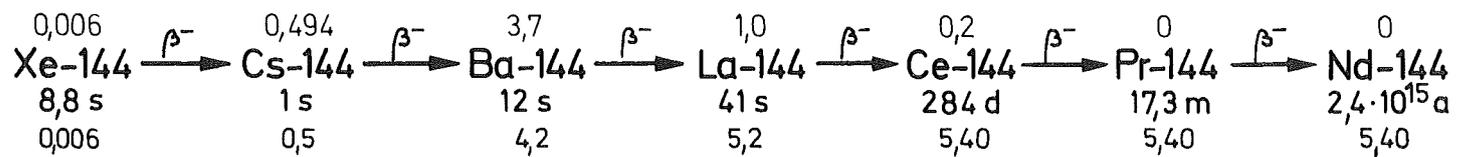
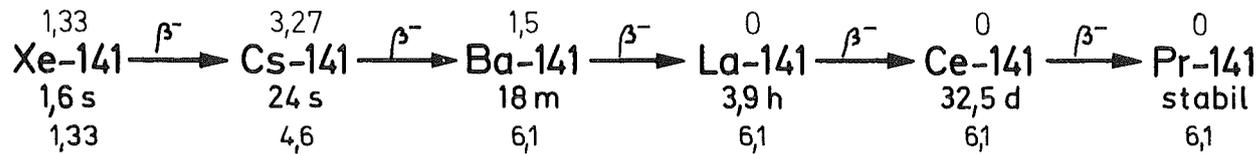
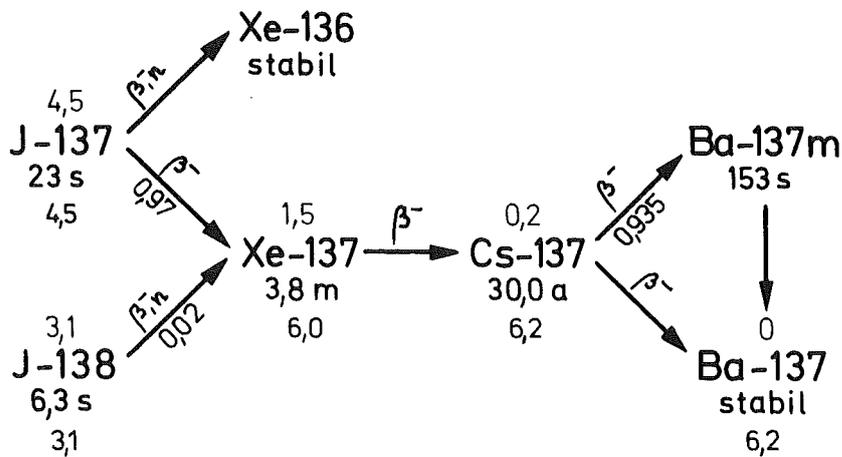
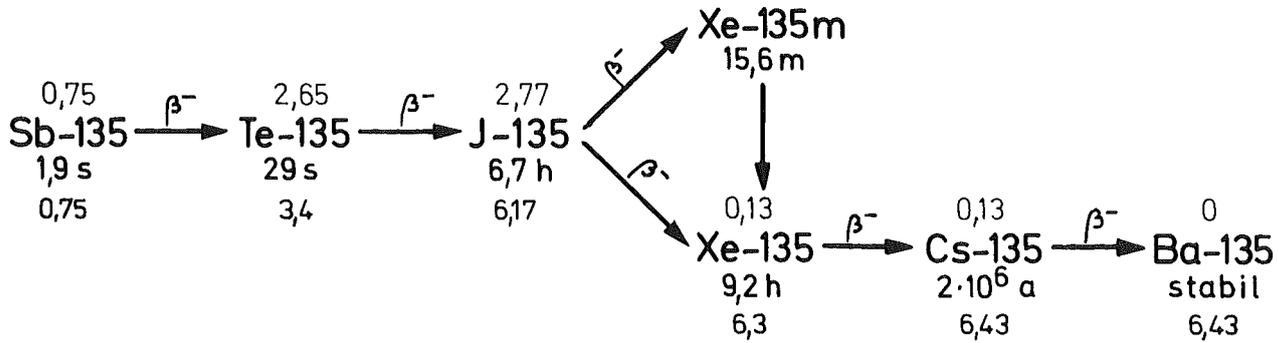
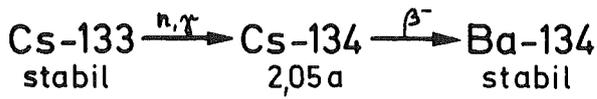
Tabelle 2-3 Halbwertszeiten, Zerfallsenergien und spezifische Aktivitäten

Nuklid	Halbwertszeit /37/	Zerfallsenergie /38/ E_{ges} [MeV]	spez. Aktivität [Ci/g]
Sr-89	50,5 d	1,463	$2,92 \cdot 10^4$
Sr-90	28,1 a	0,546	$1,42 \cdot 10^2$
Ru-103	39,5 d	0,74	$3,21 \cdot 10^4$
Ru-106	1,0 a	0,394	$3,37 \cdot 10^3$
Cs-134	2,05 a	2,062	$1,31 \cdot 10^3$
Cs-135	$2 \cdot 10^6$ a	0,21	$1,32 \cdot 10^{-3}$
Cs-137	30,0 a	1,176	$8,70 \cdot 10^1$
Ce-141	32,5 d	0,581	$2,85 \cdot 10^4$
Ce-144	284 d	0,32	$3,19 \cdot 10^3$

Sämtliche aufgeführten Nuklide außer Cs-134 entstehen mit relativ großer Ausbeute bei der Spaltung von Thorium, Uran und Plutonium direkt bis 20% bzw. indirekt durch β^- -Zerfall von Vorläuferkernen (ca. 80 bis 100%, vgl. Abb.2-2). Für Betrachtungen in den folgenden Kapiteln ist es von Bedeutung, daß die Vorläufer von einigen der aufgeführten Nuklide radioaktive Edelgase (Krypton und Xenon) sind (vgl. Abb.2-2), die aufgrund ihrer hohen Flüchtigkeit und chemischen Inertheit besonders leicht aus Kernreaktoren und der Erdkruste entweichen. Diese indirekte Freisetzung durch Edelgasisotope leistet einen nicht vernachlässigbaren Beitrag zur gesamten Freisetzung der in dieser Arbeit erfaßten Nuklide. Cs-134 entsteht im Kernreaktor als Aktivierungsprodukt durch (n, γ)-Reaktion aus dem stabilen Cäsiumisotop Cs-133. Bei atmosphärischen Kernexplosionen wird deshalb kein Cs-134 gebildet, bei unterirdischen und kratererzeugenden entsteht es als Aktivierungsprodukt durch (n, γ)-Reaktion des Cs-133 der Erdkruste.

Abb.2-2 Zerfallsketten und Ausbeuten bei thermischer Spaltung von U-235 /37,39/





3. Strahlengefährdung, kritische Organe sowie zulässige Werte für Dosis und Konzentration

Bei den in dieser Arbeit behandelten Nukliden sind sowohl die innere Strahlung, hervorgerufen durch Inkorporation, als auch die äußere Strahlung von an der Erdoberfläche abgelagertem Material zu berücksichtigen. Dabei unterscheidet man zwischen löslichen und unlöslichen Stoffen. Die Cäsiumverbindungen gelten bei einer Inhalation als löslich, Strontium- und Ruthenium- als schwer löslich und Ceriumverbindungen als unlöslich /40/. Für ein bestimmtes Radionuklid wird dasjenige Organ, welches infolge der Strahleneinwirkung die "größte Schädigung des gesamten Organismus" verursachen kann, als "kritisches Organ" bezeichnet /41/. Als "kritische Bevölkerungsgruppe" wird meist das Kleinkind (Alter ca. 6 Monate bis 1 Jahr) angenommen, sofern nichts anderes angegeben wird.

3.1 Strahlengefährdung

3.1.1 Strahlengefährdung durch Inkorporation

Die Inkorporation von Radionukliden kann durch Inhalation (Aufnahme mit der Atemluft) und durch Ingestion (Aufnahme mit der Nahrung) erfolgen.

Strontium (Sr-89, Sr-90)

Inkorporiertes Strontium wird über den Darm resorbiert*, die Ausscheidung erfolgt über die Nieren. Ebenso wie die anderen Erdalkalimetalle kann Strontium das Calcium im Skelett ersetzen. Es besitzt dort eine biologische Halbwertszeit von etwa 50 Jahren. Im Wachstumsalter findet eine Einlagerung bevorzugt in den charakteristischen Verkalkungszonen statt. Beim Erwachsenen hat man eine Ab-

* Resorption = Aufnahme über den Verdauungstrakt in die Blut- und Lymphbahn

lagerung in den oberflächennahen Bereichen des mineralischen Knochens sowie in denjenigen Zonen des kompakten Knochens beobachtet, die sich zur Zeit der Inkorporation im Umbau befinden /42/. Nach Bryant /43/ kann als kritisches Organ für Strontium der mineralische Knochen als mit Strontium homogen durchsetztes Medium betrachtet werden.

Effektive Halbwertszeiten, effektive Energien und Inhalationsdosisfaktoren für Sr-89 und Sr-90 (sowie für die übrigen Nuklide) sind Tabelle 3-1 zu entnehmen. Die Ingestion von Sr-89 und Sr-90 führt zu einer wesentlich höheren Organbelastung als die Inhalation /41,46/ (siehe unten). Von Sr-89 und Sr-90 ist bei Inhalation eine Lungenbelastung zu erwarten, da die

Isotop	kritisches Organ	Inhalationsdosisfaktor $\left[\frac{\text{-rem m}^3}{\text{Ci sec}^{-1}} \right]$			Ingestionsdosisfaktor $\left[\frac{\text{-rem m}^3}{\text{Ci sec}^{-1}} \right]$ BMBW /48/
		Comper /41/	Blässer-Wirtz /47/	BMBW /48/	
Sr-89	Knochen	96,0	70	100	800
Sr-90		4790	7700	10000	80000

Rückhaltezeit von Partikeln in der Lunge bei ca. 120 Tagen /3/ liegt.

Die wichtigste Calcium- und somit auch Strontiumquelle bei westlichen Nahrungsgewohnheiten sind Milch und ihre Veredelungsprodukte. Aus diesen Nahrungsmitteln stammen über 50% des aufgenommenen Strontium, da Strontium in der Natur zu etwas mehr als 1% als Beimengung zum Calcium vorhanden ist /49/. Die tägliche Milchaufnahme von Kleinkindern ist mit etwa 0,5 l in bezug auf ihr Körpergewicht sehr hoch, ihr Knochenwachstum ist besonders intensiv. Diese Bevölkerungsgruppe ist am meisten gefährdet. In den UdSSR spielt der Verzehr von Brot bei der Ingestion von Sr-90 die größte Rolle /1/.

Tabelle 3-1 Kritische Organe, effektive Halbwertszeiten, effektive Energien und Inhalationsdosisfaktoren für Erwachsene

Nuklid	Organ	Masse des Organs /42/ [kg]	T _{eff} [*] /41/ [d]	E _{eff} ^{**} /41/ [MeV]	g _{inh.} /41,44/ [rem m ³ / Ci sec ⁻⁷]
Sr-89	Knochen	7	50,4	2,8	96,0
	Lunge (unlöslich)	1	35,3	0,55	39,6
Sr-90	Ganzkörper	70	5700	0,21	116
	Knochen	7	6400	1,1	4790
Ru-103	Lunge (unlöslich)	1	30,4	0,27	13,0
	Magen-Darm	2			5
Ru-106	Lunge (unlöslich)	1	90	1,4	257
	Magen-Darm	2			20
Cs-134	Ganzkörper	70	65	1,1	13,0
	Knochen	7	120	0,99	8,66
	Lunge (unlöslich)	1	105	0,57	122
	Leber	1,7	81	0,57	23,1
Cs-135	Ganzkörper	70	70	0,066	0,842
	Knochen	7	140	0,33	3,37
	Lunge (unlöslich)	1	140	0,066	18,9
	Leber	1,7	90	0,066	2,97
Cs-137	Ganzkörper	70	70	0,59	7,52
	Knochen	7	138	1,4	14,1
	Lunge (unlöslich)	1	138	0,41	115
	Leber	1,7	89	0,41	18,2
Ce-141	Knochen	7	31	0,81	4,57
	Lunge (unlöslich)	1	26	0,18	9,55
	Magen-Darm	2			2
	Leber	1,7	29	0,18	3,13
Ce-144	Knochen	7	243	6,3	279
	Lunge (unlöslich)	1	87,2	1,3	231
	Magen-Darm	2			20
	Leber	1,7	146	1,3	114

$$* T_{eff} = \frac{T_{Phys} \cdot T_{Biol}}{T_{Phys} + T_{Biol}} \quad [457]$$

$$** E_{eff} = E_{\beta eff} + E_{\gamma eff}$$

Ruthenium (Ru-103, Ru-106)

Bei der Ingestion und Inhalation von Rutheniumisotopen ist der Magen-Darm-Trakt das kritische Organ /42/. Bei unlöslichem Ru-103 und Ru-106 tritt eine starke Lungenbelastung ein. Werden aus einem Reaktor unlösliche Spaltprodukte freigesetzt, so kann man speziell für eine Lungenbelastung nach Beattie /9/ als gute Näherung davon ausgehen, daß die Belastung nur durch Ru-106 sowie sein Tochterprodukt Rh-106 erfolgt. Die Strahlendosis dieser beiden Nuklide macht mehr als 90% der Gesamtdosis von unlöslichen Spaltprodukten aus. Mit Ausnahme der Lunge ist die biologische Halbwertszeit von Ruthenium in den verschiedenen Körperorganen kurz (2,4 bis 15 d) /41/. Ruthenium dürfte in der Milch nur in sehr geringen Konzentrationen existieren /50/ *. Ru-103 ist für eine Langzeitbelastung radiologisch weniger bedeutend, seine Zerfallsenergie ist wesentlich niedriger als die von Ru-106/Rh-106 (vgl. Abb.2-1).

Cäsium (Cs-134, Cs-135, Cs-137)

Das Stoffwechselverhalten von Cäsium ist eng verwandt mit dem von Kalium /35/. Cäsium vermag dies Element bis zu einem gewissen Grad zu ersetzen. Nach Inkorporation wird Cäsium leicht über den Darm resorbiert, aber nur langsam wieder ausgeschieden /42/. Die biologische Halbwertszeit von Cäsium im Körper beträgt ca. 70 Tage /41/. Hauptsächlich wird Cäsium vom Muskelgewebe absorbiert (zu 57% /35/ bis 80% /22/). Wie Kalium verteilt es sich über den gesamten Körper, bei einer Inkorporation ist von einer Ganzkörperbestrahlung auszugehen /42/. Cs-134 und Cs-137 tragen einen großen Anteil zur Dosisbelastung der Knochen, der Leber, des Gesamtkörpers und des Magen-Darm-Traktes bei /51/. In unlöslicher Form stellt Cäsium auch eine Lungengefährdung dar. Die Ingestion von radioaktivem Cäsium führt zu einer wesentlich höheren Dosisbelastung als die Inhalation /41/ (siehe unten). Die hauptsächliche Quelle für die innere Belastung durch Cs-137 ist die Milch.

*) A.L. Bony: Rapid Determination of J-131 in Milk,
Analyst 88 (1963) 64-66

Isotop	kritisches Organ	Inhalationsdosisfaktor $\left[\frac{\text{-rem m}^3}{\text{Ci sec}^{-7}} \right]$		Ingestionsdosisfaktor $\left[\frac{\text{-rem m}^3}{\text{Ci sec}^{-7}} \right]$
		Comper /41/	BMBW /48/	
Cs-134	Ganzkörper	13,0	-	520
Cs-135		0,842	-	34
Cs-137		7,52	7,5	300

Der Anteil von Fleisch, Gemüse und Fisch ist geringer. Nach einer Studie bis zum Jahr 2000 für die USA von Yook u.a. /20/ macht die Inkorporation nur etwa $\frac{1}{3}$ der gesamten Strahlenbelastung durch Cs-137 aus, etwa $\frac{2}{3}$ beruhen auf direkter γ -Strahlung vom Erdboden.

Die effektive Halbwertszeit von Cs-137 ist von Lebensalter und Körpergewicht abhängig. Es wird dazu auf folgende Originalarbeiten verwiesen: /21, 52, 53, 54, 55, 56, 57/. Die biologische Halbwertszeit steigt nach Beattie /52/ vom 6 Monate alten Kleinkind ($T_{1/2} = 20$ d) bis zum Erwachsenen ($T_{1/2} = 100$ d) um den Faktor 5 an. Wie lange Cäsium in den Knochen verbleibt, ist noch nicht geklärt. Als pessimistische Abschätzung nimmt Gustafson /23/ eine biologische Halbwertszeit von 50 Jahren ($T_{\text{eff}} = 18,9$ a) an, was der Halbwertszeit von Kalium in den Knochen entspricht. Bei einer Inhalation von Cs-137 stellen nach Dunster /58/ die Erwachsenen die kritische Bevölkerungsgruppe dar, weil bei den Kleinkindern die biologische Halbwertszeit wesentlich kleiner ist.

Cerium (Ce-141, Ce-144)

Von Ce-141 und Ce-144 geht bei Inhalation eine mögliche Lungengefährdung aus /3/. Aufgrund der längeren Halbwertszeit sind für Ce-144 die Knochen das kritische Organ, weshalb die Knochendosis zu derjenigen von Strontium hinzu-

addiert werden sollte /42/. Die Ingestionsgefährdung durch Ce-144 ist etwa 80-fach höher als die Inhalationsgefährdung /48/ (siehe unten). Cerium wird außerdem in der Leber ($T_{1/2_{\text{biol}}} \approx 300 \text{ d}$) und im Magen-Darm-Trakt abgelagert.

Isotop	kritisches Organ	Inhalationsdosisfaktor $\left[\frac{\text{-rem m}^3}{\text{Ci sec}^{-1}} \right]$			Ingestionsdosisfaktor $\left[\frac{\text{-rem m}^3}{\text{Ci sec}^{-1}} \right]$ BMBW /48/
		Comper /41/	Blässer-Wirtz /47/	BMBW /48/	
Ce-141	Lunge	9,55	-	-	-
Ce-144	Knochen	279	250	280	2300

Bei einer Dosisbelastung durch Ce-144/Pr-144 kommt der größte Anteil von Pr-144 /2/. Ce-141 ist langfristig gesehen radio- logisch weniger bedeutend, seine Zerfallsenergien sind we- sentlich niedriger als die von Ce-144/Pr-144 (vgl. Abb.2-1).

3.1.2 Strahlengefährdung durch an der Erdoberfläche abgelagerte Nuklide

Bei äußerer Bestrahlung geht von γ -Strahlen die größte Ge- fährdung aus. β -Strahlen hoher Energie haben in Luft eine Reichweite von mehreren Metern, sie werden jedoch zum Teil bereits von der Kleidung abgeschirmt. In das Gewebe dringen sie nur wenige Millimeter ein. Die abgelagerten Nuklide verbleiben nicht an der Erdoberfläche, sie sinken mit un- terschiedlicher Geschwindigkeit in tiefere Bodenschichten ab, wo besonders die β -Strahlung stark abgeschirmt wird.

Die Dosisfaktoren bei äußerer γ -Strahlung (vgl. Tab.3-2) berechnen sich wie folgt /2/:

Tabelle 3-2 Dosisfaktoren für äußere Bestrahlung $\left[\frac{-\text{mrem}}{\text{h}} / \frac{\text{pCi}}{\text{m}^2} \right]$ bei kontaminiertem Erdboden /2/

Nuklid	Haut	Ganzkörper
Sr-89	$6,5 \cdot 10^{-13}$	$5,6 \cdot 10^{-13}$
Sr-90	-	-
Ru-103*	$4,2 \cdot 10^{-9}$	$3,6 \cdot 10^{-9}$
Ru-106*	$1,8 \cdot 10^{-9}$	$1,5 \cdot 10^{-9}$
Cs-134	$1,4 \cdot 10^{-8}$	$1,2 \cdot 10^{-8}$
Cs-135	-	-
Cs-137	$4,9 \cdot 10^{-9}$	$4,1 \cdot 10^{-9}$
Ce-141	$6,2 \cdot 10^{-10}$	$5,5 \cdot 10^{-10}$
Ce-144*	$3,7 \cdot 10^{-10}$	$3,2 \cdot 10^{-10}$

* einschließlich Nachfolger

$$D = 0,5 \cdot 0,869 \cdot \sum_{i=1}^n A_i R_i P_i \quad (3-1)$$

$$D \left[\frac{-\text{mrem}}{\text{h}} / \frac{\text{pCi}}{\text{m}^2} \right] = \text{Dosisfaktor}$$

0,5 = Rauigkeitsfaktor des Erdbodens

0,869 = Umrechnungsfaktor $\frac{\text{rad in Luft}}{R \text{ in Luft}} \cdot \frac{1 \text{ rem}}{1 \text{ rad}}$

A_i = relative Häufigkeit des Photons i im betrachteten Nuklid

$R_i \left[\frac{-\text{mR}}{\text{h}} \right]$ = Strahlendosis in 1m Höhe über einer unendlichen Ebene, die mit 1 pCi/m^2 kontaminiert ist

P_i = Bruchteil der Oberflächendosis, welche die Haut bzw. den Gesamtkörper durchdringt

Eine Formel zur Berechnung der β -Dosis wird in /59/ angegeben. Bei einer Kontamination des Bodens von z.B. 1 pCi/m^2 ($=1\mu\text{Ci/km}^2$)

tragen die beiden Cäsiumisotope Cs-134 und Cs-137 die größten Strahlenbelastungen bei (vgl. Tab.3-2). Ebenso wie Strontium wird Cäsium vom Erdboden stark adsorbiert (vgl. Abschnitt 8.2), wodurch sich eine hohe Anreicherung in den oberen Bodenschichten ergibt. Die γ -Strahlung wird dort kaum abgeschirmt. Nach UNSCEAR /22/ macht Cs-137 den größten Anteil derjenigen äußeren γ -Strahlung aus, die von künstlich erzeugten Radionukliden stammt.

3.2 Maximal zulässige Dosis- und Konzentrationswerte

Von verschiedenen internationalen Organisationen wurden maximal zulässige Dosiswerte festgelegt (vgl. Tab.3-3) und daraus aufgrund der jeweiligen Gefährlichkeit der einzelnen Nuklide für den Menschen maximal zulässige Konzentrationen (MZK) in Luft und Wasser berechnet (vgl. Tab.3-4). Dabei spielen u.a. Ernährung, Konstitution und Alter der Person, biologische und physikalische Halbwertszeit des Nuklides, seine ausgesandte Energie und Anreicherung in bestimmten Organen eine Rolle. Die MZK-Werte für sich allein sind nur im beruflichen Bereich anwendbar. Ihre Berechnung auf der Basis der Physiologie und des Stoffwechsels eines Standarderwachsenen berücksichtigt ökologische Vorgänge in der Umwelt nicht /66/.

Tabelle 3-3 Zulässige Strahlenbelastung für beruflich strahlenexponierte Personen

Organ	ICRP/60,61/	AEC/62/	OECD/63/	1.SSVO/64/
Ganzkörper	0,1 rem/w	3rem/13w	3rem/13w	3rem/13w
Blutbildende Organe	3rem/13w	3rem/13w	3rem/13w	-
Rotes Knochenmark, Keimdrüsen	5rem/a			-
Knochen	30rem/a		30rem/a	-
einzelne innere Organe (außer Schilddrüse, Gonaden, blutbildende Organe, Knochen)	15rem/a		15rem/a	-

Tabelle 3-4

MZK-Werte in Luft und Wasser sowie Nachweisgrenzen

Nuklid	MZK-Werte in Luft [$\bar{\mu}\text{Ci}/\text{cm}^3$]		MZK-Werte in Wasser [$\bar{\mu}\text{Ci}/\text{cm}^3$]		Nachweisgrenzen in Wasser [$\bar{\mu}\text{Ci}/\text{cm}^3$]
	1. SSVO berufl.strahlenexp. Personen [$\bar{64}$]	10CFR Part 20 Individualdosis [$\bar{62}$]	1. SSVO berufl.strahlenexp. Personen [$\bar{64}$]	10CFR Part 20 Individualdosis [$\bar{62}$]	
Sr-89 löslich unlöslich	$1 \cdot 10^{-8}$	$3 \cdot 10^{-10}$ $1 \cdot 10^{-9}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-6}$ $3 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-8}$
Sr-90 löslich unlöslich	$1 \cdot 10^{-10}$	$3 \cdot 10^{-11}$ $2 \cdot 10^{-10}$	$1 \cdot 10^{-6}$	$3 \cdot 10^{-7}$ $4 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-8}$
Ru-103 löslich unlöslich	$3 \cdot 10^{-8}$	$2 \cdot 10^{-8}$ $3 \cdot 10^{-9}$	$8 \cdot 10^{-4}$	$8 \cdot 10^{-5}$ $8 \cdot 10^{-5}$	$7 \cdot 10^{-7}$
Ru-106 löslich unlöslich	$2 \cdot 10^{-9}$	$3 \cdot 10^{-9}$ $2 \cdot 10^{-10}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-5}$ $1 \cdot 10^{-5}$	$7 \cdot 10^{-6}$
Cs-134 löslich unlöslich	$4 \cdot 10^{-9}$	$1 \cdot 10^{-9}$ $4 \cdot 10^{-10}$	$9 \cdot 10^{-5}$	$9 \cdot 10^{-6}$ $4 \cdot 10^{-5}$	$8 \cdot 10^{-7}$
Cs-135 löslich unlöslich	$3 \cdot 10^{-8}$	$2 \cdot 10^{-8}$ $3 \cdot 10^{-9}$	$1 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-4}$ $2 \cdot 10^{-4}$	
Cs-137 löslich unlöslich	$5 \cdot 10^{-9}$	$2 \cdot 10^{-9}$ $5 \cdot 10^{-10}$	$2 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-5}$ $4 \cdot 10^{-5}$	$8 \cdot 10^{-7}$
Ce-141 löslich unlöslich	$5 \cdot 10^{-8}$	$2 \cdot 10^{-8}$ $5 \cdot 10^{-9}$	$9 \cdot 10^{-4}$	$9 \cdot 10^{-5}$ $9 \cdot 10^{-5}$	$7 \cdot 10^{-7}$
Ce-144 löslich unlöslich	$2 \cdot 10^{-9}$	$3 \cdot 10^{-10}$ $2 \cdot 10^{-10}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-5}$ $1 \cdot 10^{-5}$	$3 \cdot 10^{-6}$

Beim 10CFR20 /62/ wird im Gegensatz zur 1.SSVO /64/ zwischen löslichen und unlöslichen Nukliden unterschieden. Mit Ausnahme der beiden Strontiumisotope wird in der 1.SSVO der jeweils niedrigere MZK-Wert angegeben. Vermutlich aufgrund einer möglichen Lungengefährdung liegen die MZK-Werte des 10CFR20 in Luft für unlösliche Nuklide (mit Ausnahme von Strontium) um etwa eine Größenordnung unter denjenigen Werten für lösliche Nuklide.

Für den Normalbetrieb von kerntechnischen Anlagen gibt es in England sogenannte "Derived Working Limits" (DWL's). Danach darf die durchschnittliche jährliche Aktivitätskonzentration in Milch maximal 800 pCi/g Ca Sr-90 und 30000 pCi/l Cs-137 für die Allgemeinbevölkerung betragen /58/. Die Herleitung dieser DWL's für Sr-90 und Cs-137 ist einer Arbeit von Bryant /67/ zu entnehmen. Die Ursache für die Entstehung der DWL's ist möglicherweise z.T. in den relativ hohen Freisetzungsraten englischer Magnox-Reaktoren an Cäsium- und Strontiumisotopen (vgl. Abschnitt 6.3.3) zu suchen.

Änderungen von Strahlenschutzrichtwerten

Von der USAEC werden im 10CFR50 /68/ neue Richtlinien für radioaktive Abgaben von Leichtwasserreaktoren vorgeschlagen. In Zukunft sollen z.B. die zulässigen Konzentrationswerte für ökologisch bedeutsame Radionuklide in Aerosolen gegenüber denjenigen Werten im 10CFR20 /62/ (vgl. Tab.3-4) um den Faktor 10^5 erniedrigt werden.

In Deutschland wurde eine Reduzierung der maximal zulässigen Strahlenbelastung für die Allgemeinbevölkerung von bisher 150 mrem/a auf 30 mrem/a jeweils für Abluft und Abwasser empfohlen /69/. Diesen neuen Werten liegen keine neuen strahlenbiologischen Erkenntnisse zugrunde, sie dienen lediglich einem größeren Schutz der Bevölkerung /66/.

Nachweisgrenzen in Wasser und Luft

Von Aurand u.a. /65/ werden Nachweisgrenzen für die einzelnen Nuklide in Wasser angegeben (vgl. Tab.3-4). Diese Werte gelten jeweils für eine Meßzeit von 2 Stunden. Sr-89 und Sr-90 lassen sich γ -spektrometrisch nicht nachweisen. Sie müssen radiochemisch von allen anderen Nukliden abgetrennt werden, bevor sie gemessen werden können /65/. Nach Sauter /70/ lassen sich Ru-106 und Ce-144 noch bei einer Konzentration von $2 \cdot 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ mit einem Differenzenverfahren nachweisen. Cs-135 ist wegen seiner äußerst schwachen Strahlungsintensität nur schwer nachweisbar.

Aktivitätskonzentrationen in der Luft sind i.a. so gering, daß sie nur durch Anreicherungsverfahren gemessen werden können. Die Konzentration des natürlichen Strahlers Rn-222 (Radon) ist häufig wesentlich höher als diejenige der nachzuweisenden künstlichen Aerosole. Die Halbwertszeit des natürlichen Aerosolgemisches ist mit ca. 40 Minuten relativ kurz, das Verhältnis der ausgesandten α - zu β -Strahlung ist konstant. Daher läßt sich die künstliche Aerosolaktivität entweder durch zeitlich verzögerte Messung oder durch Bildung des α/β -Verhältnisses bestimmen /71/.

Aktivität von kugelförmigen Teilchen

Um die Strahlengefährdung von kleinen, in der Luft schwebenden Partikeln abschätzen zu können, sind in Tabelle 3-5 die Aktivitäten von Teilchen mit 1 μm bzw. 0,1 μm Durchmesser angegeben. Für ein Sr-89-Teilchen von 1 μm Durchmesser ist z.B. theoretisch ein Luftvolumen von 4 m^3 erforderlich, damit der MZK-Wert von $1 \cdot 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ /64/ nicht überschritten wird. Tatsächlich liegt der Aktivitätswert jedoch niedriger als in Tabelle 3-5 angegeben, da Strontium in der Luft nicht als reines Element, sondern als SrO vorhanden ist. Die übrigen Elemente (außer evt. Ruthenium) liegen ebenfalls nicht in elementarer Form vor. In der Atmosphäre findet eine Anlagerung an andere (nicht radioaktive) Staubpartikel statt. Dadurch reduziert sich die spezifische Aktivität weiter.

Tabelle 3-5 Aktivität $[\bar{C}_i]$ von kugelförmigen Teilchen

Nuklid	Durchmesser	
	1 μm	0,1 μm
Sr-89	$39,72 \cdot 10^{-9}$	$39,72 \cdot 10^{-12}$
Sr-90	$0,193 \cdot 10^{-9}$	$0,193 \cdot 10^{-12}$
Ru-103	$208,5 \cdot 10^{-9}$	$208,5 \cdot 10^{-12}$
Ru-106	$21,92 \cdot 10^{-9}$	$21,92 \cdot 10^{-12}$
Cs-134	$1,28 \cdot 10^{-9}$	$1,28 \cdot 10^{-12}$
Cs-135	$1,30 \cdot 10^{-15}$	$1,30 \cdot 10^{-18}$
Cs-137	$0,085 \cdot 10^{-9}$	$0,085 \cdot 10^{-12}$
Ce-141	$101,0 \cdot 10^{-9}$	$101,0 \cdot 10^{-12}$
Ce-144	$11,32 \cdot 10^{-9}$	$11,32 \cdot 10^{-12}$

4. Natürliche Strahlungsquellen

Radionuklide, die bei der Nuklearsynthese vor etwa $6 \cdot 10^9$ Jahren /72/ entstanden sind, müssen eine Halbwertszeit von mehr als 10^6 bis 10^7 Jahren haben, wenn sie heute noch nachweisbar in der Natur vorhanden sein sollen. Cs-135 ($T_{1/2} = 2 \cdot 10^6$ a) könnte unter diesem Gesichtspunkt evt. noch in geringsten Mengen existieren, in der Literatur finden sich darüber keine Angaben.

Aufgrund der Spontanspaltung schwerer Kerne werden in der Natur ständig radioaktive Nuklide erzeugt. Den weitaus größten Beitrag liefert dabei das U-238 ($\lambda_{\text{spontsp.}} = 8,6 \cdot 10^{-17} \frac{1}{\text{a}}$). Das ebenfalls spontanspaltende Thoriumisotop Th-232 ($\lambda_{\text{spontsp.}} = 5 \cdot 10^{-19} \frac{1}{\text{a}}$) kommt dreimal häufiger in der Natur vor als U-238 /31,33/. Der Beitrag von U-235 zur Ausbeute durch Spontanspaltung ist vernachlässigbar gering (vgl. Tab.4-1, letzte Spalte).

Tabelle 4-1 Daten für Spontanspaltung

Nuklid	bekannte Vorkommen /31/ $\lfloor \bar{t}_- \rfloor$	relative Häufigkeit	$T_{1/2\text{spontsp.}}$ /28,73,74/ $\lfloor \bar{a}_- \rfloor$	<u>Vorkommen·rel.Häufigkt.*</u>
				$T_{1/2}$
Th-232	$10,8 \cdot 10^{14}$	1	$1,4 \cdot 10^{18}$	1,75
U-235	$3,6 \cdot 10^{14}$	0,007	$1,8 \cdot 10^{17}$	0,031
U-238		0,993	$8,04 \cdot 10^{15}$	100

* normiert auf U-238 = 100

Für jedes Nuklid stellt sich abhängig von seiner Spaltausbeute eine Sättigungsaktivität ein. In Tabelle 4-2 ist das Aktivitätsinventar in Erdkruste und Meer dargestellt. Bei Nukliden, für

die die Ausbeute bei Spontanspaltung von U-238 unbekannt war, wurde auf die Ausbeute bei Neutronen vom Spaltspektrum zurückgegriffen. Die dadurch entstehenden Fehler dürften gering sein.

Tabelle 4-2 Aktivitätsinventar durch Spontanspaltung von U-238

Nuklid	Ausbeute /39,73,75/ [\bar{z}]	Aktivität [$\bar{Ci}/g U_{nat}$]	Aktivitätsinventar [\bar{Ci}]	
			Erdkruste	Meer
Sr-89	3,9	$7,23 \cdot 10^{-15}$	$2,60 \cdot 10^6$	29,7
Sr-90	6,0	$11,1 \cdot 10^{-15}$	$4,01 \cdot 10^6$	45,7
Ru-103	5,8*	$10,8 \cdot 10^{-15}$	$3,87 \cdot 10^6$	44,2
Ru-106	2,8*	$5,19 \cdot 10^{-15}$	$1,87 \cdot 10^6$	21,3
Cs-135	$\approx 5,6^{**}$	$10,4 \cdot 10^{-15}$	$3,74 \cdot 10^6$	42,7
Cs-137	6,3*	$11,7 \cdot 10^{-15}$	$4,21 \cdot 10^6$	48,0
Ce-141	5,5*	$10,2 \cdot 10^{-15}$	$3,67 \cdot 10^6$	41,9
Ce-144	4,3*	$7,98 \cdot 10^{-15}$	$2,87 \cdot 10^6$	32,8

* Ausbeute für Neutronen vom Spaltspektrum /39/

** für A=135 aus Bild 3 von Wetherill /73/

Da ein Teil der betrachteten Nuklide aus radioaktiven Edelgasvorläufern (vgl. Abschnitt 2.2) entsteht, besteht eine gewisse Wahrscheinlichkeit für ein Entweichen dieser Nuklide aus der Erdkruste. Bis auf das Nuklid Xe-135 ($T_{1/2} = 9,2$ h) sind die Halbwertszeiten der infrage kommenden Edelgase jedoch relativ kurz (1,6 s bis 3,8 m), so daß ein Entweichen in die Atmosphäre sehr unwahrscheinlich ist. Cs-135 könnte aufgrund seines Vorläufers Xe-135 zu etwa 0,1 ‰ (entspricht einer Tiefe von etwa 10 m) freigesetzt werden. Für J-129 beträgt der durch Vulkanaktivität und Verwitterung uranhaltiger

Gesteine freigesetzte Anteil etwa 1 ‰ des in der Erdkruste vorhandenen Aktivitätsinventars /28/. Dieser Zahlenwert wird auch für die in dieser Arbeit behandelten Nuklide zugrundegelegt. Das insgesamt freigesetzte Aktivitätsinventar ist Tabelle 4-3 zu entnehmen. Inwieweit die neutroneninduzierte Spaltung von U-235 oder durch kosmische Strahlung in der Atmosphäre erzeugte radioaktive Edelgasvorläufer einen Beitrag zum Aktivitätsinventar leisten, ist nicht bekannt.

Tabelle 4-3 Freigesetztes Aktivitätsinventar (durch Spaltung von U-238)

Nuklid	Aktivitätsinventar [\bar{C}_i]
Sr-89	$\approx 2,7 \cdot 10^3$
Sr-90	$\approx 4,1 \cdot 10^3$
Ru-103	$\approx 4,0 \cdot 10^3$
Ru-106	$\approx 1,9 \cdot 10^3$
Cs-135	$\approx 4,2 \cdot 10^3$
Cs-137	$\approx 4,3 \cdot 10^3$
Ce-141	$\approx 3,8 \cdot 10^3$
Ce-144	$\approx 3,0 \cdot 10^3$

5. Aktivitätserzeugung und -freisetzung durch Kernexplosionen

5.1 Oberirdische Explosionen

Bei den bis Ende 1972 durchgeführten oberirdischen Kernwaffentests wurde insgesamt eine Sprengkraft von ca. 530 Mt TNT freigesetzt, davon etwa 200 Mt TNT aufgrund reiner Spaltreaktionen /76,77,78/. Die Tests vor 1959 waren von unterschiedlicher Stärke (insgesamt ca. 90 Mt TNT durch Kernspaltung /76/). Meist wurden sie am Erdboden oder in Erdbodennähe durchgeführt. Viele der entstehenden radioaktiven Teilchen gelangten nur bis in die untere Stratosphäre (12 bis 35 km Höhe) /79/. 1961 und 1962 fanden Explosionen großer Sprengkraft (insgesamt ca. 100 Mt TNT durch Kernspaltung /76/) in größeren Höhen statt, wodurch die radioaktiven Partikel wesentlich höhere Atmosphärenschichten (bis etwa 100 km) erreichten. Seit Unterzeichnung des Teststoppabkommens am 5.8.1963 werden oberirdische Kernexplosionen nur noch in geringem Ausmaß von Frankreich und der VR China durchgeführt. Über diese Explosionen liegt nur wenig Zahlenmaterial vor.

5.1.1 Bis Ende 1972 erzeugte und freigesetzte Aktivität

Bei der Spaltung von Uran- und Plutoniumkernen in Kernwaffen werden auch radioaktive Strontium-, Ruthenium-, Cäsium- und Cerisotope erzeugt. Diese Nuklide entstehen zum weitaus größten Anteil durch β^- -Zerfall ihrer Vorläuferkerne. Die bei einer Kernexplosion erzeugte Aktivität A_i eines Spaltnuklides i läßt sich durch Beziehung (5-1) berechnen:

$$A_i = \frac{\lambda_i y_i z S}{3,7 \cdot 10^{10}} \quad (5-1)$$

A_i [Ci] = Aktivität des Nuklides i

λ_i [$\frac{1}{\text{sec}}$] = Zerfallskonstante des Nuklides i

y_i = kumulative Spaltausbeute des Nuklides i

$$z \left[\frac{1}{\text{Mt TNT}} \right] = 1,45 \cdot 10^{26} \text{ Spaltungen pro Mt TNT /80/}$$

$$S \left[\text{Mt TNT} \right] = \text{Spaltstärke der Explosion}$$

$$3,7 \cdot 10^{10} \left[\frac{1}{\text{Ci sec}} \right] = \text{Anzahl der Zerfälle pro Ci und sec}$$

Bei nuklearen Sprengkörpern finden vielfach Kombinationen verschiedener Spaltstoffe Verwendung, allgemeingültige Werte für die Spaltausbeute sind daher nicht angebar /81/.

Hallden /82/ hat aus Messungen des Fallouts mehrerer Kernwaffentests im Mt-Bereich Mittelwerte berechnet, die als "zur Zeit beste Abschätzung" /82/ angesehen werden. Mit diesen Spaltausbeuten wurde die pro Mt TNT durch Kernexplosionen entstehende Aktivität der einzelnen Nuklide berechnet (vgl. Tab.5-1). Demnach wird bei Kernwaffenexplosionen offenbar kein Cs-134 gebildet.

Tabelle 5-1 Durch Kernexplosionen erzeugte Aktivität

Nuklid	Ausbeute $\left[\frac{\%}{\%} \right]$ /82/	durch Kernspaltung entstehende Aktivität $\left[\frac{\text{MCi}}{\text{Mt TNT}} \right]$	gesamte bisher erzeugte Aktivität $\left[\text{MCi} \right]$
Sr-89	2,56	16,0	3200
Sr-90	3,50	0,107	21,4
Ru-103	5,20	41,4	8280
Ru-106	2,44	2,10	420
Cs-135	5,41	$2,33 \cdot 10^{-6}$	$466 \cdot 10^{-6}$
Cs-137	5,57	0,16	32
Ce-141	4,58	44,3	8860
Ce-144	4,69	5,19	1038

Bei den in einer Wasserstoffbombe ablaufenden Fusionsreaktionen entstehen keine Strontium-, Ruthenium-, Cäsium- und Cerisotope.

Nach Stead /80/ sind zur Zündung von 1 Mt Fusionsenergie jedoch etwa 10 kt Fissionenergie erforderlich. Die bisher benötigten etwa 3 Mt sind gegenüber den 200 Mt bei reinen Spaltbomben nur gering. Der Tabelle 5-1 ist die bis Ende 1972 insgesamt erzeugte Aktivität der einzelnen Nuklide zu entnehmen.

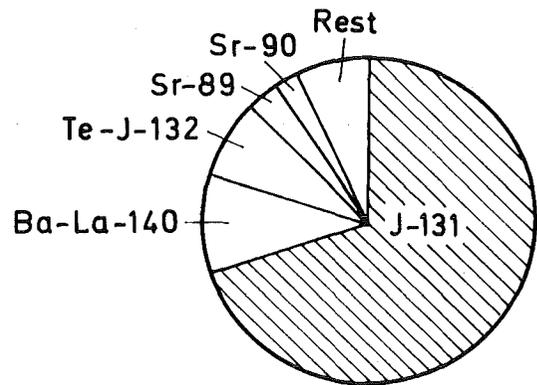
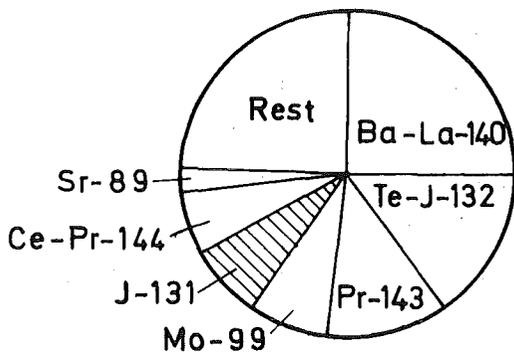
Ca. 90% der gesamten Sprengkraft wurden bereits vor 1963 freigesetzt. Die kurzlebigeren unter den aufgeführten Nukliden (insbesondere Ce-141, Ru-103 und Sr-89) sind inzwischen zum größten Teil in ihre stabilen Tochternuklide übergegangen. Die Aktivität der langlebigen Nuklide Sr-90 und Cs-137 hat sich hingegen seit 1963 bis heute (1974) nur etwa um den Faktor 0,75 verringert. Der radioaktive Zerfall von Cs-135 ($T_{1/2} = 2 \cdot 10^6$ a) ist vernachlässigbar gering.

Als ein relatives Maß für die Gefährlichkeit der Nuklide kann u.a. die relative Radiotoxizität* betrachtet werden. Dabei können bei Gemischen von Nukliden zwischen der relativen Aktivitätsmenge des Gesamtgemisches und seiner relativen Radiotoxizität an der Gesamtradiotoxizität erhebliche Unterschiede bestehen. Aus Abb.5-1 kann entnommen werden, daß bei einem 10 Tage alten Spaltproduktgemisch J-131 70% der Radiotoxizität ausmacht, aber nur etwa 7,8% der Gesamtaktivität. Nach 4 Monaten beruht die Radiotoxizität etwa zur Hälfte (42,5%) auf Sr-90, das aber nur zu 0,5% im Gemisch enthalten ist. Nach 3 Jahren und mehr bestimmt Sr-90 die Radiotoxizität fast ausschließlich (zu mehr als 92%).

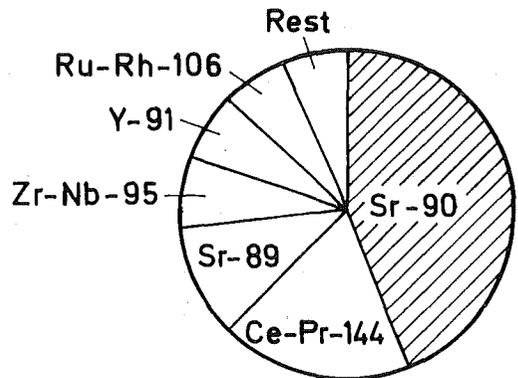
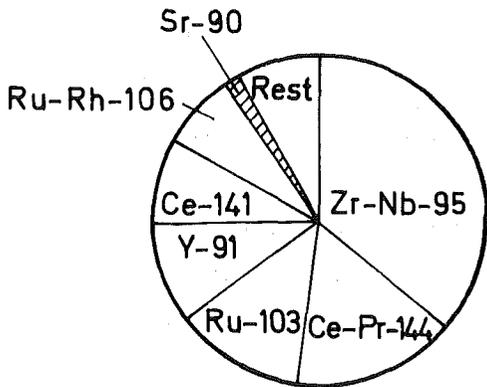
* relative Radiotoxizität = Anteil in Prozent an der MZK des Gemisches, der von einem Nuklid geliefert wird /83/

Anteil an der Gesamtaktivität $\left[\frac{\%}{7} \right]$

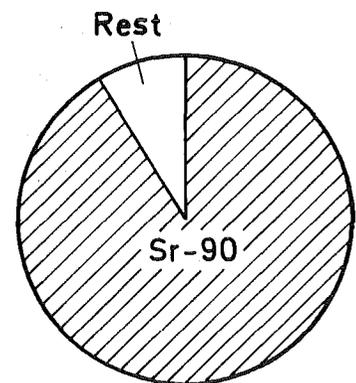
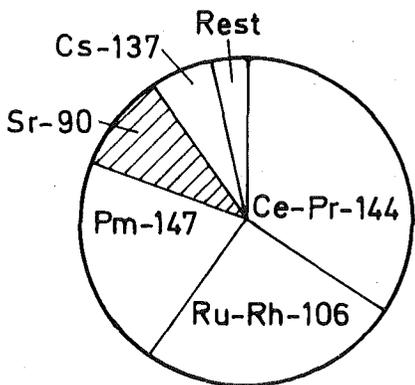
Anteil an der Radiotoxizität $\left[\frac{\%}{7} \right]$



Alter: 10 Tage



Alter: 4 Monate



Alter: 3 Jahre

Abb.5-1 Anteil verschiedener Radionuklide an der Gesamtaktivität und an der Radiotoxizität für Spaltproduktgemische unterschiedlichen Alters /83/

(Kernexplosionsbombe; ohne Berücksichtigung von Tritium und Edelgasen)

5.1.2 Eigenschaften und Verhalten von radioaktiven Aerosolen

Die im Augenblick der Explosion entstandenen Spaltprodukte liegen im Feuerball aufgrund der hohen Temperaturen (10^5 bis 10^7 °C) im gasförmigen Zustand vor. Die Nuklide reagieren bei diesen Temperaturen z.B. mit dem Luftsauerstoff und bilden Oxide sowie Hydroxide mit dem Wasserdampf der Atmosphäre oder gehen andere chemische Verbindungen ein. Bei der Abkühlung finden Kondensationsprozesse statt, so daß die Spaltprodukte (mit Ausnahme der gasförmigen) nach kurzer Zeit in Form von Teilchen unterschiedlicher Größe vorliegen /83/. Es entsteht ein Größenspektrum an radioaktiven Aerosolen (zur Definition von Aerosolen vgl. Abschnitt 10.1). Einige der betrachteten Nuklide haben gasförmige oder flüchtige Vorläufer. Bei Sr-89 sind dies z.B. Kr-89 ($T_{1/2} = 3,2$ m) und Rb-89 ($T_{1/2} = 15$ m), ähnlich verhält es sich bei Sr-90. Nuklide mit derartigen Vorläufern kondensieren später als andere. Spätere Kondensation hat wahrscheinlich eine kleinere durchschnittliche Partikelgröße zur Folge /84/. Je nach Typ der Explosion gelangen die Spaltprodukte in verschiedene Höhen.

Das Absinken der Teilchen auf die Erdoberfläche ist abhängig von ihrer Größe, ihrem Gewicht sowie der Höhe, in die sie bei der Explosion gebracht werden /83/, und den meteorologischen Bedingungen. Geographische Breite des Explosionsortes und evt. die Jahreszeit spielen dabei ebenfalls eine Rolle /22/. In der Troposphäre wird die mittlere Verweilzeit von Nuklearteilchen nach Stewart u.a. /85/, Lockhart u.a. /86/ und Rühle /83/ auf etwa 30 Tage geschätzt. Die Aufenthaltszeit in der Stratosphäre reicht von 6 Monaten bis zu 3 Jahren /22,83/. In sehr großen Höhen oberhalb der Stratosphäre (über 100 km) steigt sie auf 5 bis 14 Jahre an /22,87/.

Für die einzelnen Nuklide wurden speziell folgende mittleren Verweilzeiten ermittelt: für Sr-90 in der gesamten Stratosphäre 10 Monate bis 1,6 Jahre /88,89,90,91,92/, für Cs-137 11,1 Monate /93/. Die Stratosphäre verhält sich wie ein großes

Reservoir, aus dem viele Jahre nach Kernexplosionen noch Radioaktivität geliefert wird. Ein Modell, mit dem sich der voraussichtliche atmosphärische Inhalt an radioaktivem Material berechnen läßt, ist von Krey und Krajewski /94/ aufgestellt worden. Seit 1967 schwankt das gesamte Inventar an Sr-90 in der Stratosphäre zwischen 0,2 und 0,5 MCi, da durch französische und chinesische Explosionen neues Sr-90 nachgeliefert wurde.

Alle Aerosole lagern sich aus der Troposphäre nach einer gewissen Zeit an der Erdoberfläche ab. Der Erdboden bzw. das Meer stellen daher das größte Reservoir für radioaktive Partikel dar. Für Sr-90 hat sich dort seit 1966 ein nahezu konstanter Wert von etwa 12,4 MCi /22/ eingestellt.

Die Ablagerung von Partikeln (Fallout) erfolgt entweder in trockener Form (als Staub) oder mit dem Niederschlag (Washout). Das Auswaschen spielt dabei eine wesentlich größere Rolle (im allgemeinen ca. 80 bis 90% /84/). Die trockene Ablagerung trägt nur in Gebieten geringen Niederschlags einen wesentlichen Anteil zum gesamten Fallout bei /22/. Von Pearson und Keane /95/ werden einige Washout-Faktoren angegeben. Der Einfluß der Staubbiederschlagsmenge auf die Höhe der Radioaktivität im Fallout ist von Csupka /96/ untersucht worden.

Nach einer Kernexplosion unterscheidet man zwischen lokalem Fallout (auch Nah- oder Frühfallout genannt) sowie troposphärischem und stratosphärischem Fallout /83/. Der lokale Fallout tritt in der Nähe des Explosionsortes bis zu einer Entfernung von einigen 100 km in den ersten 2 Tagen auf. Er ist umso kleiner, je höher der Explosionsort über der Erdoberfläche liegt /83/. Die entstehenden großen Aerosolteilchen (Durchmesser > 20 µm) bleiben nur kurze Zeit luftgetragen. Ihr Vorkommen ist auf die Nähe der Quelle begrenzt /84/.

Die Partikel beim troposphärischen Fallout haben einen Durchmesser von ca. 1 bis 10 μm . Sie breiten sich rasch über große Teile der Erde aus, verbleiben aber im wesentlichen in der geographischen Breite des Explosionsortes /83/. Diese Teilchen können als Kondensationskerne dienen, ihre spezifische Aktivität kann bis zu 10^{-9} Ci pro Teilchen betragen /84/.

Der stratosphärische Fallout tritt weltweit auf. In südlichen Breiten hat er im März ein Maximum, in nördlichen Breiten erst im Juni /97/. Aufgrund der langen Verweilzeit enthält dieser Fallout im wesentlichen nur langlebige Nuklide (z.B. Cs-135, Cs-137, Sr-90). Der Durchmesser der durch Kernexplosionen in die untere Stratosphäre gelangenden Partikel ist kleiner als 0,5 μm /83/, in einer Höhe über 27 km kleiner als 0,04 μm /98/. Derartige Teilchen haben nur sehr kurze Lebenszeiten, sie werden schnell von größeren Aerosolpartikeln gebunden.

Die im Vergleich zur stratosphärischen Aufenthaltszeit kurzlebigen Nuklide erreichen die Erdoberfläche größtenteils in Form ihrer stabilen Nachfolger, sie stellen ein geringeres Gefährdungspotential dar. Die beiden Cesiumisotope Ce-141 ($T_{1/2} = 32,5$ d) und Ce-144 ($T_{1/2} = 284$ d) sind wichtig als atmosphärische Radioindikatoren. Ihre Halbwertszeiten sind der troposphärischen Aufenthaltszeit (≈ 30 d) bzw. der stratosphärischen Verweilzeit (≈ 1 a) von kleinen Teilchen sehr ähnlich /99/. Sr-90 eignet sich gut als sog. Tracer bei der Untersuchung atmosphärischer Luftströmungen. Aus dem Sr-89/Sr-90-Verhältnis /100/ oder dem Ce-141/Ce-144-Verhältnis /99,100/ läßt sich das Alter von radioaktiven Aerosolen bzw. der Zeitpunkt der Kernwaffenexplosion bestimmen. Das Cs-137/Sr-90-Verhältnis beträgt aufgrund der unterschiedlichen Produktionsrate der beiden Nuklide etwa 1,5. Daraus läßt sich das Sr-90- bzw. Cs-137-Aktivitätsinventar berechnen, falls nur Meßdaten von einem der beiden Nuklide vorliegen /101/.

5.2 Kratererzeugende und abgeschlossene unterirdische Explosionen

Im Gegensatz zu oberirdischen Explosionen dienen kratererzeugende und abgeschlossene im allgemeinen friedlichen Zwecken (Bewegung großer Erdmassen, Schaffung von Hohlräumen für unterirdische Lagerstätten). Aus den Unterlagen von Zander und Araskog /76/ läßt sich abschätzen, daß bei derartigen Explosionen bis zum 6.6.1973 mindestens 20 bis 30 Mt TNT freigesetzt wurden. Hierbei handelt es sich um eine sehr vorsichtige Abschätzung, da über russische Explosionen nur wenige Daten vorliegen.

a) Kratererzeugende Explosionen

Bei einer Kernexplosion in einer relativ kleinen Tiefe bricht der sich bildende Hohlraum bis an die Erdoberfläche durch. Beträchtliche Mengen des umgebenden Bodenmaterials werden aktiviert und in die Atmosphäre geschleudert. Bei der russischen Explosion "1004" konnte dabei u.a. auch Cs-134 nachgewiesen werden /102/. Die Partikeleigenschaften der luftgetragenen Teilchen hängen von der Explosionstiefe und -stärke sowie von der Festigkeit und dem Wassergehalt des Bodenmaterials ab /22/. Aus Messungen geht hervor, daß nach etwa 10 Tagen Sr-89, Ba-140 und Y-91 mehr als 80% der Gesamtaktivität des Fallouts ausmachen. Dies ist auf deren Edelgasvorläufer mit Halbwertszeiten von 10 sec bis zu mehreren Minuten zurückzuführen /103/. Von Izrael /102/ und UNSCEAR /22/ werden Angaben über die Aktivitätsfreisetzungen bei Explosionsstärken von 1,1 kt bis zu einigen 100 kt gemacht. Knox u.a. /104/ haben ein Diffusionsmodell entwickelt, mit dem sich die radioaktive Konzentration in der Wolke als Funktion der Zeit abschätzen läßt. Mit diesem Modell kann ebenfalls die Ablagerung von radioaktivem Material aus der Wolke über große Entfernungen bestimmt werden.

Kratererzeugende Explosionen werden in Zukunft wahrscheinlich nicht in großem Ausmaß durchgeführt, da die in der Nähe wohnende Bevölkerung evt. durch unzulässig hohe Strahlendosen ge-

fährdet werden könnte. Zur Schaffung eines Kanals durch den amerikanischen Isthmus wäre z.B. eine Sprengkraft von ca. 120 Mt TNT erforderlich /22/. Dabei würden durch eine Spaltbombe u.a. $1,9 \cdot 10^9$ Ci Sr-89 und $1,3 \cdot 10^7$ Ci Sr-90 erzeugt und teilweise freigesetzt. Das ist mehr als die Hälfte der bisher durch sämtliche Kernexplosionen erzeugten Menge.

b) Abgeschlossene unterirdische Explosionen

Bei den in großen Tiefen stattfindenden Explosionen dringt im allgemeinen kaum Radioaktivität in die Atmosphäre. Wegen des hohen Explosionsdruckes können sich beim Zusammenquetschen von Gestein Risse und Spalte bilden. Dadurch können radioaktive Gase, zur Hauptsache Krypton- und Xenonisotope, an die Erdoberfläche dringen. Ein direktes Entweichen von nichtflüchtigen Nukliden in die Atmosphäre ist sehr unwahrscheinlich. Diese Nuklide werden von den dicken Gesteinsschichten adsorbiert, die über dem Explosionszentrum liegen /105/. Indirekt können nichtgasförmige Nuklide z.T. in die Atmosphäre gelangen, wenn sie gasförmige Vorläufer besitzen. Entscheidend für das Ausmaß dieser Freisetzung ist die Zeitspanne, die die Gase bis zum Erreichen der Erdoberfläche benötigen. Nimmt dieser Prozeß eine Stunde oder mehr /22/ in Anspruch, so könnte von den hier interessierenden Edelgasisotopen nur Xe-135 ($T_{1/2}=9,2\text{h}$) in größeren Mengen in die Atmosphäre freigesetzt werden. Bei einer Zeitdauer von nur wenigen Minuten könnten auch Kr-89, Kr-90 und Xe-137 entweichen /106/. Dieser Typ von Freisetzungen ist in den USA bisher noch nicht beobachtet worden /22/. Die Folgeprodukte der Edelgasisotope (Cs-135 bzw. Sr-89, Sr-90 und Cs-137) lagern sich an atmosphärische Staubteilchen an und bilden sogenannte Sekundäraerosole /105/. Die gesamte Aktivität A_i des in die Atmosphäre freigesetzten Nuklids i läßt sich nach Gleichung (5-2) berechnen. Dabei wird vorausgesetzt, daß das Entweichen der Gase aus dem Hohlraum exponentiell abnimmt /106/.

$$A_i = \frac{z y_i S}{3,7 \cdot 10^{10}} \cdot \frac{\lambda_i^K}{K + \lambda_i} e^{-\lambda_i t_0} \quad (5-2)$$

$A_i, z, Y_i, S, \lambda_i, 3,7 \cdot 10^{10}$ siehe Gleichung (5-1), Seite 30

$K \left[\frac{1}{\text{sec}} \right]$ = Konstante für Entweichen aus dem Hohlraum

$t_0 \left[\text{sec} \right]$ = Zeitspanne, die ein Gas benötigt, um vom Hohlraum an die Erdoberfläche zu gelangen.

Bei unterirdischen Explosionen ist eine Kontamination des Grundwassers möglich. Grundwasserströme können evt. umgelenkt werden und durch den Explosionshohlraum fließen. Sr-90 wird bei seinem Transport mit dem Grundwasser in praktisch allen geologischen Formationen stark zurückgehalten /22/. Nach Stead /80/ macht die Bewegung von Ru-106 ebenfalls nur einen kleinen Bruchteil des Grundwasserflusses aus. Brown /107/ gibt dagegen an, daß sich Ru-106 ungefähr mit der gleichen Geschwindigkeit wie das Grundwasser bewegt.

Bei einer kratererzeugenden Explosion gelangen wesentlich größere Aktivitätsmengen in die Atmosphäre als bei einer abgeschlossenen unterirdischen Explosion. Aus den bisher veröffentlichten (unvollständigen) Daten lassen sich freigesetzte Aktivitätsmengen und die Kontamination des Grundwassers nicht berechnen. Im Vergleich zu den oberirdischen Explosionen dürften die bisher bei kratererzeugenden und abgeschlossenen unterirdischen Explosionen freigesetzten Aktivitätsmengen mit Sicherheit gering sein.

6. Aktivitätserzeugung und -freisetzung durch Kernkraftwerke

Alle betrachteten Nuklide außer Cs-134 entstehen durch Spaltreaktionen im Brennstoff. Cs-134 ist ein Aktivierungsprodukt, das durch (n,γ)-Reaktion aus Cs-133 gebildet und daher mathematisch gesondert behandelt wird.

6.1 Aktivitätserzeugung im Brennstoff

6.1.1 Spaltprodukte

Die Aktivitätserzeugungsrate eines Spaltnuklides im Kernbrennstoff errechnet sich mit Beziehung (6-1):

$$\dot{A}_i = \frac{3,12 \cdot 10^{16}}{3,7 \cdot 10^{10}} \cdot y_i \lambda_i = 8,4 \cdot 10^5 y_i \lambda_i \quad (6-1)$$

$$\dot{A}_i \left[\frac{\text{Ci}}{\text{MW}_{\text{th}} \text{sec}} \right] = \text{Aktivitätserzeugungsrate des Nuklides } i$$

$$3,12 \cdot 10^{16} \left[\frac{1}{\text{MW}_{\text{th}} \text{sec}} \right] = \text{Anzahl der Spaltungen pro Sekunde, die zur Erzeugung von } 1 \text{ MW}_{\text{th}} \text{ erforderlich sind.}$$

$$3,7 \cdot 10^{10} \left[\frac{1}{\text{Cisec}} \right] = \text{Anzahl der Zerfälle pro Curie und Sekunde}$$

$$y_i \left[\text{1} \right] = \text{kumulative Spaltausbeute des Nuklides } i \text{ (in absoluten Werten)}$$

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

Den Tabellen 6-1, 6-2 und 6-3 sind die Aktivitätserzeugungsraten \dot{A}_i bei der Spaltung von U-235, U-233 und Pu-239 zu entnehmen. Für das Aktivitätsinventar von Spaltnukliden A_i gilt nach der Zeit t Beziehung (6-2):

Tabelle 6-1 Kumulative Spaltausbeute y , Aktivitätserzeugungsrate \dot{A} und Aktivitätsinventar A im 1000 MWe-LWR nach 1 Jahr Betriebszeit
(Wirkungsgrad 0,34; Spaltstoff U-235; thermische Neutronen)

Nuklid	y /108/	\dot{A} [$\bar{\text{Ci}}/\text{MW}_{\text{th}}\text{sec}^{-1}$]	A [$\bar{\text{M}}\text{Ci}/\text{a } 1000 \text{ MWe}$]
Sr-89	0,0476	$6,35 \cdot 10^{-3}$	116,8
Sr-90	0,0583	$3,83 \cdot 10^{-5}$	3,51
Ru-103	0,030	$5,12 \cdot 10^{-3}$	74,0
Ru-106	0,00399	$7,36 \cdot 10^{-5}$	4,93
Cs-135	0,0643	$5,93 \cdot 10^{-10}$	$55 \cdot 10^{-6}$
Cs-137	0,0618	$3,80 \cdot 10^{-5}$	3,48
Ce-141	0,061	$1,26 \cdot 10^{-2}$	150,6
Ce-144	0,0540	$1,28 \cdot 10^{-3}$	78,7

Tabelle 6-2 Kumulative Spaltausbeute y , Aktivitätserzeugungsrate \dot{A} und Aktivitätsinventar A im 1000 MWe-HTGR nach 1 Jahr Betriebszeit
(Wirkungsgrad 0,4; Spaltstoff U-233; thermische Neutronen)

Nuklid	y /108/	\dot{A} [$\bar{\text{Ci}}/\text{MW}_{\text{th}}\text{sec}^{-1}$]	A [$\bar{\text{M}}\text{Ci}/\text{a}$ 1000 MWe]
Sr-89	0,0610	$8,14 \cdot 10^{-3}$	127,2
Sr-90	0,0630	$4,14 \cdot 10^{-5}$	3,23
Ru-103	0,0163	$2,78 \cdot 10^{-3}$	34,2
Ru-106	0,0025	$4,61 \cdot 10^{-5}$	2,63
Cs-135	0,060	$5,53 \cdot 10^{-10}$	$43,7 \cdot 10^{-6}$
Cs-137	0,0658	$4,05 \cdot 10^{-5}$	3,15
Ce-141	0,0677	$1,40 \cdot 10^{-2}$	142,1
Ce-144	0,0462	$1,10 \cdot 10^{-3}$	57,2

Tabelle 6-3 Kumulative Spaltausbeute y , Aktivitätserzeugungsrate \dot{A} und Aktivitätsinventar A im 1000 MWe-LMFBR nach 1 Jahr Betriebszeit
(Wirkungsgrad 0,4; Spaltstoff Pu-239, Neutronen vom Spaltspektrum)

Nuklid	y /108/	\dot{A} [$\bar{\text{Ci}}/\text{MW}_{\text{th}}\text{sec}^7$]	A [$\bar{\text{M}}\text{Ci}/\text{a}$ 1000 MWe]
Sr-89	0,018	$2,40 \cdot 10^{-3}$	37,5
Sr-90	0,0224	$1,47 \cdot 10^{-5}$	1,15
Ru-103	0,0585	$9,98 \cdot 10^{-3}$	122,6
Ru-106	0,047	$8,67 \cdot 10^{-4}$	49,4
Cs-135	0,0754	$6,95 \cdot 10^{-10}$	$54,9 \cdot 10^{-6}$
Cs-137	0,0658	$4,05 \cdot 10^{-5}$	3,15
Ce-141	0,0515	$1,07 \cdot 10^{-2}$	108,1
Ce-144	0,0368	$8,73 \cdot 10^{-4}$	45,6

$$A_i(t) = 8,4 \cdot 10^5 y_i (1 - e^{-\lambda t}) \quad (6-2)$$

A_i $\overline{[C_i]}$ = Aktivitätsinventar des Nuklids i

t $\overline{[sec]}$ = Standzeit im Reaktor

Bei einer Leistung P_e und einem Wirkungsgrad η eines Reaktors errechnet sich das Aktivitätsinventar A_k zu:

$$A_k = A_i P_e \cdot \frac{1}{\eta} \quad (6-3)$$

P_e $\overline{[MW_e]}$ = elektrische Leistung des Reaktors

η $\overline{[]}$ = Wirkungsgrad des Reaktors

Das Aktivitätsinventar des sehr langlebigen Cs-135 wächst proportional zur Standzeit im Reaktor:

$$A_i(t) = 8,4 \cdot 10^5 y_i \lambda_i t \quad (6-4)$$

Einen Überblick über das Aktivitätsinventar der einzelnen Nuklide nach einer Standzeit von einem Jahr in verschiedenen Reaktortypen geben die Tabellen 6-1, 6-2 und 6-3.

Neben dem radioaktiven Zerfall (beschrieben durch λ) verschwinden die gebildeten Nuklide auch durch Neutroneneinfang (beschrieben durch das Produkt aus Einfangquerschnitt σ_c und Neutronenfluß ϕ). In Tabelle 6-4 werden $\sigma_c \phi$ für einen thermischen sowie einen schnellen Reaktor mit den Zerfallskonstanten λ verglichen. Lediglich bei Cs-135 überwiegt der Neutroneneinfang gegenüber dem radioaktiven Zerfall. Das Cs-135-Inventar ist dadurch nach einer Standzeit von 4 Jahren im Reaktor um etwa 1% kleiner als es ohne Einfang wäre. Bei den restlichen Nukliden ist $\sigma_c \phi$ vernachlässigbar klein

gegenüber λ . Aufgrund relativ kleiner Einfangquerschnitte ist die Produktion der hier betrachteten Nuklide durch (n,γ) -Reaktion ebenfalls vernachlässigbar.

Tabelle 6-4 Vergleich von $\sigma_c \phi$ für einen thermischen und einen schnellen Reaktor mit λ

$$(\phi_{th} = 3 \cdot 10^{13} \frac{n}{cm^2 sec}; \phi_s = 10^{15} \frac{n}{cm^2 sec})$$

Nuklid	$\sigma_{c_{th}} / \bar{barn} / 38 /$	$\sigma_{c_s} / \bar{barn} / 109 /$	$\sigma_{c_{th}} \phi_{th} / \frac{1}{sec} / 7$	$\sigma_{c_s} \phi_s / \frac{1}{sec} / 7$	$\lambda / \frac{1}{sec} / 7$
Sr-89	0,4	0,02	$1,2 \cdot 10^{-11}$	$2 \cdot 10^{-11}$	$1,6 \cdot 10^{-7}$
Sr-90	1		$3 \cdot 10^{-11}$		$7,8 \cdot 10^{-10}$
Ru-103	1	0,7	$3 \cdot 10^{-11}$	$7 \cdot 10^{-10}$	$2,0 \cdot 10^{-7}$
Ru-106	0,15	0,05	$4,5 \cdot 10^{-12}$	$5 \cdot 10^{-11}$	$2,2 \cdot 10^{-8}$
Cs-135	8,7	0,04	$2,61 \cdot 10^{-10}$	$4 \cdot 10^{-11}$	$1,1 \cdot 10^{-14}$
Cs-137	0,11	0,006	$3,3 \cdot 10^{-12}$	$6 \cdot 10^{-12}$	$7,3 \cdot 10^{-10}$
Ce-141	30	0,02	$9 \cdot 10^{-10}$	$2 \cdot 10^{-11}$	$2,5 \cdot 10^{-7}$
Ce-144	1,0	0,03	$3 \cdot 10^{-11}$	$3 \cdot 10^{-11}$	$2,8 \cdot 10^{-8}$

6.1.2 Aktivierungsprodukt Cs-134

Cs-134 wird durch Neutroneneinfang des stabilen Isotopes Cs-133 erzeugt. Durch β^- -Zerfall kann kein Cs-134 gebildet werden, da sein "Vorläufer" (Xe-134) stabil ist.

Cs-133 entsteht durch β^- -Zerfall von Vorläuferkernen, deren Halbwertszeiten klein sind (langlebigster Vorläufer: Xe-133; $T_{1/2} = 5,3d$) im Vergleich zur Standzeit im Reaktor. Die Entstehung von Cs-133 kann bei dieser Betrachtung als prompt

angenommen werden. Das im Reaktor vorhandene Inventar an Cs-133 läßt sich durch Differentialgleichung (6-5) beschreiben:

$$\frac{dCs^{133}}{dt} = Y_{133} \cdot \Sigma_{spu} - \sigma_{c133} \phi Cs^{133} \quad (6-5)$$

$$Cs^{133} \left[\frac{1}{cm^3} \right] = \text{Anzahl der Cs-133-Kerne pro } cm^3$$

$$Y_{133} \left[\bar{1} \right] = \text{kumulative Spaltausbeute von Cs-133}$$

$$\Sigma_{spu} \left[\frac{1}{cm} \right] = \text{makroskopischer Spaltquerschnitt von Uran}$$

$$\Sigma_{spu} = N \cdot \sigma_{spu}$$

$$N = \frac{L \rho_u a}{A}$$

$$L \left[\frac{\text{Atome}}{\text{mol}} \right] = \text{Loschmidt-Zahl}$$

$$\rho_u \left[\frac{g}{cm^3} \right] = \text{Dichte von Natururan}$$

$$a \left[\bar{1} \right] = \text{Anreicherung mit Spaltstoff}$$

$$A \left[\bar{1} \right] = \text{Massenzahl des Spaltstoffes}$$

$$\sigma_{spu} \left[\bar{\text{barn}} \right] = \text{mikroskopischer Spaltquerschnitt des Spaltstoffes}$$

$$\sigma_{c133} \left[\bar{\text{barn}} \right] = \text{thermischer Einfangquerschnitt von Cs-133}$$

$$\phi \left[\frac{n}{cm^2 \text{ sec}} \right] = \text{Neutronenfluß im thermischen Reaktor}$$

Für die zeitabhängige Anzahl der Cs-134-Kerne kann ebenfalls eine Differentialgleichung (6-6) aufgestellt werden:

$$\frac{dCs^{134}}{dt} = \sigma_{c133} \phi Cs^{133} - (\lambda_{134} + \sigma_{c134} \phi) Cs^{134} \quad (6-6)$$

$$Cs^{134} \left[\frac{1}{cm^3} \right] = \text{Anzahl der Cs-134-Kerne pro } cm^3$$

$$\lambda_{134} \left[\frac{1}{sec} \right] = \text{Zerfallskonstante von Cs-134}$$

$$\sigma_{c134} \left[\bar{barn} \right] = \text{thermischer Einfangquerschnitt von Cs-134}$$

Gleichung (6-5) hat folgende Lösung:

$$Cs^{133}(t) = \frac{y_{133} \Sigma_{spu}}{\sigma_{c133}} (1 - e^{-\sigma_{c133} \phi t}) \quad (6-7)$$

Durch Einsetzen von (6-7) in (6-6) ergibt sich die Lösung von Differentialgleichung (6-6) zu:

$$Cs^{134}(t) = Cs_o^{134} \left[1 + \frac{\sigma_{c133} \phi}{\lambda_{134} + (\sigma_{c134} - \sigma_{c133}) \phi} e^{-(\lambda_{134} + \sigma_{c134} \phi) t} - \frac{\lambda_{134} + \sigma_{c134} \phi}{\lambda_{134} + (\sigma_{c134} - \sigma_{c133}) \phi} e^{-\sigma_{c133} \phi t} \right] \quad (6-8)$$

$$Cs_o^{134} = \frac{y_{133} \Sigma_{spu} \phi}{\lambda_{134} + \sigma_{c134} \phi}$$

Mit dem Volumen des Urans $V_U = \frac{m_U}{\rho_U}$ wurde das Aktivitätsinventar von Cs-134 im thermischen 1000 MWe-Leichtwasserreaktor berechnet. Dabei wurden folgende Zahlenwerte verwendet:

$$\begin{aligned}
 Y_{133} &= 0,0669 && /108/ \\
 L &= 6,023 \cdot 10^{23} \frac{\text{Atome}}{\text{mol}} && / 32/ \\
 \rho_u &= 18,7 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3} && / 31/ \\
 a &= 0,03 && /110/ \\
 A &= 235 \\
 \sigma_{sp_u} &= 577 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2 && / 38/ \\
 \sigma_{c133} &= 30,6 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2 \\
 \phi &= 3 \cdot 10^{13} \frac{\text{n}}{\text{cm}^2 \text{ sec}} && /110/ \\
 \lambda_{134} &= 1,07 \cdot 10^{-8} \frac{1}{\text{sec}} && / 37/ \\
 \sigma_{c134} &= 136 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2 && / 38/ \\
 m_u &= 115 \text{ t} && /110/
 \end{aligned}$$

Das Ergebnis dieser Berechnungen ist in Abb.6-1 dargestellt.

Das Aktivierungsprodukt Cs-134 entsteht verzögert aus Cs-133, der Anstieg der Kurve ist daher zu Anfang sehr flach. Die Sättigungsaktivität von Cs-134 liegt bei etwa 200 MCi, sie wird also während des Reaktorbetriebes nicht erreicht. Zum Vergleich ist in Abb.6-1 außerdem das zeitabhängige Aktivitätsinventar des Spaltproduktes Cs-137 dargestellt, das nahezu linear mit der Standzeit im Reaktor zunimmt. Nach einer mittleren Standzeit der Brennstäbe im Reaktor von ca. 2 Jahren ist das Aktivitätsinventar von Cs-137 etwa 1,7 mal

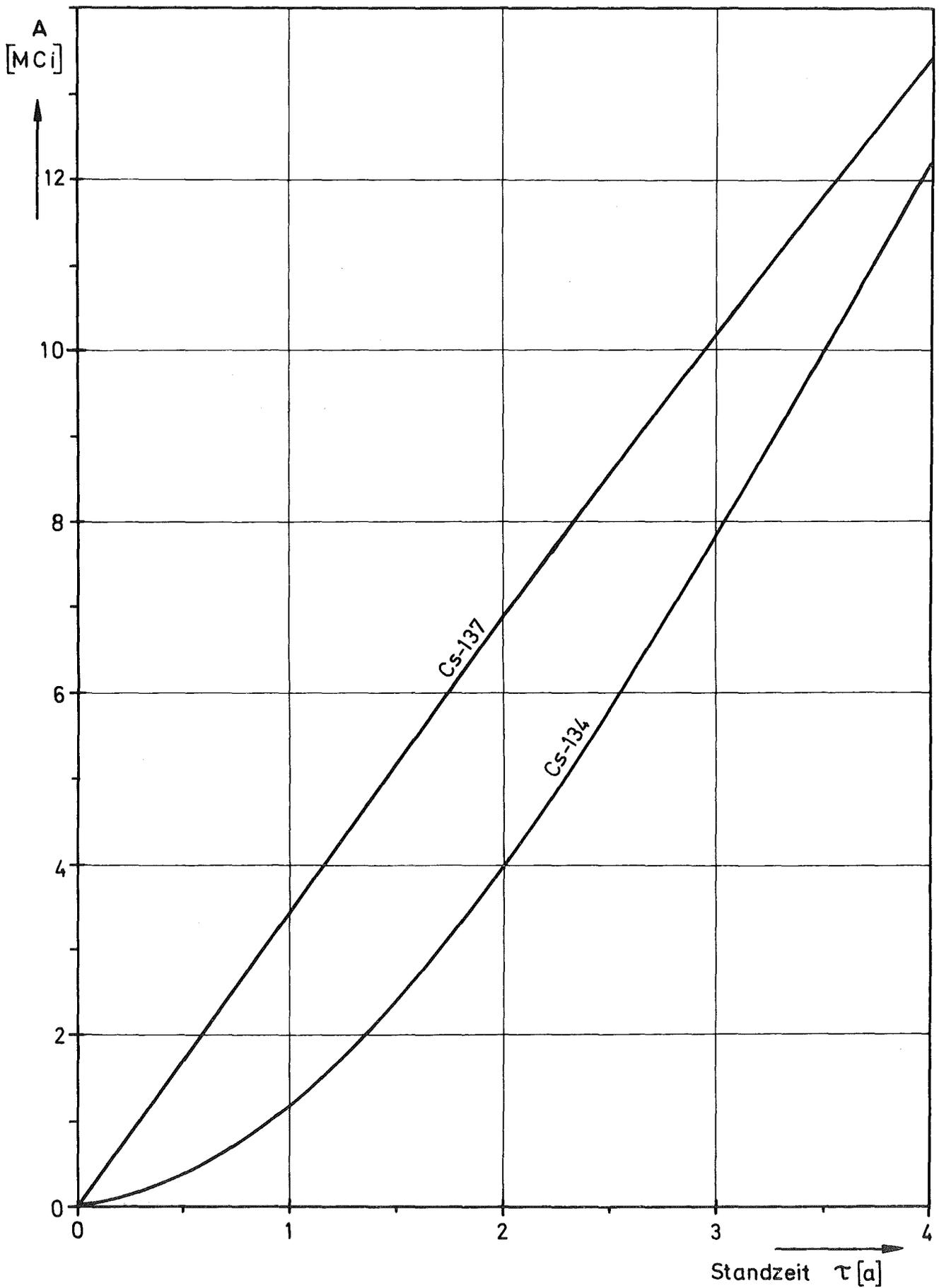


Abb.6-1 Cs-134- und Cs-137-Aktivitätsinventar A im 1000 MWe-LWR
(Spaltstoff U-235; Neutronenfluß $\phi=3 \cdot 10^{13} \frac{n}{cm^2 sec}$;
Wirkungsgrad 0,34)

so groß wie dasjenige von Cs-134. Dieser Zahlenwert wird durch die Aktivitätsabgaben von Leichtwasserreaktoren mit dem Abwasser bestätigt. Das Verhältnis Cs-137/Cs-134 liegt danach bei etwa 1,6 (vgl. Tabelle 6-12).

Daten über Einfangquerschnitte von Cs-133 und Cs-134 für schnelle Neutronen lagen nicht vor. Als grobe Näherung wurden die Werte für die Einfangquerschnitte bei thermischen Neutronen durch 10^3 dividiert, was aufgrund der bekannten Daten benachbarter Isotope (Cs-135 und Cs-137 /38,109/) vernünftig erscheint. Für eine Standzeit von etwa 2 Jahren im schnellen 1000 MWe-Reaktor ergibt sich ein Cs-134-Aktivitätsinventar von etwa $17 \cdot 10^6$ Ci.

6.2 Aktivitätsfreisetzung aus dem Brennelement

Verschiedene Sicherheitsbarrieren sorgen dafür, daß bei Normalbetrieb nur ein kleiner Bruchteil der im Brennstoff erzeugten Aktivität in die Umgebung eines Reaktors freigesetzt wird. Die erste Barriere stellt die Brennstoffmatrix selbst dar. Bei UO_2 -Brennstäben folgt eine Hülle aus nichtrostendem Stahl oder einer Zirkonlegierung, die die Freisetzung von Spaltprodukten in das Primärkühlmittel verhindert. Coated particles werden mit 2 Schichten aus pyrolytisch abgeschiedenem Kohlenstoff (PyC) bzw. mit einer zusätzlichen Schicht aus Siliziumkarbid (SiC) umgeben. Außerdem sind die Teilchen in eine Graphitmatrix eingebettet.

6.2.1 UO_2 -Brennstäbe

Bedingt durch defekte Brennstabhüllen kann ein Teil der Spaltprodukte in das Primärkühlmittel gelangen. Hauptsächlich sind dies die gasförmigen und leicht flüchtigen Nuklide, die sich teilweise im Spalt zwischen Hülle und Brennstoff und an den Enden des Brennstabes ansammeln /111/. Als typische Annahme für LWR gilt, daß 1% der Brennstäbe defekt sind /112/.

Häufigste Fehler in der Brennelementhülle sind Schweißnahtfehler und lochfraßähnliche Vertiefungen (pin-holes), die herstellungsbedingt sind und infolge beschleunigter Korrosion zu durchgehenden Fehlern werden /113/. Ebenso kommt es aufgrund wechselnder Beanspruchungen im Reaktor zu Undichtigkeiten in der Hülle.

Der Austritt von Spaltprodukten aus dem Brennstoff ist von Temperatur, Abbrand und der chemischen Form der Nuklide abhängig. Feste bzw. nichtflüchtige Nuklide werden auch bei Temperaturen über 2000 °C nur zu einem kleinen Bruchteil freigesetzt (vgl. Tabelle 6-5). Sie schlagen sich an den Innenwänden der Brennstoffhüllrohre nieder /113/. Cäsium liegt im Brennstoff in flüchtiger Form vor. Cer soll ebenso wie Ruthenium und Strontium nichtflüchtig sein /9,114/. Hiller /115/ gibt an, daß Cäsium (Siedepunkt 670 °C) bei Temperaturen über 700 °C im Brennstoff beweglich ist und unter dem Einfluß von Temperaturgradienten vorwiegend in die kühleren Zonen des Brennstoffes wandert.

Tabelle 6-5 Gemessene Freisetzungswerte aus UO_2 -Brennstoff /9/

Hülle	Abbrand [MWD/t]	Freisetzungs- bedingungen	Freisetzung [%]			
			Cs	Ru	Sr	seltene Erden (Ce)
Zr	1300	Loch in Hülle bei 900 °C	0,27		0,0031	
Zr	850	Loch in Hülle bei 1050 °C	0,037			
keine	11000	2800 °C (ge- schmolzen) in Luft	97,4	92,5	0,4	3,9

Über Freisetzungen aus UO_2 unter verschiedensten Versuchsbedingungen liegen zahlreiche Ergebnisse vor, unter Reaktorbedingungen jedoch nur in sehr geringem Umfang. Einige von Beattie und Bryant /9/ angegebene Freisetzungswerte sind in Tabelle 6-5 zusammengestellt. Strontium und Cer treten danach selbst aus geschmolzenem Brennstoff kaum aus.

Die Freisetzungsrates R von Spaltprodukten aus dem Brennstab lässt sich mittels der im Primärkühlmittel gemessenen Aktivitätskonzentration der jeweiligen Nuklide berechnen:

$$R_i = C_i V (\lambda_i + \frac{\dot{Q}}{V}) \quad (6-9)$$

$$R_i \left[\frac{Ci}{sec} \right] = \text{Freisetzungsrates in das Primärkühlmittel}$$

$$C_i \left[\frac{Ci}{m^3} \right] = \text{Aktivitätskonzentration des Nuklides } i \text{ im Primärkühlmittel}$$

$$V \left[m^3 \right] = \text{Volumen des Primärkühlmittels}$$

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

$$\dot{Q} \left[\frac{m^3}{sec} \right] = \text{Durchsatz durch Primärwasserreinigung}$$

In Tabelle 6-6 sind einige in LWR gemessene Daten für C_i zusammengestellt. Daraus wurden Freisetzungsrates R sowie R/B -Werte (Aktivitätsfreisetzung/Aktivitätserzeugung) berechnet (vgl. Tabelle 6-7). Die Freisetzungsrates ist 4 bis 8 Größenordnungen niedriger als die Erzeugungsrates. Allgemeingültige Werte für die Freisetzungsrates lassen sich nicht angeben, da diese stark von der Anzahl der defekten Brennstäbe abhängig ist. Das größere R/B -Verhältnis bei längerlebigen Nukliden ist ihrer größeren Akkumulation im Brennstoff zuzuschreiben /4/. Das flüchtige Cs-137 besitzt das größte R/B -Verhältnis von allen gemessenen Nukliden.

Tabelle 6-6 Aktivitätskonzentrationen $C \left[\frac{\mu\text{Ci}}{\text{cm}^3} \right]$ im Primärkühlmittel von LWR
/4, 116, 117/

Nuklid	KRB (BWR, 250 MWe)					durchschnittliche Konzentration
	25.4.68	18.12.68	20.3.69	24.9.69	21.4.70	
Sr-89		$6,9 \cdot 10^{-4}$	$3,5 \cdot 10^{-3}$		$8,0 \cdot 10^{-5}$	$1,4 \cdot 10^{-3}$
Sr-90		$1,1 \cdot 10^{-5}$	$4,2 \cdot 10^{-5}$		$2,0 \cdot 10^{-6}$	$1,8 \cdot 10^{-5}$
Cs-134	$4,2 \cdot 10^{-5}$	$9,3 \cdot 10^{-5}$	$5,4 \cdot 10^{-4}$	$2,8 \cdot 10^{-5}$	$1,9 \cdot 10^{-4}$	$1,8 \cdot 10^{-4}$
Cs-137	$6,4 \cdot 10^{-5}$	$1,4 \cdot 10^{-4}$	$9,0 \cdot 10^{-4}$	$3,6 \cdot 10^{-5}$	$3,0 \cdot 10^{-4}$	$2,9 \cdot 10^{-4}$
Ce-141	$5,6 \cdot 10^{-5}$	$3 \cdot 10^{-5}$	$9 \cdot 10^{-5}$	$6 \cdot 10^{-5}$		$5,9 \cdot 10^{-5}$

Nuklid	Dresden I (BWR, 200 MWe)			KWO (PWR, 345 MWe)		durchschnittliche Konzentration
	1.2.68	22.8.68	durchschnittl. Konzentration	20.5.70	25.5.71	
Sr-89	$1,2 \cdot 10^{-4}$	$4,4 \cdot 10^{-5}$	$8,2 \cdot 10^{-5}$			
Sr-90	$1,2 \cdot 10^{-5}$	$1,3 \cdot 10^{-6}$	$6,7 \cdot 10^{-6}$			
Ru-103	$5,0 \cdot 10^{-4}$	$5,6 \cdot 10^{-5}$	$2,8 \cdot 10^{-4}$			
Ru-106		$1,3 \cdot 10^{-6}$	$1,3 \cdot 10^{-6}$			
Cs-134	$1,3 \cdot 10^{-5}$	$2,3 \cdot 10^{-5}$	$1,8 \cdot 10^{-5}$	$6,2 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-3}$	$4,1 \cdot 10^{-3}$
Cs-137	$3 \cdot 10^{-5}$	$4,4 \cdot 10^{-5}$	$3,7 \cdot 10^{-5}$	$2,3 \cdot 10^{-5}$	$3,3 \cdot 10^{-3}$	$1,7 \cdot 10^{-3}$
Ce-141	$9 \cdot 10^{-4}$	$4,4 \cdot 10^{-5}$	$4,7 \cdot 10^{-4}$			
Ce-144	$3 \cdot 10^{-4}$	$8,0 \cdot 10^{-6}$	$1,5 \cdot 10^{-4}$			

Tabelle 6-7 Aktivitätsfreisetzungsrates $R \left[\frac{\text{Ci}}{\text{sec}} \right]$ in das Primärkühlmittel von LWR und R/B-Werte

Nuklid	KRB (BWR, 801 MW _{th}) V = 120 m ³ , Q̇ = 32,5 $\frac{\text{m}^3}{\text{h}}$		Dresden I (BWR, 600 MW _{th}) V = 190 m ³ , Q̇ = 13,6 $\frac{\text{m}^3}{\text{h}}$		KWO (PWR, 1050 MW _{th}) V = 129 m ³ , Q̇ = 12 $\frac{\text{m}^3}{\text{h}}$	
	R $\left[\frac{\text{Ci}}{\text{sec}} \right]$	R/B	R $\left[\frac{\text{Ci}}{\text{sec}} \right]$	R/B	R $\left[\frac{\text{Ci}}{\text{sec}} \right]$	R/B
Sr-89	1,3 · 10 ⁻⁵	2,5 · 10 ⁻⁶	3,1 · 10 ⁻⁷	8,2 · 10 ⁻⁸		
Sr-90	1,6 · 10 ⁻⁷	5,3 · 10 ⁻⁶	2,5 · 10 ⁻⁸	1,1 · 10 ⁻⁶		
Ru-103			1,1 · 10 ⁻⁶	3,5 · 10 ⁻⁷		
Ru-106			4,9 · 10 ⁻⁹	1,1 · 10 ⁻⁷		
Cs-134	1,6 · 10 ⁻⁶		6,8 · 10 ⁻⁸		1,4 · 10 ⁻⁵	
Cs-137	2,6 · 10 ⁻⁶	8,6 · 10 ⁻⁵	1,4 · 10 ⁻⁷	6,1 · 10 ⁻⁶	5,7 · 10 ⁻⁶	1,4 · 10 ⁻⁴
Ce-141	5,3 · 10 ⁻⁷	5,3 · 10 ⁻⁸	1,8 · 10 ⁻⁶	2,4 · 10 ⁻⁷		
Ce-144			5,7 · 10 ⁻⁷	7,4 · 10 ⁻⁷		

Spaltprodukte mit gasförmigen oder Edelgasvorläufern - wie z.B. Sr-89, Sr-90 und Cs-137 - erreichen das Kühlmittel zum Teil in Form ihrer Vorläufer. Die Größe des auf diese Weise freigesetzten Anteils ist von der Halbwertszeit der Vorläufer abhängig /118/.

Nahezu vollständig tritt derjenige Anteil an Spaltprodukten in das Kühlmittel über, der aufgrund der Urkontamination der Hülle entsteht. Aus einigen Sicherheitsberichten von Druckwasserreaktoren (KWO, KKS, Biblis, Nordenham) /111/ geht hervor, daß dieser Anteil um mehrere Größenordnungen kleiner und demnach vernachlässigbar ist gegenüber dem durch Hüllenschäden verursachten Anteil /69/.

6.2.2 Beschichtete Brennstoffteilchen

In HTGR werden 2 Typen von coated particles verwendet:

a) BISO-Partikel

Der Brennstoffkern ist von einer Pufferschicht aus porösem pyrolytisch abgeschiedenem Kohlenstoff (PyC) und einer isotropen PyC-Schicht von hoher Dichte umgeben. PyC stellt für Strontium, Cäsium und Barium nur eine unzureichende Diffusionsbarriere dar. Bei Temperaturen über 1200 °C wurde eine hohe Freisetzung von Strontium und Barium beobachtet /119/.

b) TRISO-Partikel

Diese Teilchen besitzen zusätzlich eine dritte Schicht aus Siliziumkarbid (SiC), die sich durch besonders gute Rückhalteeigenschaften für metallische Spaltprodukte auszeichnet /120,121,122,123/. Die Verwendung von SiC hat einige Nachteile hinsichtlich der Herstellung, des Bestrahlungsverhaltens und der Wiederaufarbeitung der Partikel /123/.

Die Rückhalteeigenschaften des Brennstoffkernes hängen ab von der Porösität, der Korngröße und der chemischen Zusammensetzung des Brennstoffes /120/. Die Diffusionsgeschwindigkeiten der einzelnen Nuklide durch die jeweiligen Hüllschichten sind unterschiedlich (vgl. Tabelle 6-8). Durch Hinzufügen einer SiC-Schicht nimmt das Rückhaltevermögen um bis zu 3 Größenordnungen zu. Bei unterhalb 1500 °C abgeschiedenem SiC treten wesentlich größere Diffusionskoeffizienten auf als bei über 1500 °C abgeschiedenem. Für Strontium bedeutet dieser Effekt z.B. eine Reduzierung des Diffusionskoeffizienten um 4 bis 5 Größenordnungen. Aufgrund der zeitlichen Verzögerung bei der Freisetzung zerfällt bereits ein großer Teil der kurzlebigen Nuklide, bevor er das Primärkühlmittel erreicht.

Außer im Brennstoffkern selbst entstehen auch im Hüllen- und Matrixmaterial Spaltprodukte aufgrund der Urkontamination. Bis zu einer Temperatur von mindestens 1300 °C überwiegt der durch Urkontamination ins Kühlgas freigesetzte Anteil der Spaltprodukte bei weitem /124/ (bei unbeschädigten coated particles). Im folgenden soll kurz auf Eigenschaften und Verhalten der einzelnen Nuklide in coated particles sowie in der Graphitmatrix eingegangen werden.

Strontium

Strontium bildet im Brennstoffkern das flüchtige Oxid SrO /119/. PyC stellt nur eine unzureichende Diffusionsbarriere für Strontium dar. Eine Verbesserung des Rückhaltevermögens bereits im Brennstoffkern läßt sich dadurch erreichen, daß dem oxidischen Kernmaterial in kleinen Mengen bestimmte hochschmelzende Oxide zugesetzt werden, die mit Strontium stabile Verbindungen bilden /123/. An derartige Oxidzusätze werden folgende Forderungen gestellt /119,123/:

- 1) ausreichend hoher Schmelzpunkt
- 2) niedriger Neutroneneinfangquerschnitt
- 3) keine chemischen Reaktionen mit dem Brennstoffoxid
- 4) keine chemischen Reaktionen mit dem Hüllmaterial

Tabelle 6-8 Freisetzungsraten und Diffusionskoeffizienten von festen Spaltprodukten für Pyrokohlenstoff (PyC) und Siliziumkarbid (SiC) /119/

	Sr-89, Sr-90		Cs-137		Ce-141, Ce-144		Ref.
	PyC	SiC	PyC	SiC	PyC	SiC	
bei 1500 °C freigesetzter Anteil			$>10^{-2}$	$5 \cdot 10^{-4}$			[DP-139]
R/B bei 1400 °C (Erzeugung/Freisetzung)	$6 \div 11 \cdot 10^{-2}$ 10^{-1}	$10^{-2} \div 7 \cdot 10^{-5}$ $10^{-3} \div 10^{-6}$	$\approx 10^{-3}$ $8 \cdot 10^{-5}$	$1 \div 4 \cdot 10^{-4}$ $3 \cdot 10^{-4} \div 9 \cdot 10^{-6}$	$1 \div 2 \cdot 10^{-4}$ $1 \div 4 \cdot 10^{-4}$	$10^{-4} \div 4 \cdot 10^{-6}$ $10^{-5} \div 10^{-6}$	[DP-400] [GA-8467]
$D_{1250^{\circ}\text{C}} \left[\frac{\text{cm}^2}{\text{sec}} \right]$	10^{-8} $1 \cdot 10^{-8}$	$6 \cdot 10^{-11} \div 10^{-13}$	10^{-11} $8 \cdot 10^{-12}$	$9 \cdot 10^{-14}$			[DP-693] [DPTN/138]
$D_{1400^{\circ}\text{C}} \left[\frac{\text{cm}^2}{\text{sec}} \right]$	$3,5 \cdot 10^{-8}$	$< 10^{-12} \div 10^{-13}^*$ $> 10^{-8}^{**}$	$\approx 10^{-12}$	$< 10^{-15} \div 10^{-18}^*$ $> 10^{-10}^{**}$			[DP-805]

* Abscheidetemperatur von SiC > 1500 °C

** Abscheidetemperatur von SiC < 1500 °C

5) keine Beeinträchtigung der Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes

Diesen Anforderungen entspricht Al_2O_3 . Bei einigen Gewichtsprozenten Al_2O_3 im Brennstoffkern wird die Freisetzung von Strontium aus dem Kern bis um das 100-fache reduziert (es bildet sich SrAl_2O_4) /119/.

Ruthenium

Die Vorgänge beim Rutheniumtransport in PyC-beschichteten Brennstoffteilchen sind nur unbefriedigend geklärt. Die auftretenden chemischen Reaktionen sind fast unbekannt, über das Diffusionsverhalten von Ruthenium liegen widersprüchliche Angaben vor. In der oxidischen Brennstoffmatrix und vielleicht auch in der Beschichtung liegt Ruthenium in metallischem Zustand vor. Seine Löslichkeit in PyC ist gering. Im oxidischen Brennstoffkern ist Ruthenium nicht löslich, es wird dort in Einschlüssen festgehalten. Im Brennelementgraphit wird Ruthenium gut zurückgehalten /124/.

Cäsium

Cäsium bildet nach Angaben von Förthmann u.a. /119/ im Brennstoffkern das äußerst instabile Oxid Cs_2O , vom Kohlenstoff wird es zu Cäsiummetall reduziert. Nach Engelhard /124/ liegt Cäsium im UO_2 -Kern im metallischen Zustand vor und diffundiert über die Gasphase wie die Spaltgase in die Beschichtung. Die hochdichten PyC-Schichten bilden die hauptsächliche Transportbarriere für Cäsium. Wird dem Brennstoffkern eine Kombination von Al_2O_3 und SiO_2 hinzugefügt, so wird die Freisetzung von Cäsium stark reduziert /119/.

Cer

Bei Cer handelt es sich um einen starken Oxidbildner, der im Brennstoffkern als Ce_2O_3 vorliegen dürfte /124/. Ceroxid ist in der UO_2 -Matrix gut löslich und daher gleichmäßig

über den Kern verteilt. Im oxidischen Brennstoffkern wird Cer gut zurückgehalten /123,125/. In der Beschichtung bildet es Einlagerungsverbindungen im Graphitgitter. Vor allem an den Korngrenzen, wo die Konzentration besonders hoch ist, kann sich auch CeC_2 bilden /124/.

In Tabelle 6-9 sind einige von ORNL /122/ gemessene Daten über die Rückhaltung von Spaltproduktmetallen durch umhüllte und nicht umhüllte Brennstoffpartikel zusammengestellt. Die guten Rückhalteeigenschaften für Ruthenium und Cer werden bestätigt. Strontium wird in größerem Ausmaß freigesetzt als Cäsium. Dies läßt sich auch durch seinen gegenüber Cäsium kleineren Atomdurchmesser und seine beträchtlich größere Löslichkeit in PyC erklären /122/.

Im Peach Bottom-Reaktor (40 MWe, USA) betrug der nach 300 Volllasttagen ins Primärkühlmittel freigesetzte Anteil an Sr-90 nur 10^{-6} des gesamten Sr-90-Inventars /122/. Nach Röllig und Schmidt /126/ sollen beim THTR etwa 30% des insgesamt freigesetzten Cs-137 über seinen gasförmigen Vorläufer (Xe-137) in den Primärkreislauf gelangen. Für Sr-89 und Ba-140 soll dieser Anteil sogar über 99,9% betragen.

Tabelle 6-9 Rückhaltung von Spaltprodukten durch umhüllte und nicht umhüllte Brennstoffpartikel /122/

Brennstoff	Hülle	max. Brennstofftemp. /°C/	Abbrand /‰/	Freisetzung /‰/			
				Sr-89	Ru-106	Cs-137	Ce-144
UC	keine	1200	3,5	0,933	0,02	0,44	
UO ₂	Puffer	1200	5		0,04	0,21	0,04
UO ₂	PyC	1250	6	0,47		0,03	0
UO ₂	PyC-SiC	1250	5			0	0

6.3 Aktivitätsfreisetzung durch Kernkraftwerke (KKW)

6.3.1 Leichtwasserreaktoren (LWR)

Abgaben mit dem Abwasser

Die aus den Brennelementen freigesetzten Spaltprodukte werden mit dem Primärkühlmittel durch das Kühlsystem des Reaktors transportiert. Die festen Spaltprodukte schlagen sich dabei teilweise an den Wänden des Kühlsystems nieder (bei Siedewasserreaktoren auch in der Turbine /127,128/). Ein Teil des Kühlmittels (etwa 7% /71/) wird im Bypass zur Reinigung kontinuierlich über ein Mischbettfilter gepumpt, wodurch die Aktivitätskonzentration herabgesetzt wird. Abwässer vom Primärkreis aus Systemleckagen, Labors und Dekontamination werden in Sammelbehälter geleitet. Um den Betrag des radioaktiven Materials vor der Abgabe an die Umgebung herabzusetzen, wird das Abwasser Reinigungsprozessen unterworfen, wobei je nach Anlage die folgenden Verfahren verwendet werden:

- a) Filtration
- b) chemische Fällung
- c) Ausflockung
- d) Verdampfung
- e) Ionenaustausch

Die größeren Mengen niederaktiver Abwässer können durch chemische Fällung gereinigt und anschließend an den Vorfluter abgegeben werden. Höher aktive Flüssigkeiten werden fast ausschließlich durch Verdampfen dekontaminiert, dieser Verfahrensschritt kann bei Bedarf noch durch Ionenaustauscher unterstützt werden /129/. Die Dekontaminationsfaktoren (DF) sind unterschiedlich und hängen teilweise von der Nuklidart ab /111/. In Tabelle 6-10 sind einige im Bericht WASH-1209 /2/ genannte DF aufgeführt. Die unterschiedlichen Dekontaminationsfaktoren für Cs-134 und Cs-137 beruhen mit Sicherheit auf Meßungenauigkeiten. Der Filterwirkungsgrad η_F kann definiert werden als:

Tabelle 6-10 Dekontaminationsfaktoren* in LWR für verschiedene Nuklide /2/

Nuklid	Dekontaminationsfaktor*
Sr-90	$1,3 \cdot 10^4 \div 1,5 \cdot 10^5$
Ru-106	$1,7 \cdot 10^6 \div 2,4 \cdot 10^6$
Cs-134	$1,9 \cdot 10^4 \div 2,7 \cdot 10^4$
Cs-137	$1,8 \cdot 10^4 \div 2,6 \cdot 10^4$
Ce-144	$3,8 \cdot 10^4 \div 2,5 \cdot 10^5$

$$* DF = \frac{\text{Freisetzung ins Kühlmittel}}{\text{Freisetzung an die Umgebung}}$$

$$\eta_F = 100 \left(1 - \frac{1}{DF}\right) \quad \eta_F \text{ in } \left[\frac{\%}{\%}\right] \quad (6-10)$$

Die größten Mengen radioaktiven Wassers müssen während der Abschaltperioden für Brennstoffwechsel und Reparaturen behandelt werden. Dies ist auf das Spülen von Kreisläufen, Absenken von Pegeln im Primärwassersystem, Reinigungsarbeiten, Entleerungen von Behältern für Prüfungen usw. zurückzuführen /130/. Am Beispiel des VAK, das 1972 außer Betrieb war und zum Teil höhere Aktivitäten abgegeben hat als während des normalen Leistungsbetriebes (vgl. Tab. 6-11), ist dies ersichtlich. Der überschüssige Anteil des aufbereiteten Abwassers wird in Speicherbehältern gesammelt und nach Prüfung auf die zulässige Aktivitätskonzentration mit dem Kühlwasser des Kondensators im Verhältnis von ca. 1:1000 /71/ verdünnt und an einen Fluß, See oder ins Meer abgegeben. Dort erfolgt eine weitere Verdünnung der radioaktiven Spaltprodukte.

Die über die Abgabe von Einzelnucliden mit dem Abwasser vor-

liegenden Meßdaten^{*} sind in Tabelle 6-11 zusammengefaßt. Die Aktivitätsabgaben sind von Anlage zu Anlage sehr unterschiedlich, auch innerhalb ein und derselben Anlage sind starke Schwankungen möglich. Aus den von einem KKW gemachten Angaben über die abgegebene Gesamtaktivität lassen sich schwerlich genaue Aussagen über die Konzentration von Einzelnucliden machen. Ein signifikanter Unterschied zwischen den Aktivitätsabgaben von Druck- und Siedewasserreaktoren kann aus dem vorliegenden Zahlenmaterial nicht festgestellt werden. Die mit dem Abwasser von LWR abgegebene Aktivität scheint proportional zur Leistung zuzunehmen, was sich durch eine höhere Brennstabzahl und eine damit verbundene höhere Anzahl von defekten Brennstäben bei größeren Leistungseinheiten erklären ließe.

Die Aktivitätsfreisetzungen der Strontium-, Ruthenium- und Cäsiumisotope sind relativ niedrig im Vergleich zu den Cäsiumisotopen. Dies ist verständlich aus der größeren Freisetzungsrate des Cäsium (Edelgasvorläufer Xenon) in das Primärkühlmittel. Radioaktive Abwässer werden aus Kernkraftwerken erst nach einer bestimmten Lagerzeit in den Sammelbehältern abgegeben. Die Aktivität relativ kurzlebiger Nuclide klingt bis zur Freisetzung erheblich ab. Aus dem Verhältnis der Abgaben von Ce-144 zu Ce-141 ergibt sich, daß von der Erzeugung der Spaltprodukte bis zur Freisetzung in die Umgebung etwa 2 bis 3 Monate vergehen. Für Ru-106 und Cs-135 liegen keine Abgabedaten vor. Die Aktivitätsabgabe von Ru-106 läßt sich aus der mittleren Rückhaltezeit der Spaltprodukte und dem Verhältnis der Aktivitätserzeugung von Ru-106 zu Ru-103 abschätzen. Für Cs-135 ist eine Abschätzung aus der Freisetzung von Cs-137 und dem Verhältnis der Aktivitätserzeugungsraten beider Nuclide möglich.

* Mein Dank gilt Herrn Dipl.-Chem. J. Arndt und Herrn Dipl.-Phys. H. Rühle /131/ vom Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene (Berlin), die die meisten der von deutschen KKW vorliegenden Abgabedaten zur Verfügung stellten.

Tabelle 6-11 Aktivitätsabgaberraten verschiedener Leichtwasserreaktoren mit dem Abwasser
/11,22,65,131,132,133,134,135,136,137,138,139,140,141,142,143,144,145,146,147,148/

a) außer Betrieb c) Versuchsbetrieb
b) nuklearer Anteil

a) Sr-89

Bezeichnung des KKW	Bruttoleistung [MWe]	Zeitraum	abgegebene Aktivität [mCi]	% der gesamten Abwasserabgabe (ohne H-3)	Brutto-Stromerzeugung [GWe]	Lastfaktor	bezogene Aktivitätsabgabe [µCi/MWe]
PWR							
Indian Point I	265	1969	30	0,11	1807	0,78	0,017
KWO	345	1970	3,95	0,1	2533	0,84	0,0016
		1971	47,5	0,88	2257	0,75	0,021
		1972	4,0	0,09	2402	0,79	0,0017
		1973	11	0,53	2629	0,87	0,0042
KKS	662	1972	0,55	0,18	3280	0,56	0,00017
		1973	2,1	0,56	4131	0,71	0,00051
BWR							
Dresden I	200	1968	300	4,91	970	0,55	0,31
		1970	1350	16,5	1429	0,82	0,945
VAK	15	1970	10,7	18,29	116	0,89	0,092
		1971	7,53	24,85	115	0,88	0,066
		1972	4,28	13,39	a)		
		1973	0,27	2,65	50	0,38	0,0054
Humboldt Bay	70	1970	10	0,42	430	0,70	0,023
KRB	250	1967	1300	38,2	1048	0,48	1,24
		1968	700	29,2	1024	0,47	0,68
		1969	1600	53,3	1259	0,57	1,27
		1970	1715	81,68	1845	0,84	0,93
		1971	2490	77,16	1991	0,91	1,25
		1972	1180	58,94	1820	0,83	0,65
		1973	940	59,40	1727	0,79	0,54
KWL	180 ^{b)}	1970	1,47	0,67	1008	0,64	0,0015
		1971	15,0	1,66	1011	0,64	0,015
		1972	0,35	0,79	530	0,34	0,00066
		1973	0,26	1,17	896	0,57	0,00029
KWW	670	1972 ^{c)}	1,4	0,73	573	0,098	0,0024
		1973	0,93	0,21	2066	0,35	0,00045

b) Sr-90

Bezeichnung des KKW	Bruttoleistung [MWe]	Zeitraum	abgegebene Aktivität [mCi]	% der gesamten Abwasserabgabe (ohne H-3)	Brutto-Stromerzeugung [GWe]	Lastfaktor	bezogene Aktivitätsabgabe [µCi/MWe]
PWR							
Indian Point I	265	1968 1969	8 2	0,02 0,007	1600 1807	0,69 0,78	0,0050 0,0011
SENA	282 307	1971 1972 1973	13,8 170 100	0,04 1,18 0,88	1930 2140 2150	0,78 0,80 0,80	0,0072 0,080 0,047
KWO	345	1970 1971 1972 1973	0,56 2,61 1,3 13	0,01 0,05 0,03 0,59	2533 2257 2402 2629	0,84 0,75 0,79 0,87	0,00022 0,0012 0,00054 0,0049
KKS	662	1972 1973	0,005 0,28	0,01 0,07	3280 4131	0,56 0,71	0,0000015 0,000067
BWR							
Dresden I	200	1968 1970	30 170	0,49 2,07	970 1429	0,55 0,82	0,031 0,12
VAK	15	1970 1971 1972 1973	0,06 0,70 14,8 4,54	0,10 2,30 46,41 43,85	116 115 a) 50	0,89 0,88 0,38	0,00052 0,0061 0,091
Humboldt Bay	70	1970	10	0,42	430	0,70	0,023
KRB	250	1967 1968 1969 1970 1971 1972 1973	90 20 90 121,5 171 109 70	2,65 0,84 3,0 5,79 5,31 5,46 4,41	1048 1024 1259 1845 1991 1820 1727	0,48 0,47 0,57 0,84 0,91 0,83 0,79	0,086 0,020 0,072 0,066 0,086 0,060 0,041
KWL	180 ^{b)}	1970 1971 1972 1973	0,3 3,58 0,17 0,28	0,14 0,40 0,39 1,23	1008 1011 530 896	0,64 0,64 0,34 0,57	0,00030 0,0035 0,00032 0,00031
KWW	670	1972 ^{c)} 1973	0,042 0,13	0,03 0,03	573 2066	0,098 0,35	0,000073 0,000062

c) Ru-103

Bezeichnung des KKW	Bruttoleistung [MWe]	Zeitraum	abgegebene Aktivität [mCi]	% der gesamten Abwasserabgabe (ohne H-3)	Brutto-Stromerzeugung [GWe]	Lastfaktor	bezogene Aktivitätsabgabe [µCi/MWe]
PWR	345	1970	4,23	0,1	2533	0,84	0,0017
KWO							
KKS							
KKS	662	1973	0,31	0,08	4131	0,71	0,000075
BWR	15	1970	0,0028	0,005	116	0,89	0,000024
VAK							
VAK							
KRB	250	1970	0,30	0,01	1845	0,84	0,00016
		1971	0,74	0,03	1991	0,91	0,00037
		1973	4,0	0,26	1727	0,79	0,0023
KWL	180 ^{b)}	1971	14,1	1,56	1011	0,64	0,014

d) Cs-134

Bezeichnung des KKW	Brutto- leistung $\overline{[MWe]}$	Zeitraum	abgegebene Aktivität $\overline{[mCi]}$	% der gesamten Abwasserabgabe (ohne H-3)	Brutto- Stromerzeugung $\overline{[Gwhe]}$	Last- faktor	bezogene Aktivitätsabgabe $\overline{[\mu Ci/MWhe]}$
PWR							
Indian Point I	265	1969	4000	14,3	1807	0,78	2,21
SENA	282	1971	1650	4,8	1930	0,78	0,85
	307	1972	4230	29,4	2140	0,80	1,98
		1973	3940	34,9	2150	0,80	1,84
KWO	345	1970	268	6,33	2533	0,84	0,11
		1971	471	8,65	2257	0,75	0,21
		1972	660	14,55	2402	0,79	0,27
		1973	330	15,34	2629	0,87	0,13
KKS	662	1972	6,7	2,07	3280	0,56	0,002
		1973	38	10,43	4131	0,71	0,0092
BWR							
Dresden I	200	1968	70	1,15	970	0,55	0,072
		1970	470	5,74	1429	0,82	0,33
VAK	15	1970	0,56	0,95	116	0,89	0,0048
		1971	1,06	3,48	115	0,88	0,0092
		1972	0,18	0,57	a)		
		1973	0,21	1,99	50	0,38	0,0042
Humboldt Bay	70	1970	240	10,0	430	0,70	0,20
KRB	250	1970	19,5	0,93	1845	0,84	0,011
		1971	87,6	2,72	1991	0,91	0,044
		1972	141	7,05	1820	0,83	0,078
		1973	60	3,83	1727	0,79	0,035
KWL	180 ^{b)}	1970	72,7	33,07	1008	0,64	0,072
		1971	108,0	11,94	1011	0,64	0,11
		1972	7,0	15,95	530	0,34	0,013
		1973	1,9	8,34	896	0,57	0,0021
KWW	670	1973	0,060	0,01	2066	0,35	0,000029

e) Cs-137

Bezeichnung des KKW	Bruttoleistung [MWe]	Zeitraum	abgegebene Aktivität [mCi]	% der gesamten Abwasserabgabe (ohne H-3)	Brutto-Stromerzeugung [GWe]	Lastfaktor	bezogene Aktivitätsabgabe [µCi/MWe]
PWR							
Indian Point I	265	1968 1969	2300 6000	6,65 21,4	1600 1807	0,69 0,78	1,44 3,32
SENA	282 307	1971 1972 1973	275 4150 4370	0,8 28,8 38,7	1930 2140 2150	0,78 0,80 0,80	0,14 1,94 2,04
Connecticut Yankee	600	1970	100	1,5	3700	0,70	0,027
KWO	345	1970 1971 1972 1973	369 670 1270 480	8,72 12,30 27,75 22,26	2533 2257 2402 2629	0,84 0,75 0,79 0,87	0,15 0,30 0,53 0,18
KKS	662	1972 1973	22,8 145	7,07 39,22	3280 4131	0,56 0,71	0,0070 0,035
BWR							
Dresden I	200	1968 1970	200 1250	3,29 15,2	970 1429	0,55 0,82	0,21 0,87
VAK	15	1970 1971 1972 1973	2,52 14,8 9,32 2,3	4,29 48,80 29,16 22,22	116 115 a) 50	0,89 0,88 0,38	0,022 0,13 0,046
Humboldt Bay	70	1970	840	35,0	430	0,70	1,96
KRB	250	1967 1968 1969 1970 1971 1972 1973	600 700 220 33,2 133,0 247 105	17,6 29,2 7,33 1,59 4,13 12,39 6,63	1048 1024 1259 1845 1991 1820 1727	0,48 0,47 0,57 0,84 0,91 0,83 0,79	0,57 0,68 0,17 0,018 0,067 0,14 0,061
KWL	180 ^{b)}	1970 1971 1972 1973	106,0 164,0 15 5,0	48,36 18,15 33,54 22,38	1008 1011 530 896	0,64 0,64 0,34 0,57	0,11 0,16 0,028 0,0056
KWW	670	1973	1,3	0,29	2066	0,35	0,00063

f) Ce-141

Bezeichnung des KKW	Bruttoleistung [$\overline{\text{MWe}}$]	Zeitraum	abgegebene Aktivität [$\overline{\mu\text{Ci}}$]	% der gesamten Abwasserabgabe (ohne H-3)	Brutto-Stromerzeugung [$\overline{\text{Gwhe}}$]	Lastfaktor	bezogene Aktivitätsabgabe [$\overline{\mu\text{Ci/MWhe}}$]
PWR							
KWO	345	1970	5,96	0,15	2533	0,84	0,0024
		1971	47,6	0,88	2257	0,75	0,021
		1973	63	2,91	2629	0,87	0,024
KKS	662	1973	0,27	0,07	4131	0,71	0,000065
BWR							
VAK	15	1971	0,14	0,47	115	0,88	0,0012
KRB	250	1970	2,32	0,11	1845	0,84	0,0013
		1972	1,5	0,08	1820	0,83	0,00082
		1973	12	0,76	1727	0,79	0,0069
KWL	180 ^{b)}	1971	9,85	1,09	1011	0,64	0,0010
		1972	1,7	3,77	530	0,34	0,0032
KWW	670	1972 ^{c)}	2,5	1,34	573	0,098	0,0044

g) Ce-144

Bezeichnung des KKW	Bruttoleistung [MWe]	Zeitraum	abgegebene Aktivität [mCi]	% der gesamten Abwasserabgabe (ohne H-3)	Brutto-Stromerzeugung [GWe]	Lastfaktor	bezogene Aktivitätsabgabe [µCi/MWe]
PWR							
SENA	307	1973	1830	16,2	2150	0,80	0,85
KWO	345	1970 1971 1973	7,05 1,26 40	0,17 0,03 1,83	2533 2257 2629	0,84 0,75 0,87	0,0028 0,00056 0,015
KKS	662	1972 1973	14,2 0,49	4,40 0,13	3280 4131	0,56 0,71	0,0043 0,00012
BWR							
Dresden I	200	1968 1970	60 90	0,98 1,10	970 1429	0,55 0,82	0,062 0,063
VAK	15	1970 1971 1972 1973	0,016 0,10 0,95 0,072	0,03 0,33 2,98 0,69	116 115 a) 50	0,89 0,88 0,38	0,00014 0,00087 0,0014
KRB	250	1970 1971 1972 1973	0,74 0,72 8,0 19	0,04 0,03 0,41 1,19	1845 1991 1820 1727	0,84 0,91 0,83 0,79	0,00040 0,00036 0,0044 0,011
KWL	180 ^{b)}	1970 1971 1972 1973	3,93 77,2 2,9 3,4	1,79 8,53 6,58 15,10	1008 1011 530 896	0,64 0,64 0,34 0,57	0,0039 0,076 0,0055 0,0038
KWW	670	1972 ^{c)}	1,2	0,62	573	0,098	0,0021

Der relativ hohe Anteil von Radiostrontium an der Gesamtaktivität beim KRB ist auf das dort benutzte Abwasser-Aufbereitungsverfahren (Fällungs-Flockungs-Verfahren) zurückzuführen, an dessen Verbesserung gearbeitet wird /65/. Jeder aufzubereitenden Wassercharge werden dort Strontiumträger und Strontiumfällungsmittel zugesetzt /130/, bisher konnten aber noch keine befriedigenden Ergebnisse erzielt werden.

In Tabelle 6-12 wurde versucht, sog. "typische" jährliche Aktivitätsabgaben eines 1000 MWe-LWR mit dem Abwasser zusammenzustellen. Derartige typische Abgaberaten werden benötigt als Eingangsdaten für vorausschauende Studien zur radiologischen Belastung. Die in Tabelle 6-12 genannten Aktivitätsabgabewerte wurden abgeschätzt aufgrund der Erfahrungswerte von bereits in Betrieb befindlichen Anlagen (vgl. Tab. 6-11). Dabei wurde berücksichtigt, daß

- 1) Daten von zu kleinen Anlagen (< ca. 150 MWe) nicht herangezogen werden sollten, da die Extrapolation auf 1000 MWe-Anlagen zu gewagt ist;
- 2) zu alte Anlagen (vor ca. 1965 in Betrieb gegangen) ebenfalls unberücksichtigt bleiben sollten, da neuere Anlagen mit erheblichen Verbesserungen ausgestattet wurden;
- 3) Daten von gerade in Betrieb genommenen Anlagen nur mit Vorbehalt verwendet werden können, da bei diesen
 - a) die Brennelementhüllen größtenteils noch unbeschädigt sind und
 - b) das Aktivitätsinventar der langlebigen Spaltprodukte noch nicht erreicht ist; dies ist erst nach einigen Jahren der Fall.

Um eine qualitative Information zum Gefährdungspotential zu bekommen, wurden die Abgabewerte durch die zugehörigen MZK-Werte der Nuklide (vgl. Tab. 3-4) dividiert und die Werte auf Sr-90=100 normiert. Sr-90, Cs-134, Cs-137 und Sr-89 besitzen das größte Gefährdungspotential (vgl. Tab. 6-12). In den MZK-Werten sind physikalische und biologische Halbwertszeit, Zerfallsenergie und Anreicherung in bestimmten Organen berücksichtigt; Transportvorgänge und Anreicherungs-möglichkeiten in Nahrungsmitteln jedoch nicht.

Tabelle 6-12 Durchschnittliche jährliche Aktivitätsabgaben eines modernen 1000 MWe-LWR mit dem Abwasser (Lastfaktor = 0,8)

Nuklid	Aktivitätsabgabe* $\langle \bar{mCi/a} \rangle$	relative Gefährlichkeit $\left(\frac{\text{Aktivitätsabgabe}}{\text{MZK}_{\text{Wasser}}\text{-Wert}} \right)^{**}$
Sr-89	500	10
Sr-90	50	100
Ru-103	20	0,05
Ru-106	10	0,2
Cs-134	2500	56
Cs-135	0,06	0,0001
Cs-137	4000	40
Ce-141	30	0,067
Ce-144	100	2

* abgeschätzt aufgrund des Zahlenmaterials aus Tab.6-11; die Zahlen geben die Größenordnung an, sie sind als Mittelwerte mit der Bandbreite $\frac{1}{10} A_i$ bis $10 A_i$ zu betrachten (A_i = jährliche Aktivitätsabgabe des Nuklides i)

** bezogen auf Sr-90 = 100

Abgaben mit der Abluft

Sämtliche erfaßten Nuklide können außer mit dem Abwasser auch mit der Abluft als sogenannte "Aerosole" (vgl. dazu Abschnitt 10.1) aus KKW freigesetzt werden. In fester Form vorliegende Nuklide gelangen entweder direkt oder als Folgeprodukte von Spalteredelgasen über geringfügige Dampf- und Wasserleckagen - insbesondere aus dem Primärkreislauf - in die Raumluft des Reaktors /118,149,150/. Zur Bildung von Aerosolen kommt es außerdem im Entgasungssystem des Reaktors /151/, durch Arbeiten an kontaminierten Anlagenkomponenten, Dekontararbeiten, Ablösen von kontaminierten Oberflächen und Verspritzen von kontaminiertem Wasser bei Arbeiten am Brennelementlagerbecken /118/. Die feinen Staubteilchen, deren Korngrößenverteilung nicht genau bekannt ist /152,153/, gelangen in das Abluftsystem der Anlage. Nach Angaben von Lindner /151/ werden mit HEPA-Filtern (high efficiency particulate air filters) 99,99% der Partikel von 1 µm Durchmesser zurückgehalten und praktisch alle Partikel mit einem Durchmesser von mehr als 5 µm. Die Rückhaltung der größeren Teilchen erfolgt durch Trägheitskräfte, für kleinere Partikel sind Diffusionseffekte entscheidend.

Die Aktivitätskonzentration der Aerosole ist hinter den Filtern so gering, daß sie nur durch Anreicherung auf einem Filter nachgewiesen werden können /69,71,154/. Der Teil der Aerosole, der die Filter passiert, wird über den Schornstein an die Atmosphäre abgegeben. Strontium wird als SrO freigesetzt, Ruthenium in metallischem Zustand oder als RuO₂, Cäsium als Hydroxid (CsOH) und Cer als Ce₂O /50/.

Daten über die Abgabe der Gesamt-Aerosolaktivität liegen von den meisten LWR vor, Einzelnuklidmessungen jedoch nur sehr vereinzelt. Dies ist auf die Schwierigkeiten bei der Messung der geringen Mengen (vgl. Abschnitt 3-2) zurückzuführen. Die jährlichen Aktivitätsabgaben der LWR Yankee und Dresden I mit der Abluft (vgl. Tab. 6-13) sind wesentlich niedriger als die für das Abwasser ermittelten Werte (vgl. Tab.6-12),

was allgemein gilt. Die in dieser Arbeit erfaßten Nuklide konnten im KWO wegen ihrer geringen Konzentration nicht mehr nachgewiesen werden /150/. Im KRB beträgt die durchschnittliche Abgaberate dieser Nuklide ungefähr 10^{-4} $\mu\text{Ci}/\text{sec}$, was einer Abgabe von etwa 3 mCi/a entspricht. Eine spektrometrische Trennung der Nuklide ist bei dieser Konzentration mit betrieblichen Mitteln nicht mehr möglich /156/. Als Aerosole werden überwiegend die kurzlebigen Nuklide Cs-138 ($T_{1/2} = 32,3$ m) und Rb-88 ($T_{1/2} = 17,8$ m) gemessen, die als Folgeprodukte aus den Edelgasen Xenon (Xe-138) und Krypton (Kr-88) entstehen. Innerhalb eines KKW können diese Aerosolaktivitäten zu einer beschränkten Begehrbarkeit der Anlage führen /127,157/. Die mit dem Abgas freigesetzte Aktivität an Xe-135 beträgt für einen PWR etwa 120 Ci/a, für einen BWR etwa 250 Ci/a /158/. Daraus ergibt sich wegen der Umwandlung eine indirekte Aktivitätsfreisetzung von Cs-135 (direkter Nachfolger von Xe-135) zu etwa 0,06 $\mu\text{Ci}/\text{a}$ beim PWR und zu etwa 0,1 $\mu\text{Ci}/\text{a}$ beim BWR.

Tabelle 6-13 Aktivitätsabgaberraten verschiedener Leichtwasserreaktoren mit der Abluft /155/

Bezeichnung des KKW	Bruttoleistung $[\overline{\text{MWe}}]$	abgegebene Aktivität $[\overline{\text{mCi/a}}]^*$		
		Sr-89	Sr-90	Cs-137
PWR	174	0,04	0,2	0,0002
Yankee				
BWR	200	10	0,06	0,4
Dresden I				

* mittlere Jahresemissionswerte

Nach den vorliegenden Informationen ist die Abgabe der hier aufgeführten Nuklide mit der Abluft nur gering im Vergleich

zu den Aktivitätsabgaben mit dem Abwasser. In Tabelle 6-14 sind die jährlichen Abgaberraten eines 1000 MWe-LWR mit der Abluft zusammengestellt. Hierbei handelt es sich um eine grobe Abschätzung, die Zahlen sind als Größenordnung zu verstehen. Bei den genannten Werten wurde zum Teil auf die Angaben des Berichtes WASH-1209 /2/ zurückgegriffen.

Tabelle 6-14 Durchschnittliche jährliche Aktivitätsabgaben eines 1000 MWe-LWR mit der Abluft
(Lastfaktor = 0,8)

Nuklid	Aktivitätsabgabe* $\overline{[mCi/a]}$	relative Gefährlichkeit $\left(\frac{\text{Aktivitätsabgabe}}{\text{MZK}_{\text{Luft}}\text{-Wert}}\right)^{**}$
Sr-89	10	10
Sr-90	1	100
Ru-103	2	0,67
Ru-106	1	5
Cs-134	4	10
Cs-135	0,0001	0,00003
Cs-137	7	14
Ce-141	0,3	0,06
Ce-144	1	5

* die Zahlen geben die Größenordnung an, sie sind als Mittelwerte mit der Bandbreite $\frac{1}{10} A_1$ bis $10 A_1$ zu betrachten (A_1 = jährliche Aktivitätsabgabe des Nuklides i)

** bezogen auf Sr-90 = 100

6.3.2 Schwerwasserreaktoren (HWR)

Die Schwerwasserreaktoren sind den LWR in bezug auf Aktivitätsfreisetzungen von Spaltprodukten ähnlich. Beim PHWR Douglas Point (203 MWe, Canada) wurde im ersten Halbjahr 1971 eine Einzelnuclidanalyse des Abwassers durchgeführt, die von Barry und Marko /159/ als typisch angesehen wird. Aufgrund der dabei ermittelten Anteile der Nuklide an der Gesamtaktivitätsabgabe wurden die Einzelnuclidabgaben des Douglas Point für 1968 bis 1970 berechnet (vgl. Tab. 6-15). Das in Tabelle 6-15 ebenfalls aufgeführte KKW Gentilly war 1973 außer Betrieb. Aus diesen Werten lassen sich keine allgemeingültigen Freisetzungsraten für HWR angeben. Über Einzelnuclidabgaben von HWR mit der Abluft liegen keine Meßergebnisse vor.

6.3.3 Gasgekühlte Reaktoren (GCR)

Die Aktivitätsabgaben durch die 3 gasgekühlten Reaktortypen werden im folgenden kurz erläutert.

a) Magnox-Reaktoren

Magnox-Reaktoren wurden fast ausschließlich in England gebaut, seit 1972 wurde die Herstellung aus wirtschaftlichen Gründen eingestellt. Die über die Abwasser-Aktivitätsabgaben von Magnox-Reaktoren verfügbaren Einzelnuclidaten sind in Tabelle 6-16 zusammengefaßt. Aus diesen Werten wurden die jährlichen Einzelnuclidabgaben eines 1000 MWe-Reaktors (Lastfaktor = 0,8) abgeschätzt (vgl. Tab. 6-17). Die Abgaben eines 1000 MWe-Magnox-Reaktors sind um ein bis zwei Größenordnungen höher als diejenigen eines LWR von der gleichen Größenordnung (vgl. Tab. 6-12).

Der bei weitem größte Anteil an der Aktivitätsabgabe mit dem Abwasser stammt bei fast allen Magnox-Reaktoren aus dem Brennelementlagerbecken für verbrauchte Brennelemente. Zwecks Abklingen der Radioaktivität werden die Brennelemente dort eine

Tabelle 6-15 Aktivitätsabgaberraten von Schwerwasserreaktoren mit dem Abwasser
/135,159,160,161/

Bezeichnung des KKW	Brutto- leistung $\overline{[MWe]}$	Zeitraum	abgegebene Aktivität $\overline{[mCi]}$ a)				Last- faktor
			Sr-89	Sr-90	Cs-134	Cs-137	
Douglas Point	203	1968	< 0,05	< 2,7	1100	3200	> 0,42 b)
		1969	< 0,1	< 6,0	2400	7000	0,24
		1970	< 0,2	<10,6	4200	12300 ^{c)}	0,51
Gentilly	266	1973			100	520	außer Betrieb

a) Die Aktivitätsabgaben für Douglas Point wurden aufgrund der Nuklidzusammensetzung des Abwassers im ersten Halbjahr 1971 berechnet, die als typisch angesehen wird /159/:

Cs-137 58%
Cs-134 20%
Sr-90 < 0,05%
Sr-89 < 0,001%

b) Daten über die Stromerzeugung im August 1968 waren nicht verfügbar.

c) \approx 25000 mCi nach Barry /162/

Tabelle 6-16 Aktivitätsabgaberraten von gasgekühlten Magnox-Reaktoren mit dem Abwasser
/13,22,135,163,164/

Bezeichnung des KKW (Bruttoleistung)	Zeitraum	abgegebene Aktivität $\overline{[mCi]}$						Brutto- Stromerzeugung $\overline{[GWhe]}$	Last- faktor		
		Sr-89	Sr-90 + Y-90	Ru-106 +Rh-106	Cs-134	Cs-137	Ce-144 +Pr-144				
Berkeley (334 MWe)	1969	2400 (0,94)*	4200 (1,65)		9700 (3,81)	32000 (12,55)	6400 (2,51)	2549	0,87		
Bradwell (374 MWe)	1966		30	6	30	130	24	2497	0,76		
	1969				22000 (8,81)	65000 (26,03)					
	1970		1500 (0,83)	1000 (0,55)	5200 (2,87)	15000 (8,26)	4000 (2,20)			1816	0,55
	1972		3400 (1,48)	1600 (0,70)	2100 (0,92)	8900 (3,88)	2700 (1,18)			2295	0,70
Hinkley Point A (664 MWe)	1969		13000 (3,39)		35000 (9,13)	130000 (33,91)		3834	0,66		
Trawsfynydd (585 MWe)	1969		1900 (0,57)		39 (0,012)	430 (0,13)		3357	0,65		
	1970		580 (0,17)		230 (0,068)	930 (0,27)		3401	0,66		
	1971		320 (0,094)		810 (0,24)	3410 (1,0)		3399	0,66		
	1972		1550 (0,49)		1060 (0,34)	4160 (1,31)		3164	0,62		
Dungeness A (577 MWe)	1969		4900 (1,29)		20000 (5,25)			3810	0,75		

* in Klammern jeweils die Aktivitätsabgabe pro Stromerzeugung $\overline{[\mu Ci/MWhe]}$

Tabelle 6-17 Durchschnittliche jährliche Aktivitätsabgaben eines 1000 MWe-Magnox-Reaktors mit dem Abwasser
(Lastfaktor = 0,8)

Nuklid	Aktivitätsabgabe * [mCi/a]
Sr-89	7000
Sr-90	5000
Ru-103	2000
Ru-106	500
Cs-134	40000
Cs-135	2
Cs-137	120000
Ce-141	4000
Ce-144	5000

* abgeschätzt aufgrund des Zahlenmaterials aus Tabelle 6-16; die Zahlen geben die Größenordnung an

Zeit lang aufbewahrt, bevor sie zur Wiederaufarbeitung kommen. Das Wasser dieser Brennelementlagerbecken wird durch einen regenerierenden Ionenaustauscher gepumpt. Für die Behandlung von Abwässern ist Filtration in England gewöhnlich das einzige Verfahren, das gefordert wird. Danach erfolgt die Abgabe an die Umgebung. Das KKW Trawsfynydd, das seine Abwässer im Gegensatz zu den anderen englischen Reaktoren in einen Süßwassersee einleitet, ist in der Abwasserreinigung mit nicht regenerierbaren Ionenaustauscherbetten ausgestattet /160/. Dadurch lassen sich die niedrigen Aktivitätsabgaben dieser Anlage (vgl. Tab. 6-16) erklären. Die Aktivitätskonzentrationen der Cäsiumisotope sind bei den Magnox-Reaktoren so hoch, daß entsprechende Ionenaustauscher oder andere Abwasseraufbereitungsverfahren speziell für diese Isotope zu fordern wären. Bei einigen Reaktoren wird die Cäsiumaktivität dadurch herabgesetzt, daß man das Abwasser durch bestimmte Harze pumpt /165/.

Über Abgaben mit der Abluft von Magnox-Reaktoren liegen keine Meßergebnisse vor. Nach Angaben der IAEA /160/ bestehen die Aerosolabgaben hauptsächlich aus den Aktivierungsprodukten Co-60 und Fe-59.

b) Fortgeschrittene gasgekühlte Reaktoren (AGR)

Über Aktivitätsabgaben durch AGR lassen sich keine Angaben machen, da der erste Reaktor dieses Typs erst in diesem Jahr (1974) seinen Betrieb aufnimmt. Nach Schätzungen von Beattie /166/ soll die jährliche Cs-137-Abgabe eines 2000 MW_{th}-AGR durch Gasleckage etwa 0,2 mCi betragen.

c) Hochtemperaturreaktoren (HTGR)

Bisher sind nur HTGR-Versuchsanlagen in Betrieb, der erste kommerzielle HTGR (Fort St. Vrain) wurde vor kurzem kritisch (Februar 1974) /167/. Daher muß auf Sicherheitsberichte bzw. Abschätzungen zurückgegriffen werden.

Der THTR-300 verwendet ebenso wie Fort St. Vrain doppelt PyC-beschichtete Brennstoffteilchen /121/. Bei intakten Brennelementen soll die Aktivität des Kühlgases an Sr-89, Sr-90, Cs-137 und Ce-141 jeweils weniger als 1 mCi betragen. Cäsium soll vom Brennstoff gut zurückgehalten werden, so daß seine Austrittsrate durch die Urankontamination der Matrix verursacht wird. Strontium diffundiert leicht durch die Hülle, für seine Austrittsrate ist das Rückhaltevermögen des Graphits bestimmend.

Über den Kamin sollen vom THTR-300 höchstens 10^{-3} mCi/a an Sr-90 und Cs-137 abgegeben werden /168/. Beattie /166/ schätzt die jährliche Abgaberate eines 2000 MW_{th}-HTGR an Cs-137 durch Gasleckage auf etwa 1,5 mCi. Die Abgabe an "Feststoffen" mit dem Abwasser soll beim THTR-300 höchstens 500 mCi/a betragen /168/.

6.3.4 Schnelle Natriumgekühlte Brutreaktoren (LMFBR)

Dieser Reaktortyp arbeitet mit 2 Natriumkreisläufen und einem Dampfkreislauf. Ein Transport von evt. aus den Brennelementen freigesetzten Spaltprodukten bis in den Tertiärkreislauf kann ausgeschlossen werden /169/. Radioaktive Abwässer fallen in LMFBR an in Form von Na-Wasch- und Dekontabwässern, Sumpfabwässern sowie Dusch- und Waschabwässern /170/. Die Zahl der defekten Brennstäbe wird wie bei LWR zu 1% angenommen. Aufgrund des wesentlich höheren Abbrandes bei LMFBR dürften mehr Spaltprodukte ins Kühlmittel gelangen. Im folgenden wird kurz auf das Verhalten der einzelnen Nuklide im Na-Kühlkreislauf eingegangen.

Durch Leckage aus den Brennelementen austretende Spaltprodukte treffen auf ca. 400 °C heißes Natrium /169/. Im Natrium ist in einer Konzentration von wenigen ppm Sauerstoff in Form von Na₂O vorhanden /171/. Daher kann es zur Bildung von Oxiden kommen. Cäsium liegt im Natrium in elementarem Zustand in äußerst flüchtiger Form vor oder als komplexes Oxid /172,173/.

In Oxidform kann es sich an den Rohrwänden niederschlagen /174/, in flüchtigem Zustand wandert es durch Natrium. Strontium ist kaum flüchtig /175/, ebenso wie Cer bildet es ein stabiles, wenig lösliches Oxid /172,176/. Cer soll in nichtflüchtiger Form vorliegen /175/, Ruthenium wahrscheinlich elementar /172/. Nach Angaben von Zwetzig /177/ ist bei einer Spaltproduktfreisetzung damit zu rechnen, daß die in dieser Arbeit erfaßten Nuklide an den Rohrleitungen adsorbiert werden. Ein großer Cäsiumanteil verbleibt aufgrund der Flüchtigkeit im Natrium. Das im Primärkreis umlaufende Natrium wird ständig durch sogenannte Kühlfallen gepumpt, welche Fremdstoffe abscheiden /169/. Ein Teil des Cäsiums wird auf diese Weise aus dem Kühlmittel entfernt /172,175/.

Die Cäsiumaktivität kann einen erheblichen Anteil zur Gesamtaktivität des Kühlmittels beitragen. Im BR-5 betrug die Cs-137-Aktivität nach 3% Abbrand der Brennelemente 20% der Na-22-Aktivität. Nach 5% Abbrand war die Cs-137-Aktivität um das 200-fache angestiegen /178/. Einen Überblick über Aktivitäten im Primärkreislauf des SNR-300 gibt Tabelle 6-18. Die aufgeführten Daten wurden dem Sicherheitsbericht /179/ entnommen. Die Freisetzungsfaktoren sind als konservativ zu betrachten. Zahlenmaterial über die Aktivitätsabgaben von LMFBR liegt nicht vor. Die im Bericht WASH-1209 /2/ abgeschätzten Aerosolabgaben eines 1000 MWe-LMFBR sind in Tabelle 6-19 zusammengestellt. Radioaktive Abwässer sollen nicht an die Umgebung abgegeben werden.

Tabelle 6-18 Aktivitäten im Kühlmittel und Schutzgas des SNR-300 /179/

Nuklid	Freisetzung ins Kühlmittel $[\bar{x}]$	spezifische Kühlmittelaktivität $[\bar{Ci}/\bar{t}]$	spezifische Schutzgasaktivität $[\bar{Ci}/m^3]$
Sr-89	0,1	$7,4 \cdot 10^{-2}$	$8,4 \cdot 10^{-9}$
Sr-90	0,1	$2,4 \cdot 10^{-3}$	$2,6 \cdot 10^{-10}$
Ru-103	0,1	$2,4 \cdot 10^{-1}$	
Ru-106	0,1	$9,7 \cdot 10^{-2}$	
Cs-134	10	$2,4 \cdot 10^{-2}$	$1,7 \cdot 10^{-5}$
Cs-137	25	3,5	$2,5 \cdot 10^{-3}$
Ce-141	0,1	$8,7 \cdot 10^{-2}$	
Ce-144	0,1	$9,1 \cdot 10^{-2}$	

Tabelle 6-19 Durchschnittliche jährliche Aktivitätsabgaben eines 1000 MWe-LMFBR mit der Abluft /2/

Nuklid	Aktivitätsabgabe* $[\bar{mCi}/\bar{a}]$
Sr-89	6
Sr-90	0,1
Ru-103	50
Ru-106	30
Cs-134	800
Cs-137	900

* gerundete Werte

7. Aktivitätsfreisetzung durch Wiederaufarbeitungsanlagen

(WAA)

Vor der Wiederaufarbeitung der Brennstäbe erfolgt eine vorübergehende Lagerung in Wasserbecken, um die Aktivität der kurzlebigen Nuklide weitgehend abklingen zu lassen. Bisher wurde nur relativ wenig Brennstoff aufgearbeitet, es waren Zwischenlagerungszeiten von einem Jahr und länger üblich. In Zukunft wird man von kürzeren Abklingzeiten ausgehen müssen.

7.1 Wiederaufarbeitung und Aktivitätsfluß

In den Wiederaufarbeitungsanlagen werden die Spaltprodukte vom Brennstoff abgetrennt. Dies geschieht bei LWR-, LMFBR- und AGR-Brennstoff nach dem Purex-Prozeß. Die Brennstäbe werden zunächst in kurze Stücke zerteilt und in Salpetersäure (HNO_3) aufgelöst, wonach eine mehrstufige Gegenstromextraktion mittels Tributylphosphat (TBP) erfolgt /180/. Bei den einzelnen Prozeßschritten zeigen die Nuklide unterschiedliches Verhalten.

Das Extraktionsverhalten des Ruthenium verursacht sehr große Schwierigkeiten /181,182/, da eine Vielzahl von Rutheniumverbindungen mit sehr verschiedenen Verteilungskoeffizienten entsteht und das Verhältnis, in dem diese Verbindungen gebildet werden, selbst bei ein und demselben Lösungsprozeß sehr starken Schwankungen unterworfen sein kann /183/. Von HNO_3 wird Ruthenium zu RuO_4 oxidiert.

Cer ist im allgemeinen gut extrahierbar. Strontium und Cäsium werden unter normalen Bedingungen der Brennstoffaufarbeitung nicht extrahiert /183/. Die Entfernung des

langlebigen Nuklides Sr-90 kann mit Phosphatfällung, diejenige von Cs-137 mit Ferrozyanidfällung erfolgen. Diese Fällungen führen zur Bildung von Mischkristallen. Der entstehende Schlamm wird durch Filtration, Zentrifugieren oder Absetzen entfernt und in Trockenbeeten getrocknet. Der Rückstand wird in Fässern abgefüllt, evt. wird er vorher fixiert /184/. Bei der Wiederaufarbeitung der coated particle-Kernbrennstoffe (Thorex-Prozeß) wird zunächst der Graphit verbrannt. Die anschließenden Verfahrensschritte verlaufen wie beim Purex-Prozeß.

Von den im Brennstoff erzeugten Spaltprodukten wird während der Standzeit im Reaktor nur ein relativ geringer Anteil freigesetzt. Daher kommt nahezu die gesamte erzeugte Menge zur Wiederaufarbeitung. Die pro Tonne Brennstoff nach einer Kühlzeit τ vorhandene Aktivität eines Nuklides i läßt sich nach Beziehung (7-1) berechnen:

$$A_i = 8,4 \cdot 10^5 y_i q (1 - e^{-\lambda_i t}) e^{-\lambda_i \tau} \quad (7-1)$$

$8,4 \cdot 10^5$, y_i , λ_i : siehe Gleichung (6-1),
Seite 40

$q \left[\frac{-MW}{t} \right]$ = mittlere spezifische Belastung des Brennstoffes

$t \left[d \right]$ = Bestrahlungszeit im Reaktor

$\tau \left[d \right]$ = Kühlzeit des bestrahlten Brennstoffes bis zur Wiederaufarbeitung

Unter Zugrundelegung der Daten verschiedener 1000 MWe-Reaktoren (vgl. Tabelle 7-1) wurde nach Gleichung (7-1) das pro t Brennstoff vorhandene Aktivitätsinventar der Nuklide bei Entnahme aus dem Reaktor ($\tau=0$) berechnet (vgl. Tab. 7-2). In Tabelle 7-3 ist das Abklingen der Aktivität der kurzlebigeren Nuklide bei einer Zwischenlagerung vor der Wiederaufarbeitung dargestellt. Für die Aktivitätsabgaben von WAA ist der De-

kontaminationsfaktor (DF = mit dem Brennstoff eingebrachte Aktivität eines Nuklides/abgegebene Aktivität) entscheidend. Auf theoretisch mögliche und in der Praxis erzielte DF wird im folgenden Abschnitt eingegangen.

Tabelle 7-1 Daten verschiedener 1000 MWe-Reaktoren /185,186/
(Lastfaktor α jeweils 0,8)

Reaktortyp	Brennstoff- ladung	Brennstoff- belastung	Abbrand	Bestrahlungs- zeit im Reak- tor	pro Jahr auf- zuarbeitende Brennstoff- menge
	$\left[\frac{t}{t} \right]$	$q \left[\frac{-MW}{t} \right]$	$A \left[\frac{-MWd}{t} \right]$	$t \left[\frac{a}{a} \right]^*$	$\left[\frac{-t}{a} \right] 1000 \text{ MWe}$
LWR	130 UO ₂	25	26000	3,56	36,5
PHWR	146 UO ₂	25,1	7000	0,954	153
Magnox	500 U _{met}	3,2	3100	3,3	152
AGR	308 UO ₂	7,84	18000	7,86	39,2
HTGR	29 UC ₂	85	110000	4,43	6,57
LMFBR**	46,6 (U+Pu)O ₂	58,2	33000	1,94	24

$$* \quad t = \frac{A}{\alpha q 365,25}$$

** Für den LMFBR wurde eine gemeinsame Core-Blanket-Aufarbeitung des 1000 MWe-LMFBR der Referenzstudie von Atomics International mit einem U/Pu-Aufarbeitungsverhältnis von 1,25 nach den Berechnungen in ORNL-4451 /186/ angenommen.

Tabelle 7-2 Aktivität $\langle \bar{C}_i \rangle$ je t Brennstoff für verschiedene 1000 MWe-Reaktortypen auf der Grundlage von Tabelle 7-1 (bei Entnahme aus dem Reaktor, $\tau=0$)

Nuklid	LWR	PHWR	Magnox	AGR	HTGR	LMFBR
Sr-89	$1,0 \cdot 10^6$	$9,95 \cdot 10^5$	$1,28 \cdot 10^5$	$3,14 \cdot 10^5$	$3,40 \cdot 10^6$	$9,6 \cdot 10^5$
Sr-90	$1,03 \cdot 10^5$	$2,85 \cdot 10^4$	$1,22 \cdot 10^4$	$6,76 \cdot 10^4$	$4,53 \cdot 10^5$	$4,34 \cdot 10^4$
Ru-103	$6,3 \cdot 10^5$	$6,31 \cdot 10^5$	$8,0 \cdot 10^4$	$1,98 \cdot 10^5$	$2,14 \cdot 10^6$	$2,99 \cdot 10^6$
Ru-106	$7,67 \cdot 10^4$	$4,07 \cdot 10^4$	$9,6 \cdot 10^3$	$2,62 \cdot 10^4$	$2,72 \cdot 10^5$	$1,36 \cdot 10^6$
Cs-134	$1,0 \cdot 10^5$	$1,0 \cdot 10^4$	$2,0 \cdot 10^4$	$2,7 \cdot 10^5$	$5,0 \cdot 10^5$	$2,98 \cdot 10^4$
Cs-135	1,5	0,4	0,2	1,0	7,2	1,17
Cs-137	$1,03 \cdot 10^5$	$2,84 \cdot 10^4$	$1,22 \cdot 10^4$	$6,76 \cdot 10^4$	$4,30 \cdot 10^5$	$1,09 \cdot 10^5$
Ce-141	$1,28 \cdot 10^6$	$1,29 \cdot 10^6$	$1,64 \cdot 10^5$	$4,02 \cdot 10^5$	$4,36 \cdot 10^6$	$2,81 \cdot 10^6$
Ce-144	$1,09 \cdot 10^6$	$6,54 \cdot 10^5$	$1,38 \cdot 10^5$	$3,55 \cdot 10^5$	$3,78 \cdot 10^6$	$1,38 \cdot 10^6$

Tabelle 7-3 Aktivitäts-Abklingfaktoren* für Kühlzeiten von 30 bis 180 Tagen

Nuklid	Kühlzeit τ [\bar{d}]					
	30	60	90	120	150	180
Sr-89	0,662	0,439	0,290	0,193	0,128	0,085
Ru-103	0,590	0,348	0,206	0,122	0,072	0,042
Ru-106	0,945	0,892	0,843	0,796	0,752	0,710
Cs-134	0,973	0,946	0,920	0,895	0,870	0,846
Ce-141	0,528	0,278	0,146	0,077	0,041	0,021
Ce-144	0,929	0,864	0,803	0,746	0,694	0,644

* Das Abklingen von Sr-90, Cs-135 und Cs-137 ist vernachlässigbar.

7.2 Aktivitätsabgaben und Dekontaminationsfaktoren von Wiederaufarbeitungsanlagen

Abgaben mit dem Abwasser

Die über Aktivitätsabgaben von WAA mit dem Abwasser vorliegenden Daten sind in Tabelle 7-4 zusammengestellt. Die Abgaben variieren von WAA zu WAA erheblich. Dies ist auf verschiedene Bauarten und unterschiedliche Durchsätze der Anlagen zurückzuführen.

NFS (Nuclear Fuel Service)

Von der Wiederaufarbeitungsanlage NFS (USA) sind genauere Daten über den aufzuarbeitenden LWR-Brennstoff bekannt. Die Aktivität pro t Brennstoff beträgt dort nach einem Abbrand von 33000 MWd/t, einer spezifischen Brennstoffbelastung von 30 MW/t und einer Kühlzeit von 180 Tagen /15/:

Sr-89	65000 Ci/t
Sr-90	76600 Ci/t
Ru-103	52200 Ci/t
Cs-134	209000 Ci/t
Cs-137	107000 Ci/t

Für Sr-90 sind außerdem die jährlich insgesamt mit dem Brennstoff in die WAA eingebrachten Aktivitätsmengen bekannt (vgl. Tab. 7-4). Daraus läßt sich der Dekontaminationsfaktor während der bisherigen Betriebszeit der NFS berechnen. Er betrug im Mittel $2,6 \cdot 10^5$ für Sr-90. Die DF der übrigen Nuklide lassen sich ebenfalls abschätzen. Diesen als konservativ zu betrachtenden Werten sind in Tabelle 7-5 einige im Bericht WASH-1209 /2/ genannte gegenübergestellt. Die im Bericht WASH-1209 angegebenen DF sind beim Purex-Prozeß theoretisch möglich, werden in der Praxis jedoch offensichtlich um 1 bis 3 Größenordnungen unterschritten. Ruthenium läßt sich zur Zeit am schlechtesten dekontaminieren. Aufgrund der jährlich an Sr-90 in die NFS

Tabelle 7-4 Aktivitätsabgaben von WAA mit dem Abwasser
/13,18,19,22,164,187,188,189,190,191,192,193,194,195/

Bezeichnung der WAA (Kapazität)	Zeitraum	abgegebene Aktivität [\bar{C}_i/a]						
		Sr-89	Sr-90	Ru-103	Ru-106	Cs-134	Cs-137	Ce-144
NFS (900 t/a)	1966 -1971		41,0		250	50**		
	1967		4,4 (2,3·10 ⁶)*					
	1968		5,0 (1,3·10 ⁶)					
	1969		10,1 (2,1·10 ⁶)		104	4	16	0,32
	1970		14,2 (1,2·10 ⁶)					
	1971		6,6 (1,5·10 ⁶)					
	1972		2,2					
Windscale (1800 t/a) ***	1960	980	520	11600	39600		910	890
	1961	1370	490	3200	25300		1100	2200
	1962	500	1020	1800	23000		1100	2400
	1963	170	550	9600	33400		370	1400
	1964	190	970	1200	23100		1300	3200
	1965	170	1160	1800	21000		1200	3500
	1966	90	910	2500	24900		1200	6900
	1967	140	1390	2200	17200		1600	13700
	1968	40	1370	1800	24200		1500	10000
	1969	230	2950	1400	22900	630	12000	13500
	1970	470	6000	890	27600	7010	30100	12400
1971	390	12300	830	36400	6370	35800	17200	
1972	1080	15200	1160	30500	5820	34800	13700	
Eurochemic (100t/a)	1967		0,16					
	1968		0,13					
	1969		0,24					

* in Klammern jeweils die eingebrachten Aktivitäten

** Cs-134 + Cs-137

*** Daten über den aufgearbeiteten Brennstoff sind nur von 1970 bekannt.

eingebraachten Aktivitätsmengen läßt sich abschätzen, daß dort bisher pro Jahr etwa 20 bis 30 t Brennstoff aufgearbeitet wurden. Im Mai 1971 nahmen die NFS eine neue zusätzliche Reinigungsanlage für schwachaktives Abwasser in Betrieb. Die Dekontaminationsfaktoren dieser Anlage betrugen während der ersten 8 Betriebsmonate: 100 für Sr-90, 10 für Cs-137 und 2 für Ru-106 /197/. Das heißt, der DF für Ru-106 ist am ungünstigsten. Sr-90 und Ru-106 wurden nach Angaben von UNSCEAR /22/ hauptsächlich in löslicher Form abgegeben, Ce-144 dagegen in unlöslicher Form. Cs-134 und Cs-137 wurden zu ca. 70% in löslicher Form abgegeben.

Tabelle 7-5 Dekontaminationsfaktoren* von WAA (Abwasser)

Element	In WASH-1209 /2/ angegebene DF	Aus den Daten der NFS abgeschätzte konservative DF **	Von Windscale 1970 erreichte /196/ bzw. abgeschätzte konservative DF ***
Strontium	$4,5 \cdot 10^6$	10^5	10^3
Ruthenium	$5,6 \cdot 10^7$	10^4	$5 \cdot 10^2$
Cäsium	$8,0 \cdot 10^7$	10^5	$3 \cdot 10^2$
Cer	$1,05 \cdot 10^8$	10^6	$3 \cdot 10^3$

* Für die Unterstützung bei der Abschätzung der DF bedanke ich mich bei Herrn DI. H. Schüttelkopf

** Werte gelten für LWR-, LMFBR- und HTGR-Brennstoff

*** Werte gelten für Magnox/AGR-Brennstoff

Windscale

Die englische WAA Windscale ist seit 1952 in Betrieb /198/. Sie liegt in ihren Aktivitätsabgaben um mehrere Größenordnungen über denen der NFS (vgl. Tab. 7-4). Im Jahr 1970 wurden in Windscale etwa folgende Aktivitätsmengen aufge-

arbeitet (Magnox-Brennstoff) /196/:

Sr-89	$8 \cdot 10^6$ Ci
Sr-90	$7 \cdot 10^6$ Ci
Ru-106	$18 \cdot 10^6$ Ci
Cs-137	$9 \cdot 10^6$ Ci
Ce-144	$45 \cdot 10^6$ Ci

Da die Aktivitätsabgaben von 1970 bekannt sind, lassen sich aus diesen Daten Dekontaminationsfaktoren abschätzen (vgl. Tab. 7-5). Die Kapazität der Anlage dürfte in den letzten Jahren zum größten Teil ausgenutzt worden sein /165/. Die DF bei Windscale sind wesentlich schlechter als bei NFS. Es gibt dafür keine plausible Erklärung, da beide Anlagen das Purex-Verfahren anwenden. Die schwachaktiven Abwässer von Windscale werden über eine Pipeline abgegeben, die 2,5 km weit in die Irische See hinausragt. Von den englischen Behörden werden nur Messungen der Sr-90-, Ru-106- und Ce-144-Aktivität verlangt /22/. Bei den Abwasserabgaben ist Ru-106 dasjenige Nuklid, von dem die größte Strahlengefährdung ausgeht /19,199,200,201/. Nach Angaben von Suschny /202/ wird in der Irischen See eine Ru-106-Gleichgewichtsaktivität von etwa 60000 Ci erwartet. Ru-106 wird in Nitratform ($\text{Ru}(\text{NO}_3)$) abgegeben /203/. In den letzten Jahren sind die Aktivitätsabgaben der langlebigen Nuklide Sr-90, Cs-137 und Ce-144 stark angestiegen. Während der ersten Betriebsjahre wurde wahrscheinlich in der Hauptsache schwach abgebrannter Brennstoff aufgearbeitet bzw. die Kapazität der Anlage nicht ausgenutzt. Aus dem Verhältnis der Aktivitätsabgaben von Sr-89/Sr-90 sowie Ru-103/Ru-106 läßt sich abschätzen, daß der Brennstoff erst nach einer Abklingzeit von etwa einem Jahr zur Aufarbeitung kam.

WAK (Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe)

Bei der deutschen Anlage WAK (Durchsatz 40 t/a) werden bisher keine Einzelnuclidmessungen durchgeführt. Mit dem Beginn derartiger Messungen ist in Kürze zu rechnen. Ab ca. 1983 soll

in der WAK HTGR-Brennstoff aufgearbeitet werden /204/. In den 80er Jahren ist in der BRD der Bau einer Wiederaufarbeitungsanlage mit 1500 t/a Durchsatz für LWR-Brennstoff geplant /204, 205/.

Mit Hilfe der abgeschätzten DF (Tab. 7-5), der pro t Brennstoff enthaltenen Aktivität (Tab.7-2) sowie der jährlich aufzuarbeitenden Brennstoffmenge eines 1000 MWe-Reaktors (Tab. 7-1) wurden die Aktivitätsabgaben einer 1500 t/a LWR-, 1500 t/a LMFBR- und einer 60 t/a HTGR-Brennstoff aufarbeitenden WAA berechnet. Die jährlichen Abgaben dieser WAA (ohne Berücksichtigung eines Lastfaktors von 0,8) bei variabel gehaltener Abklingzeit sind den Abb.7-1 bis 7-3 zu entnehmen.

Abgaben mit der Abluft

Daten über Aerosolabgaben liegen nur von den Wiederaufarbeitungsanlagen NFS und Hanford vor. Außerdem sind in Tab.7-6 geschätzte Aktivitätsabgaben einiger anderer WAA zusammengestellt. Wie ersichtlich, sind die mit der Abluft abgegebenen Aktivitäten wesentlich geringer als die mit dem Abwasser (vgl. Tab.7-4) abgegebenen. In Abb.7-4 sind die jährlichen Aerosolabgaben einer 1500 t/a LWR-Brennstoff aufarbeitenden WAA bei variabler Abklingzeit dargestellt. Dabei wurden die Aktivitätsabgaben der BNFP (Barnwell Nuclear Fuel Plant) zugrunde gelegt. Wegen der höheren Abbrand- und spezifischen Brennstoffbelastungswerte beim BNFP-Brennstoff ist dies eine konservative Annahme.

Abschließend zeigt Abb.7-5 den jährlichen Aktivitätsfluß der Nuklide von der Erzeugung im 1000 MWe-LWR bis zur Endlagerung. Für WAA wurde eine Abklingzeit von $\tau = 150$ d angenommen. Mit Abwasser und Abluft der KKW bzw. WAA wird nur ein sehr geringer Anteil der erzeugten Aktivität abgegeben. Die langlebigen Nuklide Sr-90, Ru-106, Cs-134, Cs-135, Cs-137 und Ce-144 kommen nahezu vollständig zur Endlagerung. Die Aktivität der kurzlebigeren Nuklide Sr-89, Ru-103 und Ce-141 klingt vorher um etwa eine Größenordnung ab.

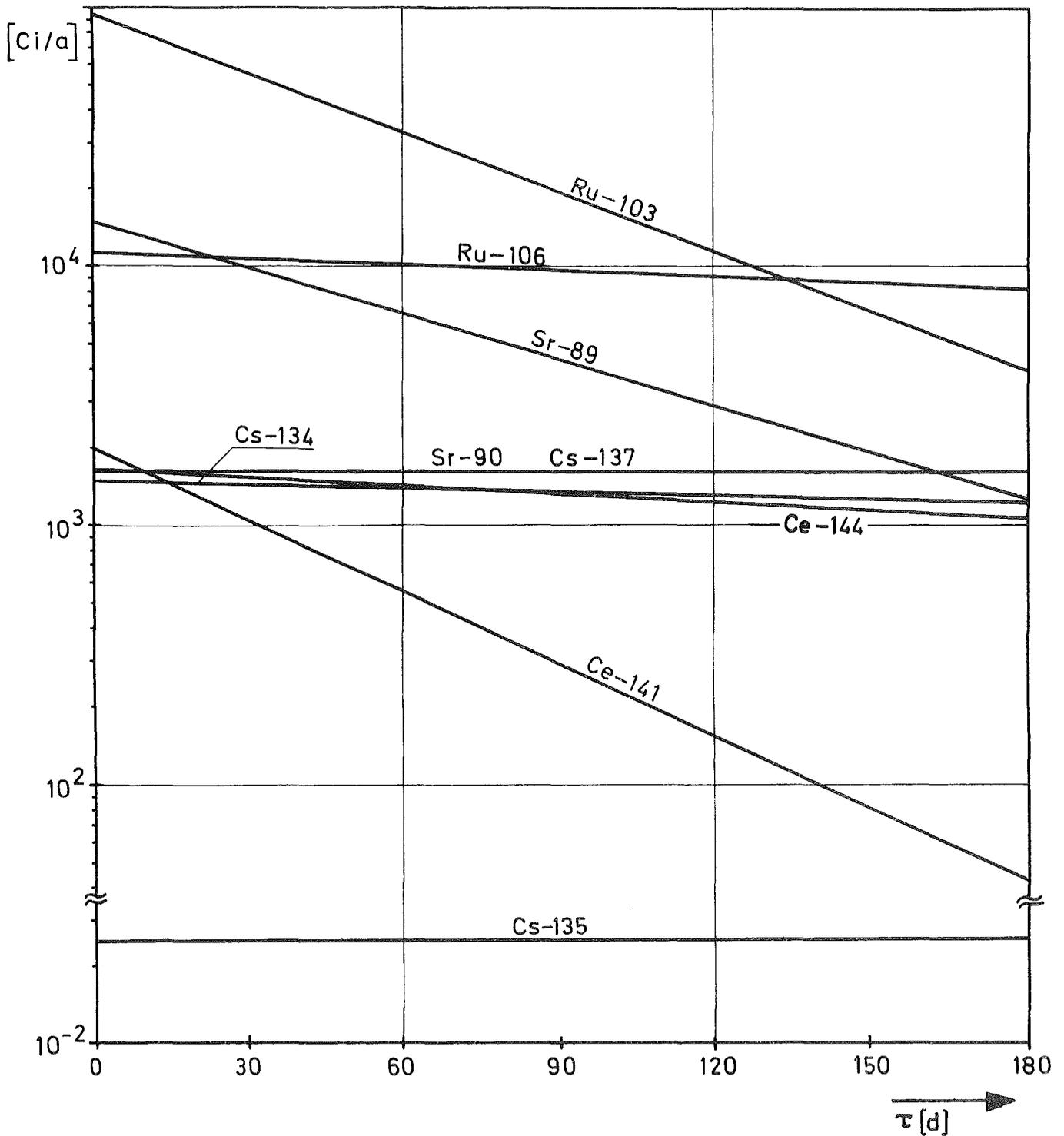


Abb. 7-1 Aktivitäts-Abgaberraten mit dem Abwasser einer 1500 t/a-Wiederaufarbeitungsanlage bei verschiedenen Abklingzeiten
 LWR-Brennstoff: Mittlerer Endabbbrand: 26000 MWD/t
 Mittlere spez. Belastung: 25 MW/t
 Dekontaminationsfaktoren: Sr: 10^5 , Ru: 10^4 , Cs: 10^5 ,
 Ce: 10^6

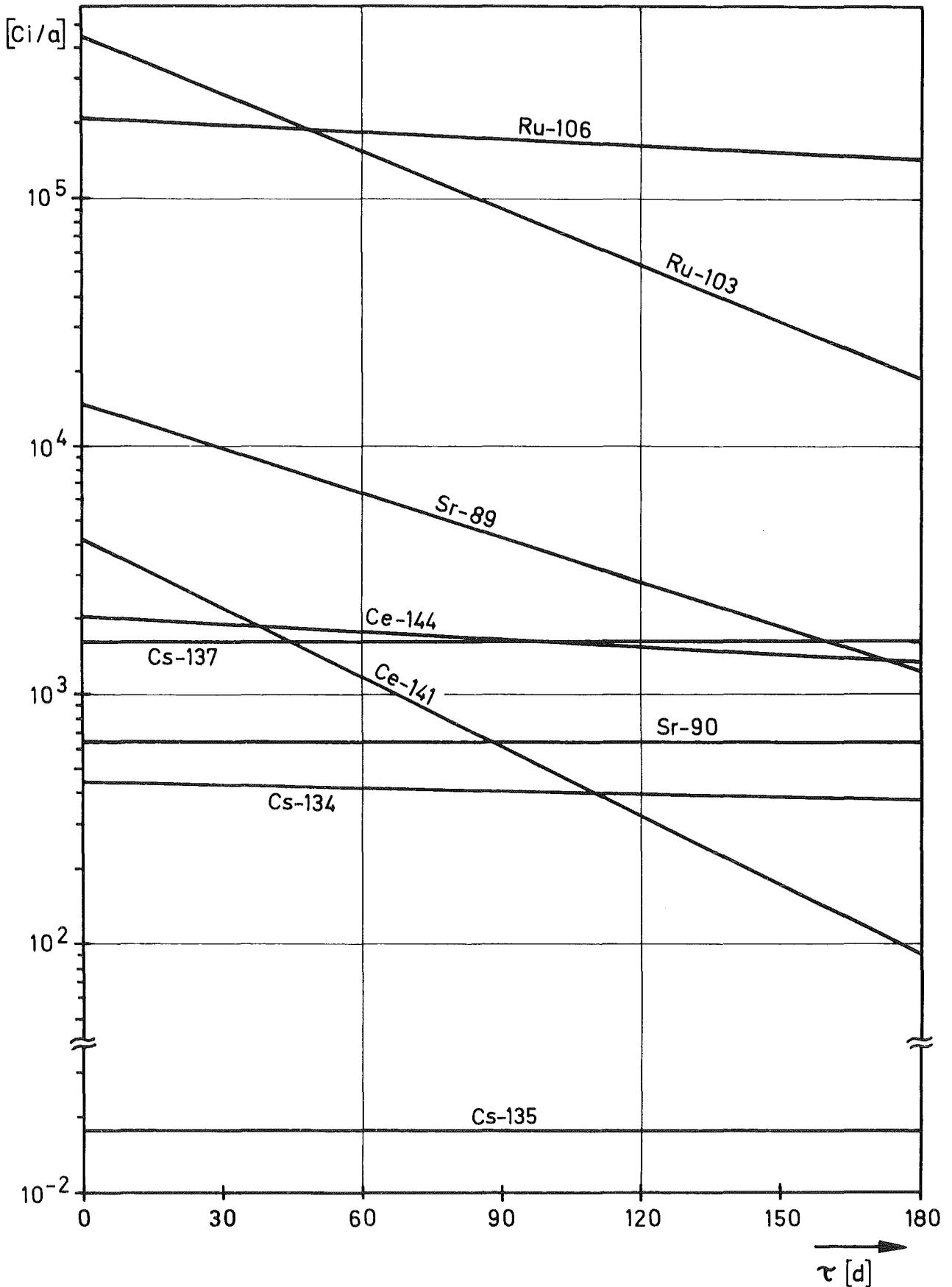


Abb.7-2 Aktivitäts-Abgaberaten mit dem Abwasser einer 1500 t/a-Wiederaufarbeitungsanlage bei verschiedenen Abklingzeiten

LMFBR-Brennstoff: Mittlerer Endabbrand: 33000 MWd/t
 Mittlere spez. Belastung: 58,2 MW/t
 U/Pu-Aufarbeitungsverhältnis: 1,25
 Dekontaminationsfaktoren: Sr:10⁵, Ru:10⁴, Cs:10⁵, Ce:10⁶

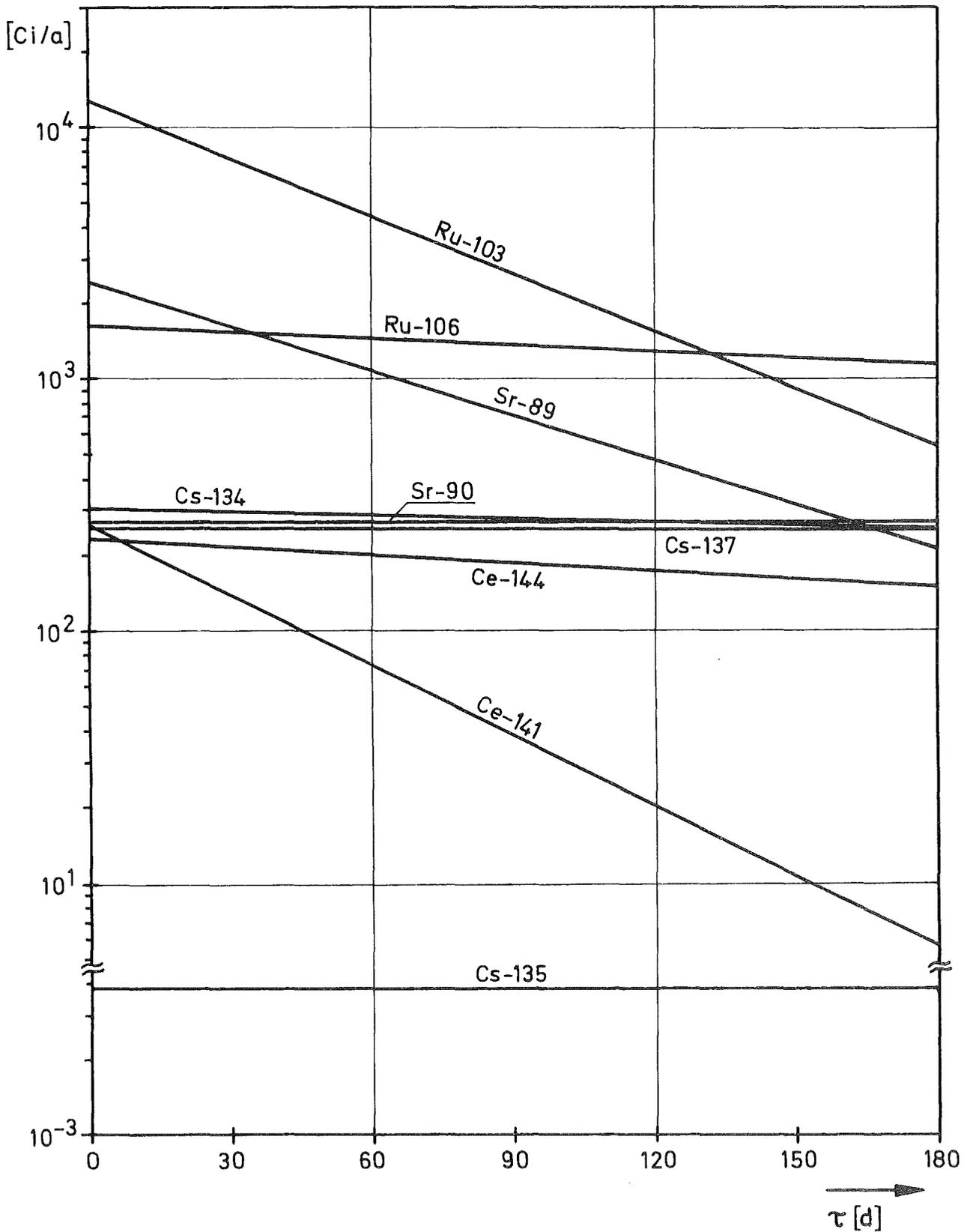


Abb.7-3 Aktivitäts-Abgaberaten mit dem Abwasser einer 60 t/a-Wiederaufarbeitungsanlage bei verschiedenen Abklingzeiten
 HTGR-Brennstoff: Mittlerer Endabbrand: 110000 MWd/t
 Mittlere spez. Belastung: 85 MW/t
 Dekontaminationsfaktoren: Sr: 10^5 , Ru: 10^4 , Cs: 10^5 ,
 Ce: 10^6

Tabelle 7-6 Aktivitätsabgaben von WAA mit der Abluft /15,186,193,206,207/

Bezeichnung der WAA (Kapazität)	abgegebene Aktivität [$\bar{\text{mCi/a}}$]							
	Sr-89	Sr-90	Ru-103	Ru-106	Cs-134	Cs-137	Ce-141	Ce-144
Hanford* (3000 t/a)			2600	2200			370	
NFS 1971 (900 t/a)	0,27	0,34		1,3	0,6	0,9		
Eurochemic** (100 t/a)	1,5	4				4		15
BNFP*** (1500 t/a)	240	278	265	1580	600	379	174	2650

* durchschnittliche Abgaben

** erwartete Abgaben

*** geschätzte Abgaben für: spez. Belastung: 40 MW/t, Abbrand: 32000 MWd/t,
Kühlzeit: 180 Tage, Durchsatz: 1500 t/a

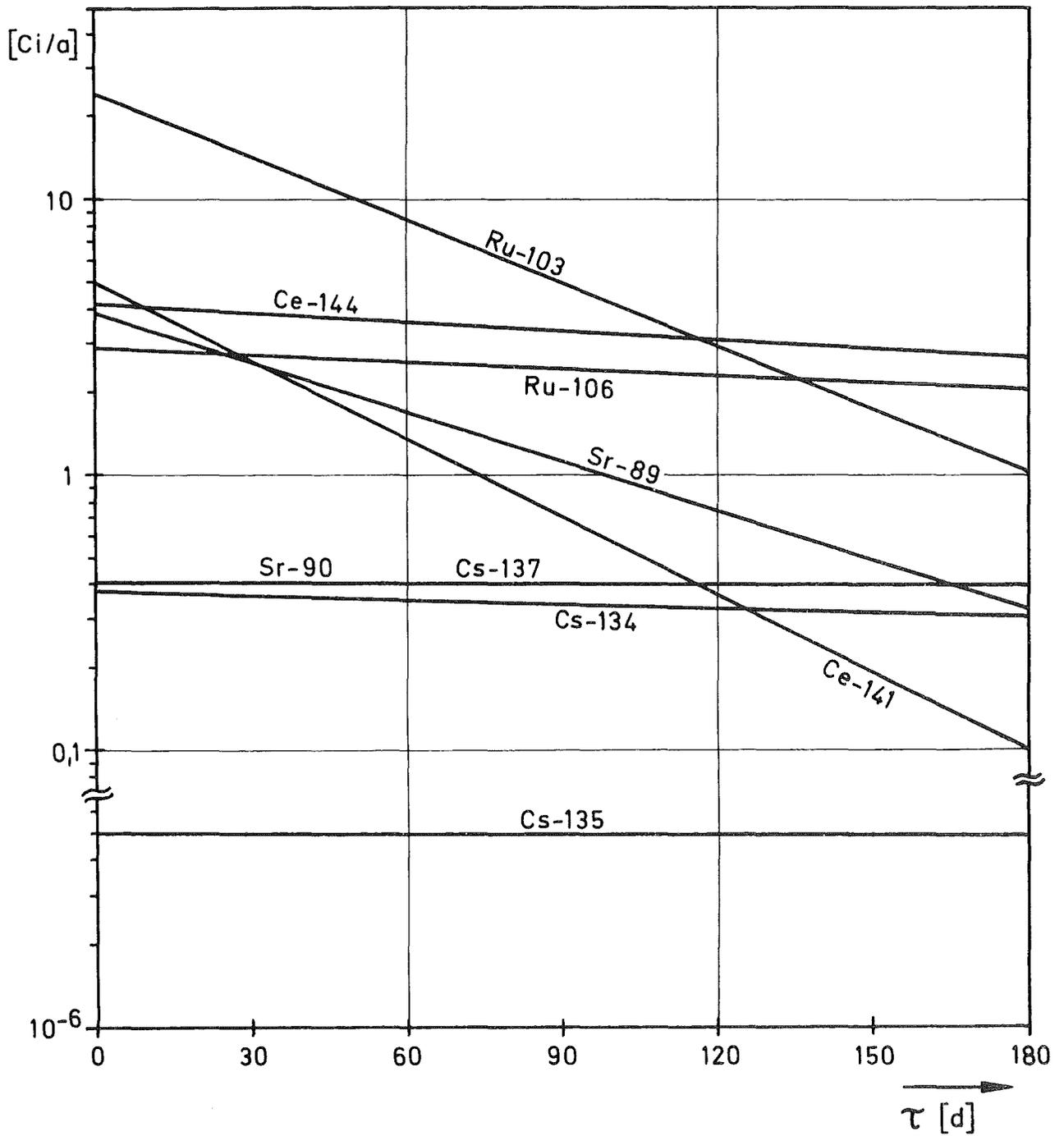
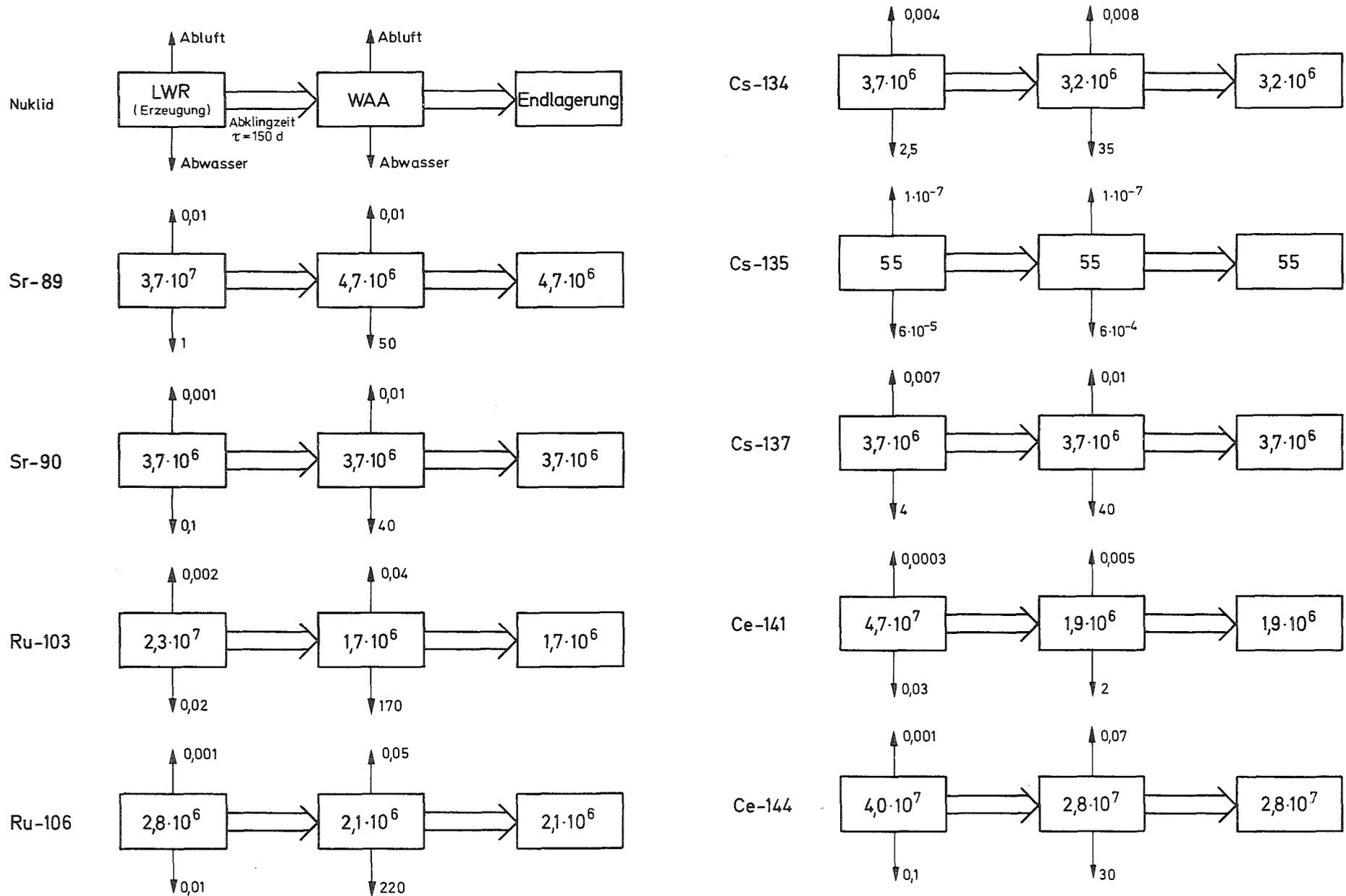


Abb.7-4 Aktivitäts-Abgaberraten mit der Abluft einer 1500 t/a-Wiederaufarbeitungsanlage bei verschiedenen Abklingzeiten
 LWR-Brennstoff: Mittlerer Endabbrand: 26000 MWd/t
 Mittlere spez. Belastung: 25 MW/t
 Dekontaminationsfaktoren: Sr: $4 \cdot 10^8$, Ru: $4 \cdot 10^7$,
 Cs: $4 \cdot 10^8$, Ce: $4 \cdot 10^8$

Abb.7-5 Jährlicher Aktivitätsfluß [\bar{C}_i/a] von der Erzeugung im 1000 MWe-LWR bis zur Endlagerung



8. Voraussichtliche radiologische Belastung bis zum Jahr 2000

Kernkraftwerke und Wiederaufarbeitungsanlagen sind punktförmige Aktivitätsquellen. Die Stratosphäre, in welche die bei einer oberirdischen Kernexplosion erzeugten radioaktiven Partikel zum großen Teil gelangen, stellt dagegen eine flächenförmige Aktivitätsquelle dar.

8.1 Lokale Belastung

Abwasser

Abwässer aus KKW und WAA werden in Flüsse, Seen oder direkt ins Meer geleitet, wobei bei letzterer Einleitung die lokale Belastung gering sein dürfte, wenn eine ausreichende Durchmischung mit großen Wassermassen gewährleistet ist. Die in Flüsse freigesetzten Partikel werden zum Teil von Sedimenten adsorbiert oder von Pflanzen und Lebewesen aufgenommen. In Wasserpflanzen und -lebewesen kann es zu einer Anreicherung kommen. Es liegen dann höhere Aktivitätskonzentrationen vor als im Wasser selbst. Die Akkumulationsfaktoren (für Süßwasser vgl. Tab. 8-1) sind von den jeweiligen biologischen Gegebenheiten abhängig. Die in Tabelle 8-1 genannten Zahlenwerte stellen konservative Abschätzungen dar /208/.

Tabelle 8-1 Biologische Akkumulationsfaktoren* für Süßwasser /208/

Nuklid	Pflanzen	Weichtiere und Krustentiere	Fisch	Wasservögel und Bismarcken
Sr-89	3000	4000	150	6500
Sr-90	3000	4000	150	9000
Cs-134	25000	11000	1000	230000
Cs-137	25000	11000	1000	250000

* $C = \frac{\text{Aktivität pro g Pflanze oder Tier}}{\text{Aktivität pro g Wasser}}$

Akkumulationsfaktoren speziell für Windscale vgl. /209/
vgl. auch: Radioactivity in the Marine Environment,
National Academy of Sciences (1971)

In Salzwasser sind die Akkumulationsfaktoren für die aufgeführten Nuklide um mehrere Größenordnungen niedriger. Strontium lagert sich hauptsächlich im Skelett der Lebewesen an, das nicht verzehrt wird. Cäsium ist zum größten Teil im Fleisch vorhanden, es kommt daher bei einem Verzehr dieser Tiere zu einer höheren Aktivitätsaufnahme. In Tabelle 8-2 sind einige Ingestionsdosisfaktoren bei einmaliger Aufnahme von 1 μCi mit der Nahrung zusammengestellt.

Tabelle 8-2 Ingestionsdosisfaktoren bei einmaliger Aufnahme von 1 μCi /2,16,46/*

Nuklid	kritisches Organ	Dosisfaktor [$\bar{\text{mrem}}/50 \text{ Jahre}$]	
		Kind	Erwachsener
Sr-89	Knochen	170	110
Sr-90		17039	8400
Ru-103	Knochen	1,20	0,28
Ru-106		11,7	2,74
Ru/Rh-106	Magen-Darm		195
Cs-134	Gesamtkörper Leber	78,0	91,6
		378	147
Cs-137	Gesamtkörper Leber	130	61,3
		304	106
Ce-141	Knochen	0,036	0,0085
Ce-144		2,17	0,509

* angegeben sind die jeweils höchsten genannten Werte

In Tabelle 8-3 sind einige in der Nähe von KKW und WAA in Wasser-Nahrungsmitteln gemessene Aktivitätskonzentrationen und durch deren Ingestion verursachte Strahlendosen aufgeführt. Das KKW Trawsfynydd leitet seine Abwässer in einen Süßwassersee ein /160/. Die Strahlendosis durch den Verzehr von dort gefangenem Fisch beträgt etwa 20 mrem/a. Wesentlich höhere Dosiswerte treten beim Verzehr von Laver-Brot in Südwales auf, das aus Algen hergestellt wird. Die Strahlenbelastung wird durch die Abwasserabgaben der WAA Windscale

Tabelle 8-3 Strahlendosen durch Ingestion von Nahrungsmitteln in der Nähe von KKW und WAA
(Aktivitätsfreisetzung mit dem Abwasser) /8,13,16/

Bezeichnung der Anlage	Nuklid	kritisches Organ	Nahrungsmittel (Konsum)	Aktivitätskonzentration	max. Individualdosis [mrem/a]
Dresden (BWR)	Sr-89	Knochen	Fisch (Fleisch) (100 g/d)	1,1 pCi/kg	0,0095
	Sr-90			0,092 "	0,0077
	Cs-134	Gesamtkörper	(100 g/d)	5,6 "	0,014
	Cs-137			16 "	0,018
	Sr-89	Knochen	Trinkwasser (2,2 l/d)	0,011 pCi/l	0,002
Sr-90	0,009 "			0,0016	
Trawsfynydd (GCR)	Cs-134 +Cs-137	Gesamtkörper	Barsch+Forelle (Fleisch) (100 g/d)		20
Hinkley Point (GCR)	Cs-134 +Cs-137	Gesamtkörper	Fisch (90 g/d)		0,4
NFS (WAA)	Sr-90	Knochen	Fisch (gesamt) (110 g/d)	640 pCi/kg	4,3
	Ru-Rh-106	Magen-Darm		2100 "	0,33
	Cs-137	Gesamtkörper		3600 "	0,17
Windscale (WAA)	Ru-106	Magen-Darm	Brot (160 g/d) (Algen)	176000 pCi/kg	600
	Ce-144			17000 "	

hervorgerufen. Bei der angegebenen Dosis von 600 mrem/a wurde ein durchschnittlicher Verdünnungsfaktor von 4,2 nicht berücksichtigt, der durch Beimengung von weniger radioaktiven Algen zustande kommt. Die jeweilige kritische Bevölkerungsgruppe, welche die maximale Dosis erhält, umfaßt in den meisten Fällen nur einen kleinen Personenkreis. Bei den Laver-Brot-Konsumenten sind es z.B. nur etwa 100 Personen.

Abluft

Über die Eigenschaften der mit der Abluft freigesetzten Aerosole ist bisher nur wenig bekannt. Bryant /67/ schätzt den Durchmesser von Sr-90- und Cs-137-Partikeln auf 0,1 µm bis einige µm. Die mittlere Verweilzeit von Aerosolen in den unteren Schichten der Atmosphäre bis 1 km Höhe beträgt etwa einen Tag /210/. Bei einer Windgeschwindigkeit von 4 m/s wäre die mittlere Reichweite der Aerosole etwa 350 km.

Die Strahlendosen durch Inhalation von Aerosolen in der Nähe der WAA NFS sind in Tabelle 8-4 angegeben. Diese Anlage hatte bisher einen Durchsatz von 20 bis 30 t/a.

Fischer in der Umgebung des KKW Hinkley Point bekommen eine Ganzkörperdosis von 1 mrem/a durch γ-Strahlung von am Boden abgelagertem Cs-134 und Cs-137, wenn sie sich in der Nähe von kontaminiertem Schlamm aufhalten. Nahe der WAA Windscale ist mit einer Dosis von 50 mrem/a bei einer jährlichen Aufenthaltsdauer von 350 Stunden zu rechnen. Letztere Dosis wird durch Zr-95, Nb-95 und Ru-106 verursacht /13/.

Tabelle 8-4 Strahlendosen durch Inhalation in der Nähe der Wiederaufarbeitungsanlage NFS /15/

Nuklid	chemische Form	kritisches Organ	Individualdosis /mrem/a/
Sr-89 Sr-90	löslich	Knochen	0,000006 0,0007
Ru-106 Cs-134 Cs-137	unlöslich	Lunge	0,00007 0,00002 0,00002

An der Erdoberfläche abgelagerte Partikel bewirken eine Kontamination des Erdbodens, der Pflanzen und des Oberflächenwassers. Hierdurch kann es (ähnlich wie bei Abwasserabgaben) zu Aktivitätsanreicherungen in Nahrungsmitteln kommen, wie z.B. direkt in Pilzen und Honig, indirekt in Tierfleisch, Milch u.a. (vgl. Tab. 8-5). Die hohen Cs-137-Aktivitätskonzentrationen in Rotwildfleisch (67000 pCi/kg in der Nähe der WAA NFS, bis zu 153000 pCi/kg durch Fallout im Südosten der USA) sind darauf zurückzuführen, daß das Rotwild Pilze frißt, in denen eine hohe Aktivitätsanreicherung stattfindet /211/ (vgl. auch /212/).

Abschließend sind in Tabelle 8-6 die errechneten Strahlenbelastungen (Inhalation (für Erwachsene) und Direktbestrahlung vom Erdboden) durch Aerosolabgaben kerntechnischer Anlagen zusammengestellt. Sr-90, Ce-144 und Ru-106 leisten den größten Beitrag zur Strahlendosis durch Inhalation. Bei einer 1500 t/a LWR-Brennstoff aufarbeitenden WAA ergibt sich für Sr-90 ($DF = 4 \cdot 10^8$) am ungünstigsten Aufpunkt ($J = 5 \cdot 10^{-7} \frac{\text{S}}{\text{m}^3}$) eine Inhalationsdosis von etwa 1 mrem/a. Die beiden Cäsiumisotope Cs-134 und Cs-137 ($DF = 4 \cdot 10^8$) tragen bei Ablagerung am Erdboden ($V_g = 3 \cdot 10^{-3} \frac{\text{m}}{\text{s}}$) den größten Anteil zur Belastung durch äußere γ -Strahlung bei; nach 5 Jahren sind es etwa 0,2 mrem/a, nach 50 Jahren etwa 0,8 mrem/a. Konservativerweise wurde angenommen, daß sämtliche Nuklide an der Erdoberfläche verbleiben und nicht absinken. Die über den Milchpfad applizierten Strahlendosen betragen 16 mrem/a durch Sr-90 (Knochendosis) und $6 \cdot 10^{-2}$ mrem/a durch Cs-137 (Ganzkörperdosis).

Tabelle 8-5 Strahlendosen durch Ingestion von Nahrungsmitteln in der Nähe von KKW und WAA
(Aktivitätsfreisetzung als Aerosol) /8,16/

Bezeichnung der Anlage	Nuklid	kritisches Organ	Nahrungsmittel (Konsum)	Aktivitätskonzentration	max. Individualdosis /mrem/a/	
Dresden (BWR)	Sr-89	Knochen	Milch (1 l/d)	0,016 pCi/l	0,0013	
	Sr-90			0,000028 "	0,000024	
	Cs-137	Gesamtkörper		0,0024 "	0,000027	
	Sr-89		Gemüse	0,294 pCi/kg	0,0037	
	Sr-89		Knochen	(150 g/d)	0,037 "	0,00037
	Sr-90			Tierfleisch	0,00022 "	0,000022
	Cs-137	Gesamtkörper	(120 g/d)	0,38 "	0,00052	
NFS (WAA)	Sr-90	Knochen	Rotwild (Fleisch) (140 g/d)	540 pCi/kg	4,5	
	Cs-134	Gesamtkörper		12000 "	0,96	
	Cs-137			67000 "	4,0	

Tabelle 8-6 Strahlenbelastungen durch Abluftabgaben kerntechnischer Anlagen*

	Nuklid	Abgaberate [Ci/a]	Inhalationsdosis [mrem/a]	Ganzkörperdosis durch Direktbestrahlung vom Erdboden				
				nach 1a [mrem/a]	nach 5a [mrem/a]	nach 10a [mrem/a]	nach 50a [mrem/a]	Sättigung [mrem/a]
Normierte Werte	Sr-89	1	$4,80 \cdot 10^{-2}$	$1,46 \cdot 10^{-6}$	$1,47 \cdot 10^{-6}$	$1,47 \cdot 10^{-6}$	$1,47 \cdot 10^{-6}$	$1,47 \cdot 10^{-6}$
	Sr-90	1	2,40					
	Ru-103	1	$6,50 \cdot 10^{-3}$	$7,38 \cdot 10^{-3}$	$7,38 \cdot 10^{-3}$	$7,38 \cdot 10^{-3}$	$7,38 \cdot 10^{-3}$	$7,38 \cdot 10^{-3}$
	Ru-106	1	$1,29 \cdot 10^{-1}$	$1,42 \cdot 10^{-2}$	$2,76 \cdot 10^{-2}$	$2,84 \cdot 10^{-2}$	$2,85 \cdot 10^{-2}$	$2,85 \cdot 10^{-2}$
	Cs-134	1	$6,10 \cdot 10^{-3}$	$1,34 \cdot 10^{-1}$	$3,81 \cdot 10^{-1}$	$4,50 \cdot 10^{-1}$	$4,68 \cdot 10^{-1}$	$4,68 \cdot 10^{-1}$
	Cs-135	1	$9,45 \cdot 10^{-3}$					
	Cs-137	1	$5,75 \cdot 10^{-2}$	$5,31 \cdot 10^{-2}$	$2,54 \cdot 10^{-1}$	$4,80 \cdot 10^{-1}$	1,60	2,33
	Ce-141	1	$4,78 \cdot 10^{-3}$	$9,27 \cdot 10^{-4}$	$9,30 \cdot 10^{-4}$	$9,30 \cdot 10^{-4}$	$9,30 \cdot 10^{-4}$	$9,30 \cdot 10^{-4}$
	Ce-144	1	$1,40 \cdot 10^{-1}$	$4,68 \cdot 10^{-3}$	$4,71 \cdot 10^{-3}$	$4,71 \cdot 10^{-3}$	$4,71 \cdot 10^{-3}$	$4,71 \cdot 10^{-3}$
WAA**	Sr-89	0,5	$2,40 \cdot 10^{-2}$	$7,29 \cdot 10^{-7}$	$7,35 \cdot 10^{-7}$	$7,35 \cdot 10^{-7}$	$7,35 \cdot 10^{-7}$	$7,35 \cdot 10^{-7}$
	Sr-90	0,4	$9,58 \cdot 10^{-1}$					
	Ru-103	1,7	$1,11 \cdot 10^{-2}$	$1,25 \cdot 10^{-2}$	$1,25 \cdot 10^{-2}$	$1,25 \cdot 10^{-2}$	$1,25 \cdot 10^{-2}$	$1,25 \cdot 10^{-2}$
	Ru-106	2,2	$2,83 \cdot 10^{-1}$	$3,12 \cdot 10^{-2}$	$6,06 \cdot 10^{-2}$	$6,27 \cdot 10^{-2}$	$6,27 \cdot 10^{-2}$	$6,27 \cdot 10^{-2}$
	Cs-134	$0,32 \cdot 10^{-6}$	$1,95 \cdot 10^{-8}$	$4,29 \cdot 10^{-2}$	$1,22 \cdot 10^{-1}$	$1,44 \cdot 10^{-1}$	$1,50 \cdot 10^{-1}$	$1,50 \cdot 10^{-1}$
	Cs-135	$5 \cdot 10^{-6}$	$4,73 \cdot 10^{-8}$					
	Cs-137	0,4	$2,30 \cdot 10^{-2}$	$2,12 \cdot 10^{-2}$	$1,02 \cdot 10^{-1}$	$1,92 \cdot 10^{-1}$	$6,39 \cdot 10^{-1}$	$9,33 \cdot 10^{-1}$
	Ce-141	0,2	$9,55 \cdot 10^{-4}$	$1,85 \cdot 10^{-4}$	$1,86 \cdot 10^{-4}$	$1,86 \cdot 10^{-4}$	$1,86 \cdot 10^{-4}$	$1,86 \cdot 10^{-4}$
	Ce-144	2,9	$4,05 \cdot 10^{-1}$	$8,07 \cdot 10^{-3}$	$1,36 \cdot 10^{-2}$	$1,37 \cdot 10^{-2}$	$1,37 \cdot 10^{-2}$	$1,37 \cdot 10^{-2}$
	Σ		***	$1,16 \cdot 10^{-1}$	$3,09 \cdot 10^{-1}$	$4,26 \cdot 10^{-1}$	$8,79 \cdot 10^{-1}$	1,17

* Ausbreitungsfaktor $J = 5 \cdot 10^{-7} \frac{s}{m^3}$; Ablagerungsgeschwindigkeit $V_g = 3 \cdot 10^{-3} \frac{m}{s} / 67/;$

Dosisfaktoren vgl. Tab. 3-1 und Tab. 3-2; Absinken im Erdboden wurde nicht berücksichtigt.

** Durchsatz 1500 t/a, Abklingzeit 150 d

LWR-Brennstoff: Mittlerer Endabbrand: 26000 MWd/t

Mittlere spez. Belastung: 25 MW/t

Dekontaminationsfaktoren: Sr: $4 \cdot 10^8$, Ru: $4 \cdot 10^7$, Cs: $4 \cdot 10^8$, Ce: $4 \cdot 10^8$

*** kritisches Organ für Sr-89, Sr-90, Ce-144: Knochen; $\Sigma = 1,39$ mrem/a
kritisches Organ für restliche Nuklide: Lunge; $\Sigma = 0,338$ mrem/a

8.2 Globale Belastung

Ausbreitungsmechanismen in der Atmosphäre, im Erdboden und Meer

Die bei oberirdischen Kernexplosionen erzeugten Spaltprodukte verbleiben im wesentlichen in der Atmosphäre über derjenigen Erdhalbkugel, in der sie freigesetzt werden /213/. Die Austauschzeit der Luftmassen zwischen beiden Halbkugeln beträgt 1 bis 3 Jahre /92,214,215/. Die Spaltprodukte haben sich hauptsächlich auf der nördlichen Erdhalbkugel abgelagert, da in dieser Hemisphäre fast alle Kernexplosionen stattfanden (vgl. auch Abb.8-2). Abb.8-1 zeigt schematisch den Transportweg von Partikeln aus der Stratosphäre.

Seit 1966 ist die an der Erdoberfläche abgelagerte Aktivität an Sr-90 und Cs-137 etwa konstant. Sie beträgt für Sr-90 etwa $12,4 \cdot 10^6$ Ci (vgl. Abb.8-2), für Cs-137 etwa $18,6 \cdot 10^6$ Ci (durch Messungen ermittelt). Die Abschätzungen, bei denen aufgrund kleiner, vereinzelter Bodenproben auf die gesamte Welt extrapoliert wurde, stimmen gut mit rechnerisch ermittelten Werten aufgrund der durch Kernexplosionen freigesetzten Aktivitäten überein /79/. Die an Sr-90 an der Erdoberfläche abgelagerte Aktivität besitzt zwischen 40° und 50° nördlicher bzw. südlicher Breite ein Maximum (vgl. Abb.8-3). Dies ist auf ein "Loch" in der Tropopause und einen dadurch ermöglichten Austausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre zurückzuführen /97/. Bei 45° N beträgt die Sr-90-Konzentration etwa 70 mCi/km^2 , die Cs-137-Konzentration etwa 105 mCi/km^2 . Daraus ergibt sich eine Cs-137-Ganzkörperdosis von 3,8 mrem/a durch Direktbestrahlung vom Erdboden (ohne Berücksichtigung des Absinkens von Cs-137; vgl. auch Tab. 8-8).

Das Verhalten der Nuklide im Erdboden hängt im wesentlichen vom Niederschlag bzw. dem Wassergehalt der Erdschicht sowie den chemischen Eigenschaften des Bodens und der Nuklide ab. Folgende Prozesse können im Erdboden auftreten: mechanische Filterung der Spaltprodukte, Adsorption, Ionenaustausch, chemische Fällung, Verzögerung des Transportes in das Grundwasser und Verdünnung /218/.

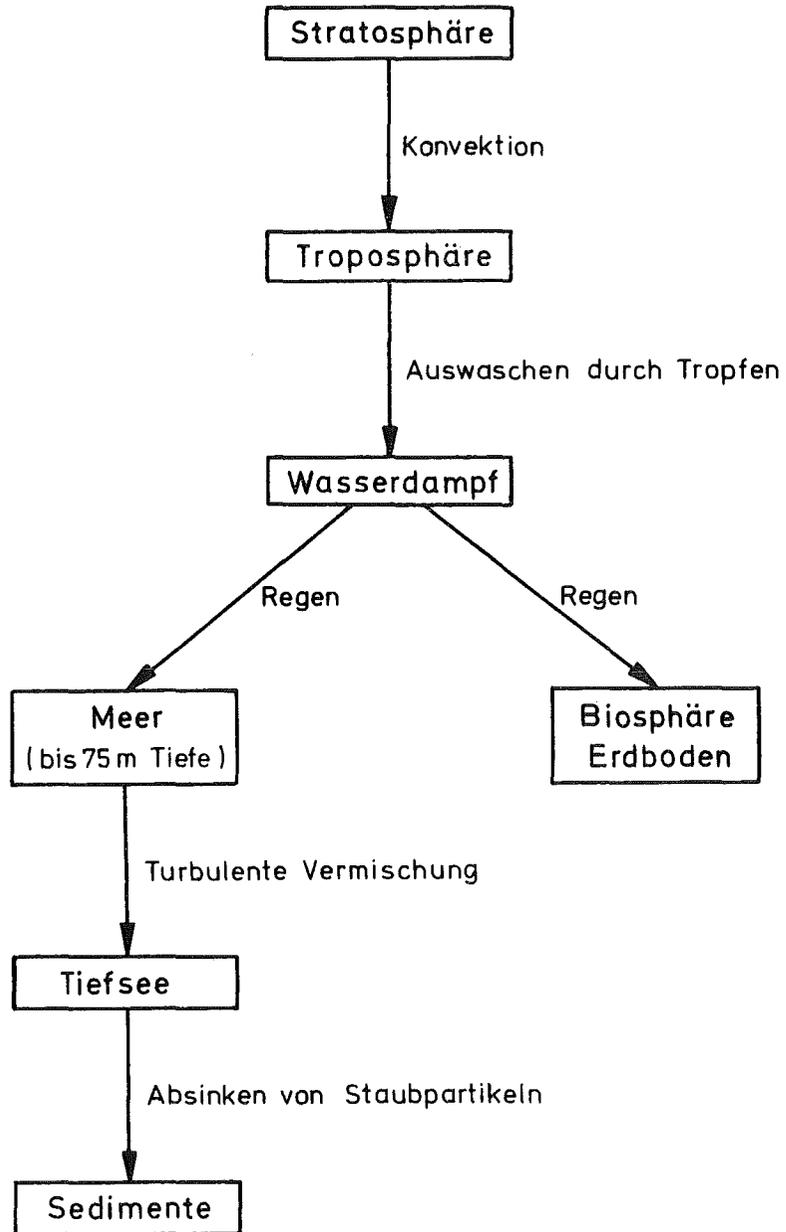


Abb.8-1 Transportweg von Partikeln aus der Stratosphäre (schematisch) /216/

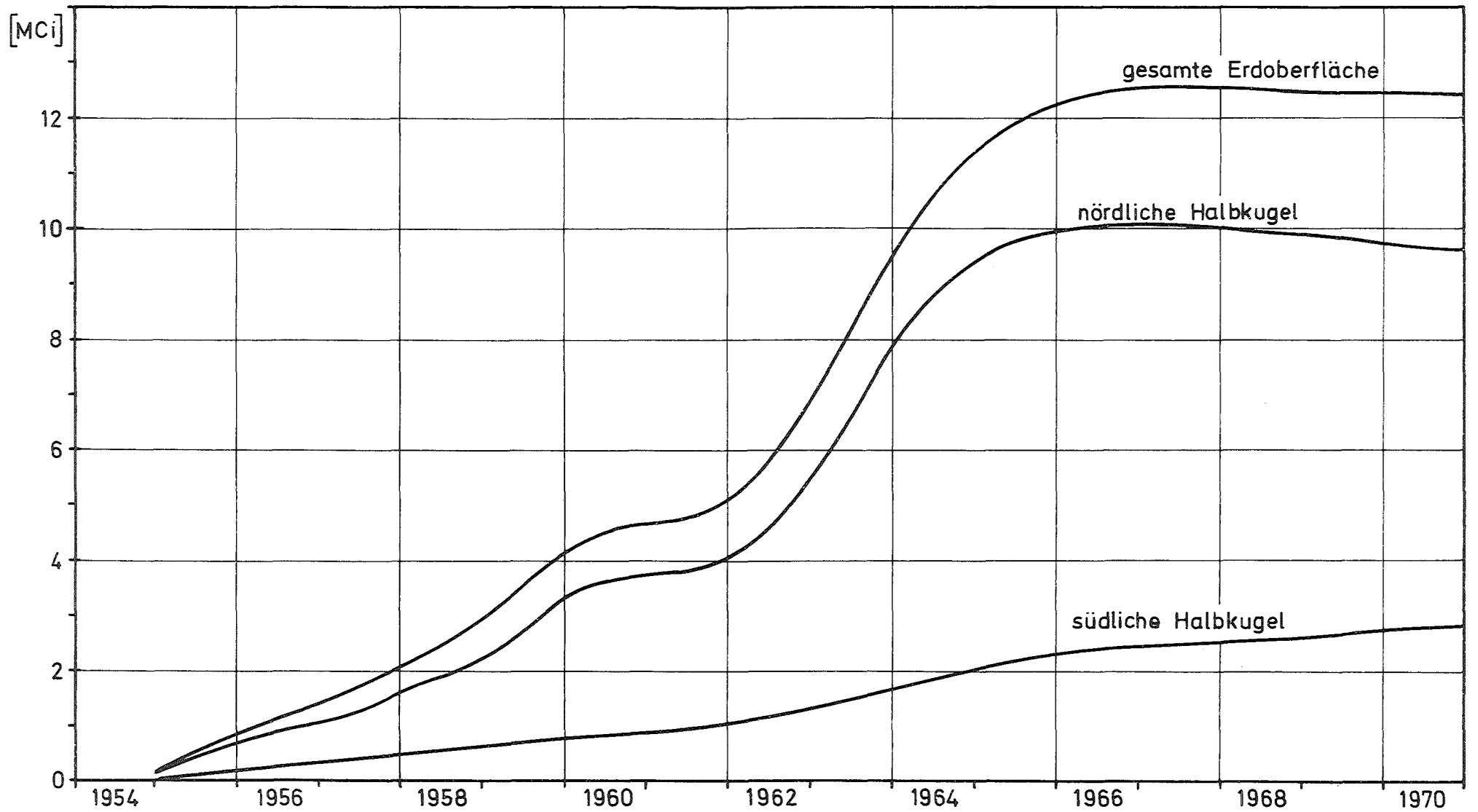


Abb.8-2 Kumulative Ablagerung von Sr-90 durch Kernwaffenversuche an der Erdoberfläche /79/

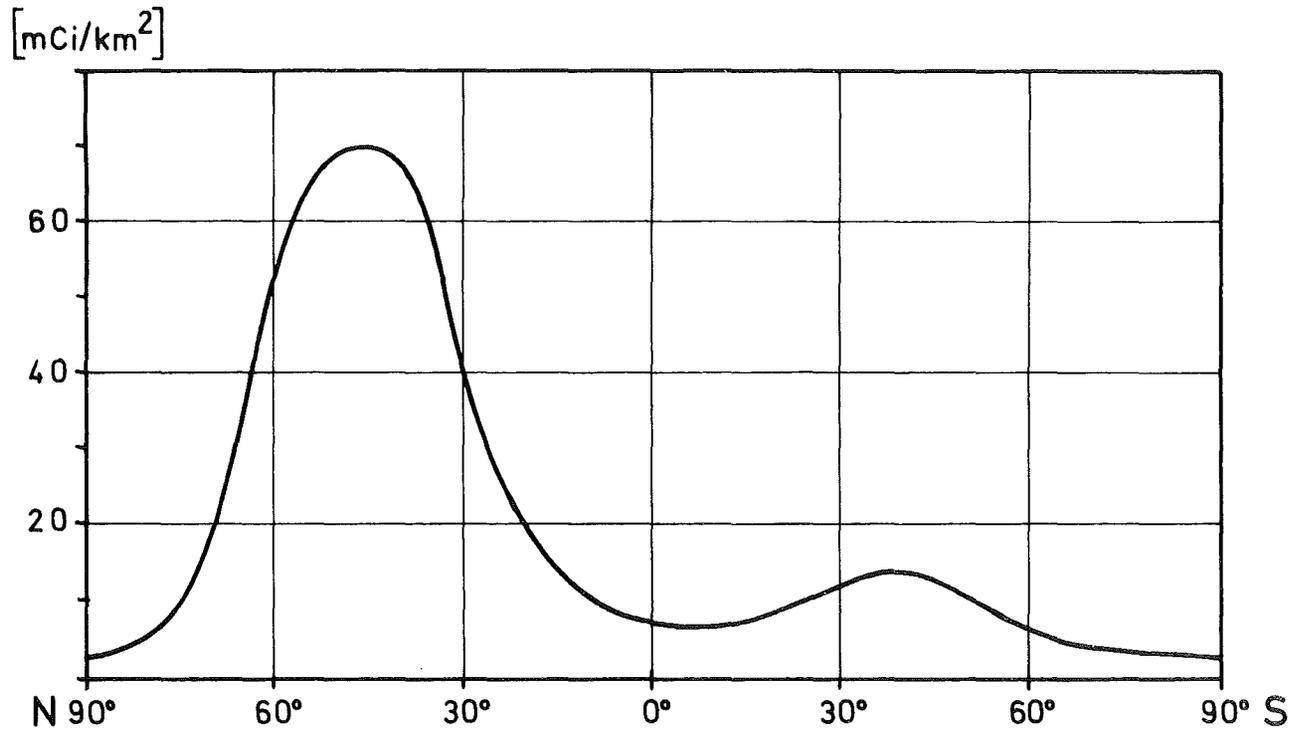


Abb.8-3 Breitengradabhängige Verteilung von an der Erdoberfläche abgelagertem Sr-90 /217/

Die natürliche Radioaktivität ist ziemlich gleichmäßig im Erdboden verteilt, künstliche Radioaktivität wurde bisher nur in den obersten Bodenschichten gefunden /219/. In der BR Deutschland wurde in 45 bis 55 cm Tiefe kein Fallout festgestellt /218/. Sr-90 und Cs-137 zeigen annähernd ähnliches Verhalten, sie werden im Erdboden stark adsorbiert, wodurch sich eine hohe Anreicherung an der Erdoberfläche ergibt. Bodenproben zeigen, daß sich nach 4 Jahren etwa 80% der gesamten Aktivität in den obersten 5 cm des Erdbodens befinden, wenn das Land nicht umgepflügt wird /220/. Die Abwärtsbewegung ist in calciumarmen Lehmböden am geringsten /221/, in sandigen Böden dagegen erheblich größer /84,222,223/. Strontium kann anstelle von Calcium im Erdboden aufgenommen werden, wodurch sich ein höheres Sr-/Ca-Verhältnis ergibt /224,225/. Sr-90 und Cs-137 liegen im Boden als Kationen vor (Sr^{++} bzw. Cs^+) /218,226/. Kationen werden vom Erdboden wesentlich besser zurückgehalten als Anionen /226/. Ruthenium kommt sowohl kationisch als auch neutral und anionisch vor. Selbst in kationischer Form wird es relativ gering adsorbiert /218/. Das langlebige Ru-106-Isotop kann daher relativ weit in den Erdboden eindringen. Cer kommt kationisch als Ce^{4+} vor /226/.

Aus der am grasbewachsenen Boden abgelagerten Aktivitätsmenge an Sr-90 läßt sich die Aktivität von Sr-90 in der Milch bestimmen. Dies ist näherungsweise mit Beziehung (8-1) möglich /67,227/:

$$C = p_r F_r + p_d F_d \quad (8-1)$$

$C \left[\frac{\text{pCi Sr-90}}{\text{g Ca}} \right]$ = Aktivität von Sr-90 pro g Calcium in Milch

$F_r \left[\frac{\text{mCi}}{\text{km}^2 \text{ Jahr}} \right]$ = Ablagerungsrate an Sr-90 am Erdboden im laufenden Jahr

$F_d \left[\frac{\text{mCi}}{\text{km}^2} \right]$ = kumulative Ablagerung von Sr-90

p_r, p_d = Proportionalitätsfaktoren (von örtlichen Gegebenheiten abhängig)

Die Aktivitätskonzentration von Cs-137 in Milch läßt sich ebenfalls auf diese Weise bestimmen /67/. In letzter Zeit versuchte man, verbesserte Beziehungen zwischen Ablagerung und Milchaktivität aufzustellen: /228, 229, 230, 231, 232, 233, 234/. Die Milchaktivität dient als Richtwert für die Kontamination von Nahrungsmitteln. Seit 1963/64 sinken die Aktivitätswerte an Sr-90 und Cs-137 in Milch ständig ab, da oberirdische Kernexplosionen nur noch in geringem Ausmaß durchgeführt werden und die Kontamination des Grases stark zurückging. 1964 wurden in Großbritannien in Milch durchschnittliche Aktivitätskonzentrationen von 28 pCi/gCa Sr-90 und 153 pCi/l Cs-137 gemessen, 1972 waren es 4,5 pCi/gCa Sr-90 und 13 pCi/l Cs-137 /235/. Von Csupka /236/ wurden 2 Modelle zur Berechnung der Aktivität in der Milch bis zum Jahr 2000 aufgestellt (vgl. Tab. 8-7).

Tabelle 8-7 Voraussichtliche Sr-90- und Cs-137-Aktivitätskonzentrationen in Milch bis zum Jahr 2000 /236/

Jahr	Modell A*		Modell B**	
	Sr-90 [pCi/gCa]	Cs-137 [pCi/l]	Sr-90 [pCi/gCa]	Cs-137 [pCi/l]
1970	4,6	7,1	4,2	5,9
1980	3,8	5,5	2,5	3,0
1990	3,3	4,5	1,6	2,0
2000	3,0	3,8	1,0	1,3

* Voraussetzung: jährlicher Fallout bleibt bis zum Jahr 2000 konstant:
 1,04 mCi/km² Sr-90
 1,92 mCi/km² Cs-137 (Werte von 1969)

** Voraussetzung: es finden keine neuen Kernwaffenexplosionen statt, stratosphärischer Fallout nimmt mit einer Halbwertszeit von 1a ab

Weitere in der Rechnung verwendete Daten siehe /236/.

70% des Fallouts gehen auf die Meeresoberfläche (70% der Erdoberfläche) nieder /202/. Zu den primären 70% kommen Aktivitäten, die dem Meer durch Flüsse zugeführt werden. Bisher enthält das Meer etwa 10^9 Ci künstlicher Radioaktivität, das sind 0,5% der natürlichen Radioaktivität. Die Aktivität des Meeres an Sr-90 beträgt etwa $8,7 \cdot 10^6$ Ci. Dies entspricht einer durchschnittlichen Aktivitätskonzentration von 0,33 pCi/l (im Atlantik wurden 1968 bei 42 °N 0,14 pCi/l gemessen /213/), wenn man annimmt, daß sich Sr-90 nur in den oberen 75 m des Meeres verteilt. Die Temperatur- und Dichtesprungschicht in dieser Tiefe stellt ein großes Hindernis für das Absinken radioaktiver Stäube und Lösungen in größere Meerestiefen dar /213/. Meßergebnisse im Südatlantik hingegen zeigen, daß auch in Tiefen von 200 bis 400 m noch eine Vermischung stattfindet /202/. Die Spaltprodukte aus den Kernwaffenversuchen der letzten 20 Jahre sind heute noch in ihrer Hauptmasse in den oberen Wasserschichten anzutreffen. Radioaktive Abfallprodukte aus kerntechnischen Anlagen wurden meist nur in küstennahen Bereichen festgestellt. In flachen, weitgehend abgeschlossenen Meeresgebieten mit geringem Wasseraustausch -wie beispielsweise der Ostsee- wurden höhere Aktivitätskonzentrationen (0,75 pCi/l Cs-137) gemessen als im offenen Meer (0,27 pCi/l Cs-137 im Atlantik) /213/.

Die mittlere Aufenthaltszeit von stabilem Strontium im Meer beträgt etwa 10^7 Jahre, diejenige von Cäsium etwa $5 \cdot 10^4$ Jahre /33,34,202/. Strontium und Cäsium liegen im Meer in löslicher ionischer Form vor /202,209/ und folgen der Bewegung der Wassermassen. Die Absorptionsfähigkeit von Cs-137 an Sedimentpartikeln ist besonders stark. Dies zeigt sich z.B. daran, daß das Cs-137/Sr-90-Verhältnis in der Ostsee nur bei 1,0 liegt /213/. Bei frischem Fallout hat dies Verhältnis den Wert 1,5.

Stabiles Cer hat eine mittlere Verweilzeit von 80 Jahren im Meer /33/. Ruthenium und Cer sind relativ unlöslich und neigen zur Komplexbildung, durch Adsorption werden sie leicht in

Partikelform überführt; ihre Sinkgeschwindigkeit hängt von der Partikelgröße ab /203,209/. Im Atlantischen Ozean wurde für Cer eine Absinkgeschwindigkeit von 100 m/Monat gemessen. Ruthenium und Cer reichern sich stark in Algen an /202/.

Aktivitätsakkumulation durch kerntechnische Anlagen

Es wurde die weltweit aus kerntechnischen Anlagen freigesetzte und bis zum Jahr 2000 akkumulierte Aktivität berechnet (vgl. Abschnitt 10.2), um einen Vergleich mit der Freisetzung durch Kernexplosionen und Spontanspaltung zu ermöglichen. Dabei wurde zwischen der Freisetzung durch KKW und WAA unterschieden. Den Berechnungen liegt die einer Arbeit von Grathwohl /237/ entnommene Prognose für die installierte Kernkraftwerksleistung bis zum Jahr 2000 zugrunde (vgl. Abb. 8-4). Die Ergebnisse dieser Berechnungen sind den Abb.8-5 bis 8-13 zu entnehmen. Wie zu erwarten, liegen die Aktivitätsfreisetzungen durch WAA wesentlich höher als diejenigen durch KKW. Dies gilt in besonderem Maße für die Rutheniumisotope. Bei den Cäsiumisotopen tragen auch die KKW in größerem Ausmaß zur gesamten Aktivitätsfreisetzung bei. Die bis zum Jahr 2000 aus kerntechnischen Anlagen freigesetzten Mengen der langlebigen Nuklide Sr-90, Cs-135 und Cs-137 liegen unter denen, die aus oberirdischen Kernwaffenversuchen bis zu diesem Zeitpunkt noch vorhanden sind.

Unter der Annahme, daß sich die freigesetzten Spaltprodukte gleichmäßig im Meer bis zu einer Tiefe von 75 m verteilen, liegen die Aktivitätskonzentrationen der hier betrachteten Nuklide im Wasser im Jahr 2000 weit unterhalb der für die Gesamtbevölkerung zulässigen MZK-Werte. Sr-90 stellt insofern das kritische Nuklid dar, als bei seiner Aktivitätskonzentration ($1 \cdot 10^{-10} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$) der Abstand zum MZK-Wert für die Gesamtbevölkerung ($1 \cdot 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$) am geringsten ist.

Die Kontamination des Trinkwassers mit Sr-90 - bedingt durch den Fallout der Kernwaffenversuche - lag 1963 bis 1967 in der BR Deutschland bei 0,31 bis 0,11 pCi/l.

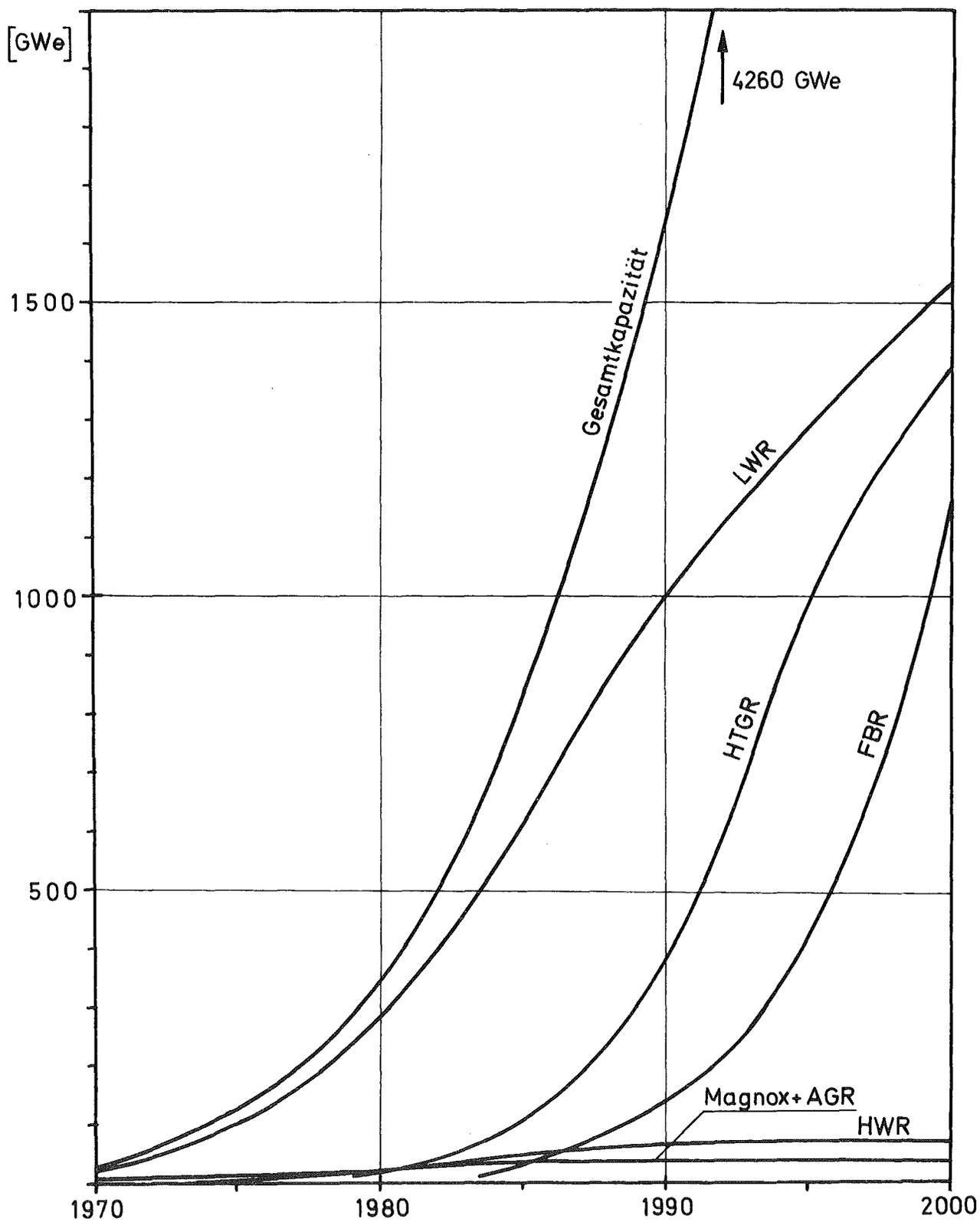


Abb.8-4 Anteil der einzelnen Reaktortypen an der installierten Kernkraftwerkskapazität der Welt /237/
Gesamtkapazität nach IAEA /238/
Aufteilung auf Reaktortypen nach Jül /239/

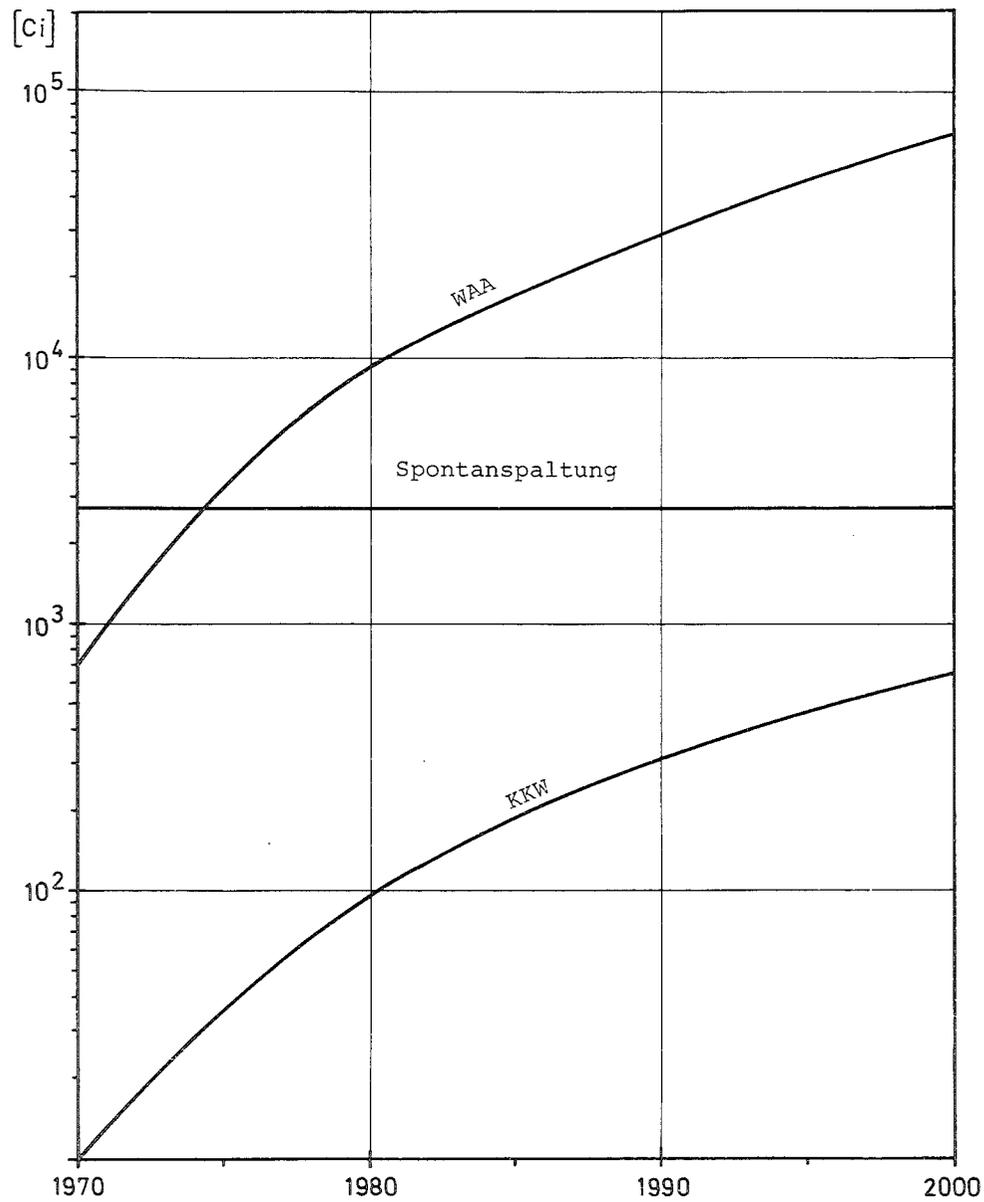


Abb.8-5 Global freigesetzte akkumulierte Sr-89-Aktivität aus natürlicher Entstehung und aus kerntechnischen Anlagen bis zum Jahr 2000

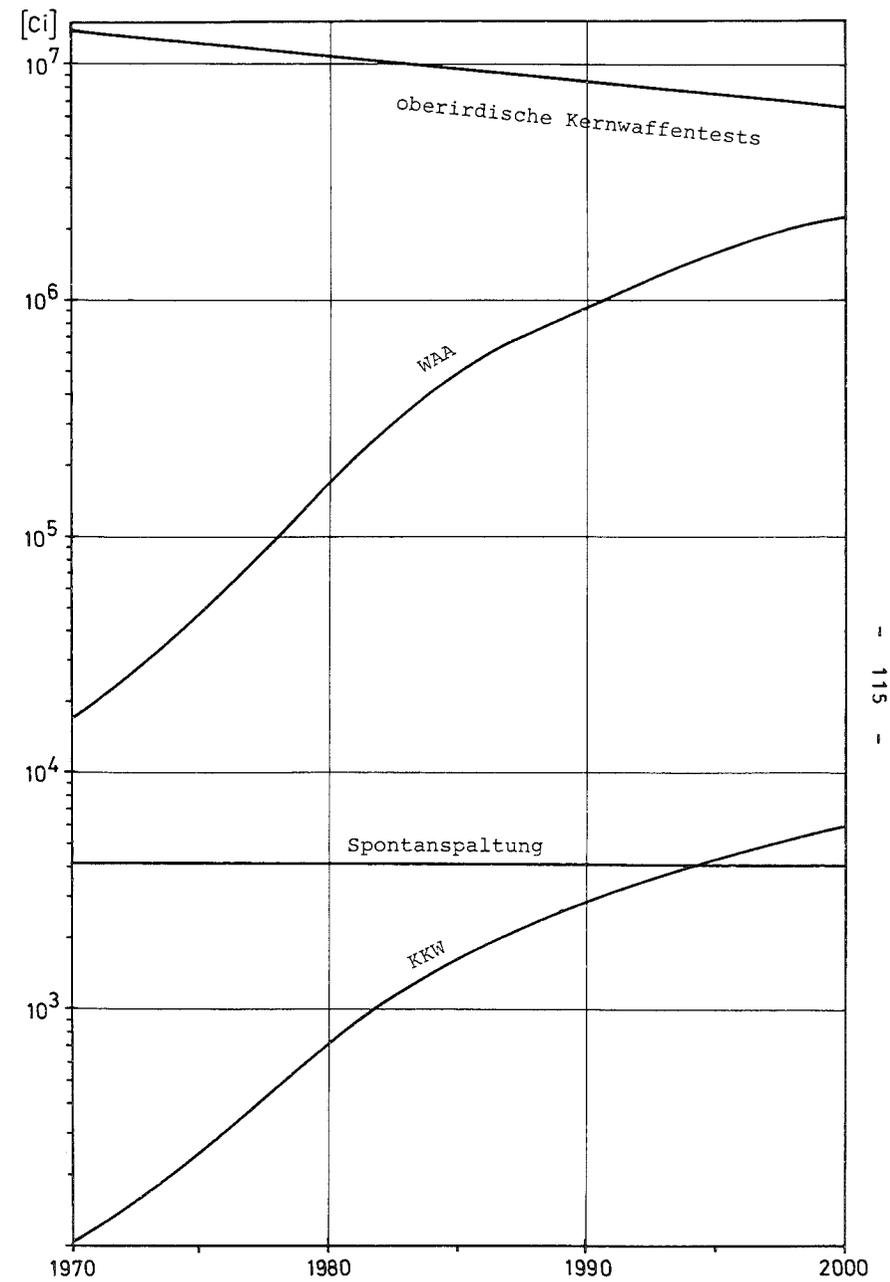


Abb.8-6 Global freigesetzte akkumulierte Sr-90-Aktivität aus natürlicher Entstehung, oberirdischen Kernwaffentests und aus kerntechnischen Anlagen bis zum Jahr 2000

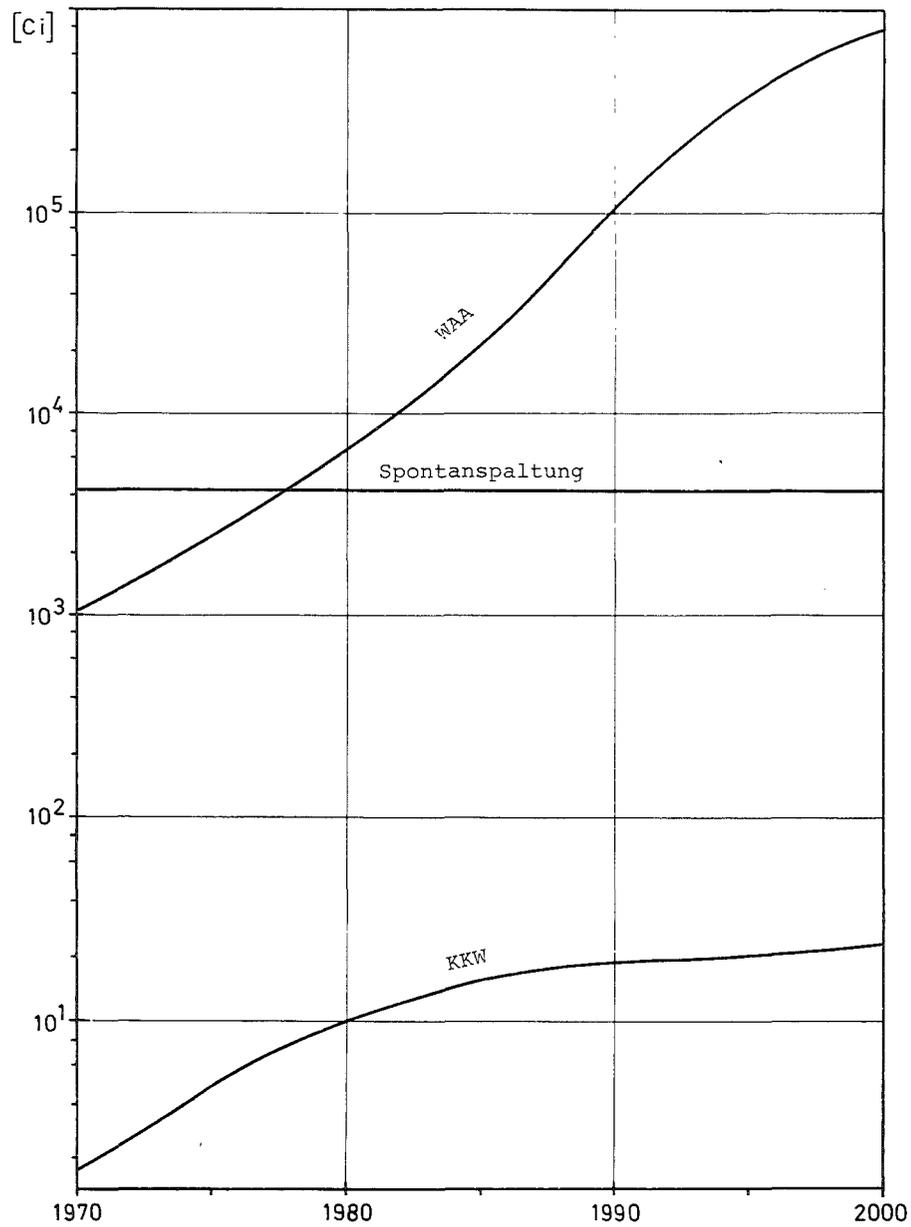


Abb.8-7 Global freigesetzte akkumulierte Ru-103-Aktivität aus natürlicher Entstehung und aus kerntechnischen Anlagen bis zum Jahr 2000

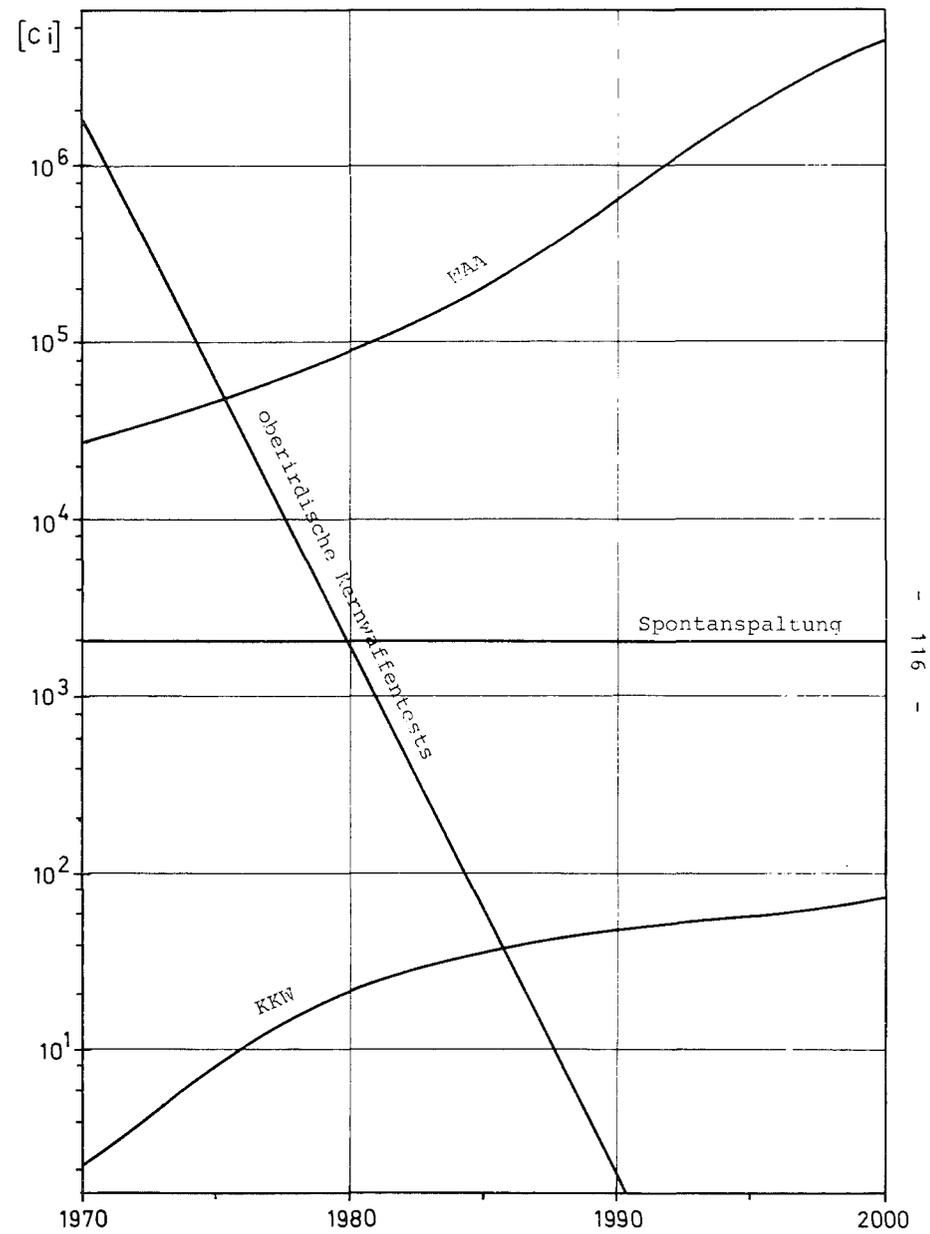


Abb.8-8 Global freigesetzte akkumulierte Ru-106-Aktivität aus natürlicher Entstehung, oberirdischen Kernwaffentests und aus kerntechnischen Anlagen bis zum Jahr 2000

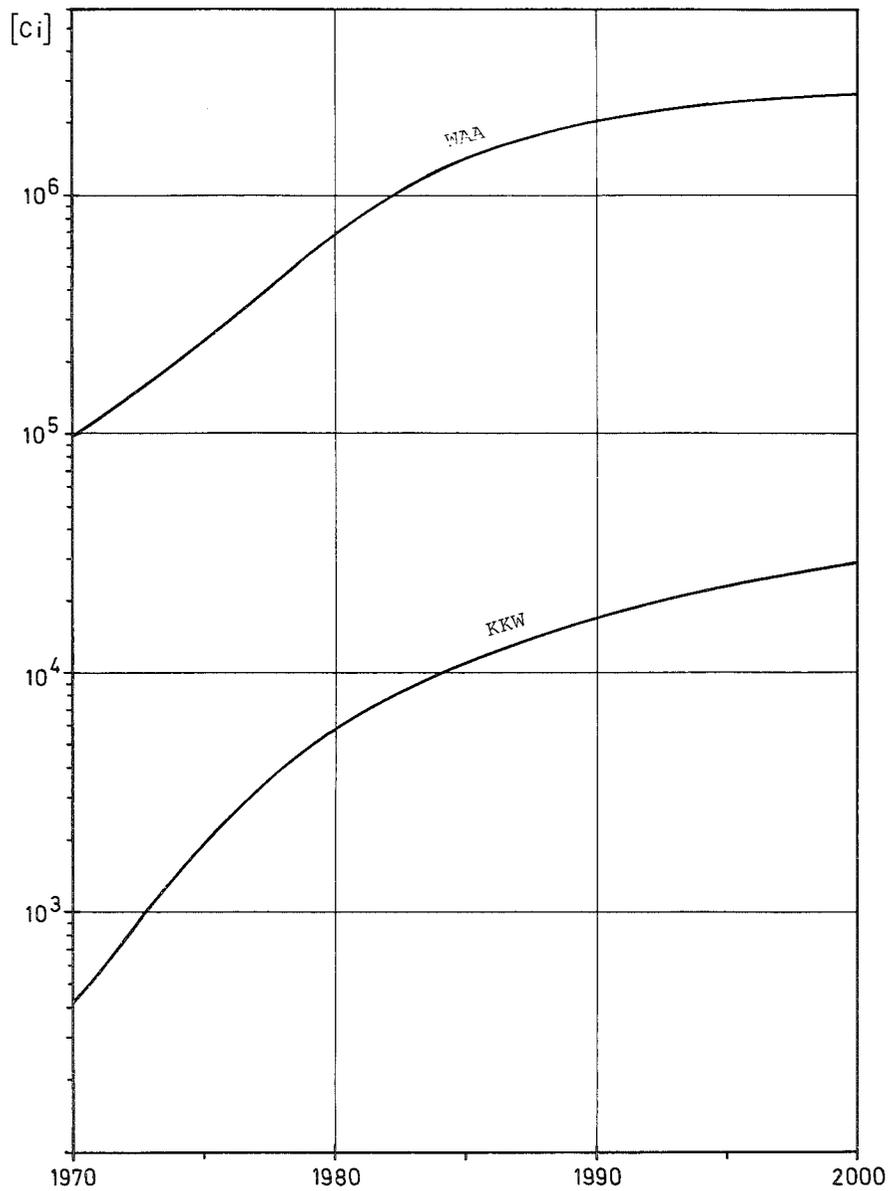


Abb.8-9 Global freigesetzte akkumulierte Cs-134-Aktivität aus kerntechnischen Anlagen bis zum Jahr 2000

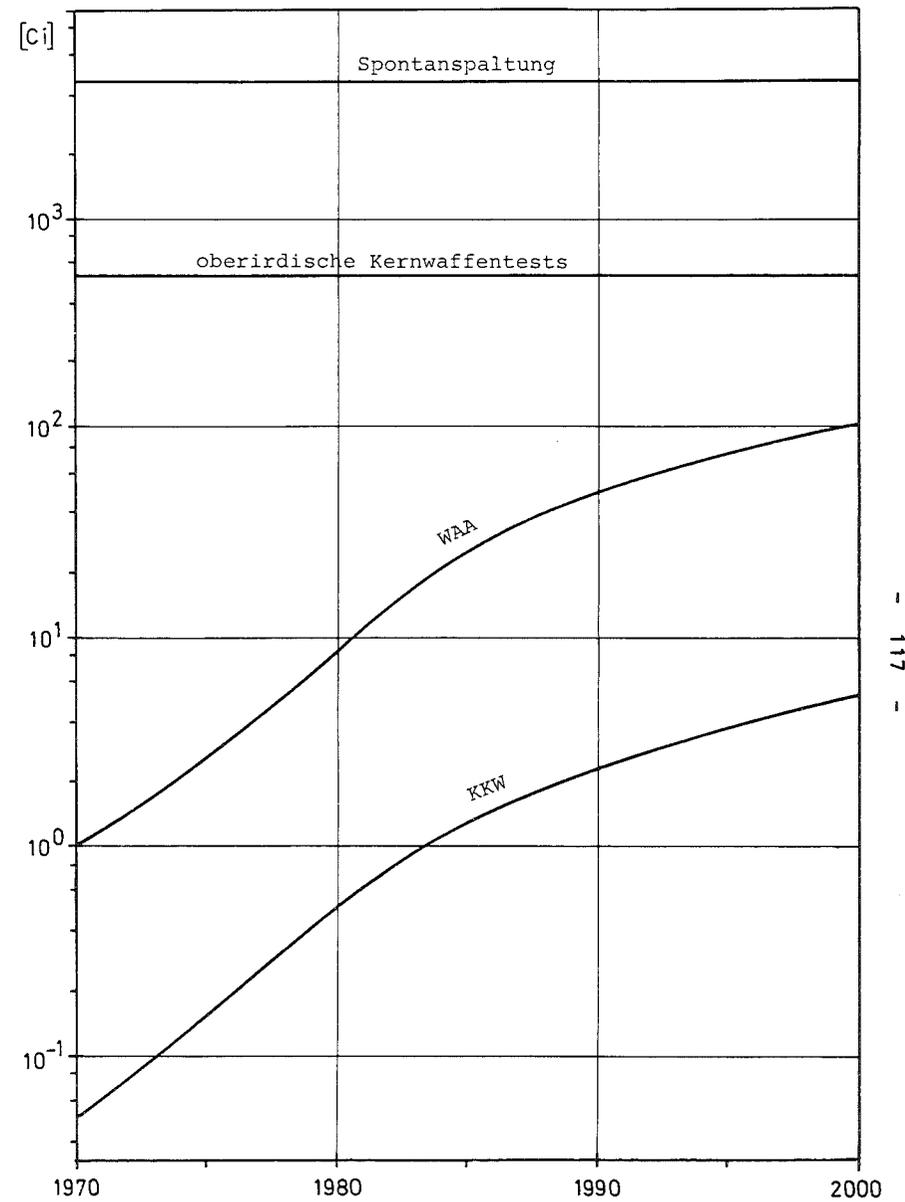


Abb.8-10 Global freigesetzte akkumulierte Cs-135-Aktivität aus natürlicher Entstehung, oberirdischen Kernwaffentests und aus kerntechnischen Anlagen bis zum Jahr 2000

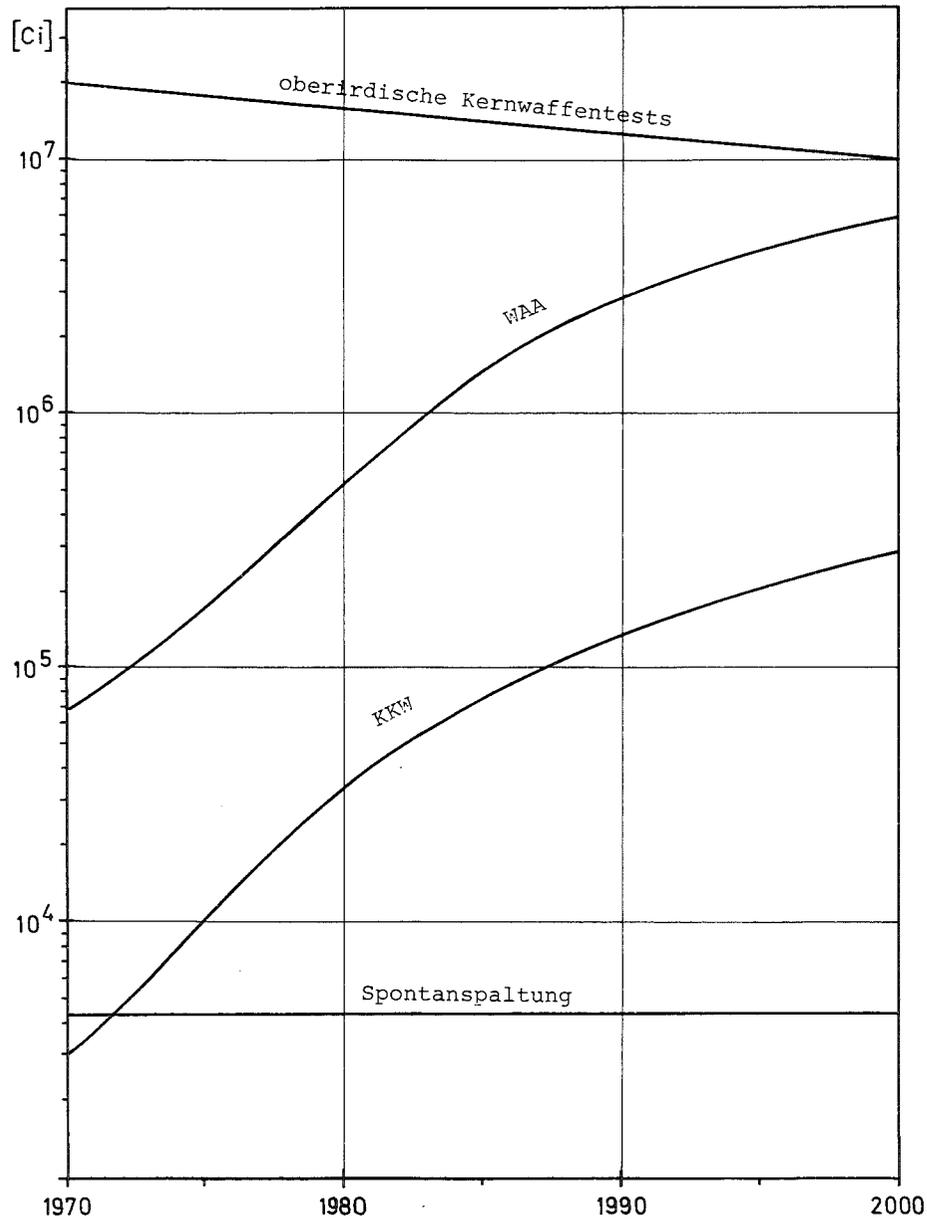


Abb.8-11 Global freigesetzte akkumulierte Cs-137-Aktivität aus natürlicher Entstehung, oberirdischen Kernwaffentests und aus kerntechnischen Anlagen bis zum Jahr 2000

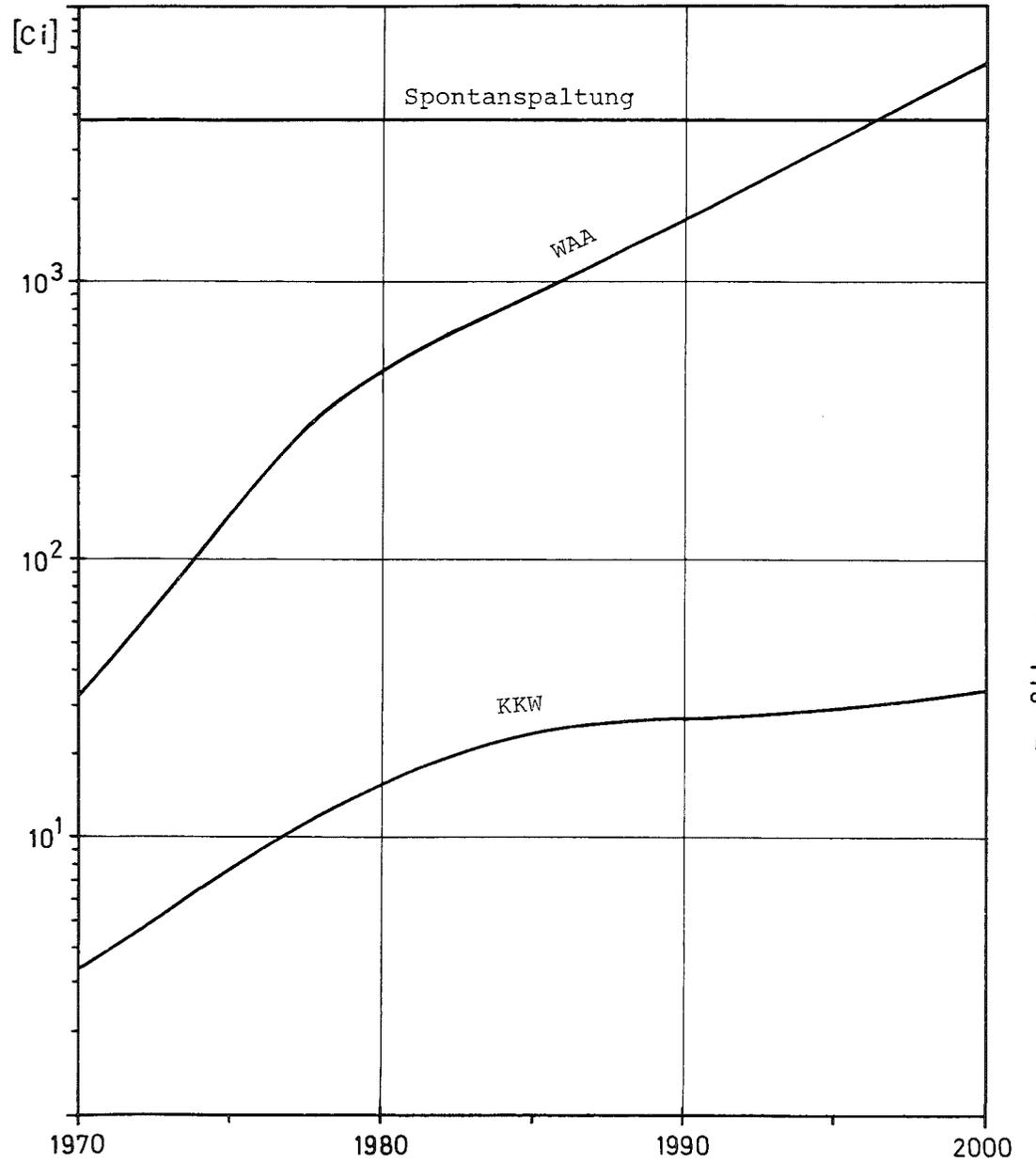


Abb.8-12 Global freigesetzte akkumulierte Ce-141-Aktivität aus natürlicher Entstehung und aus kerntechnischen Anlagen bis zum Jahr 2000

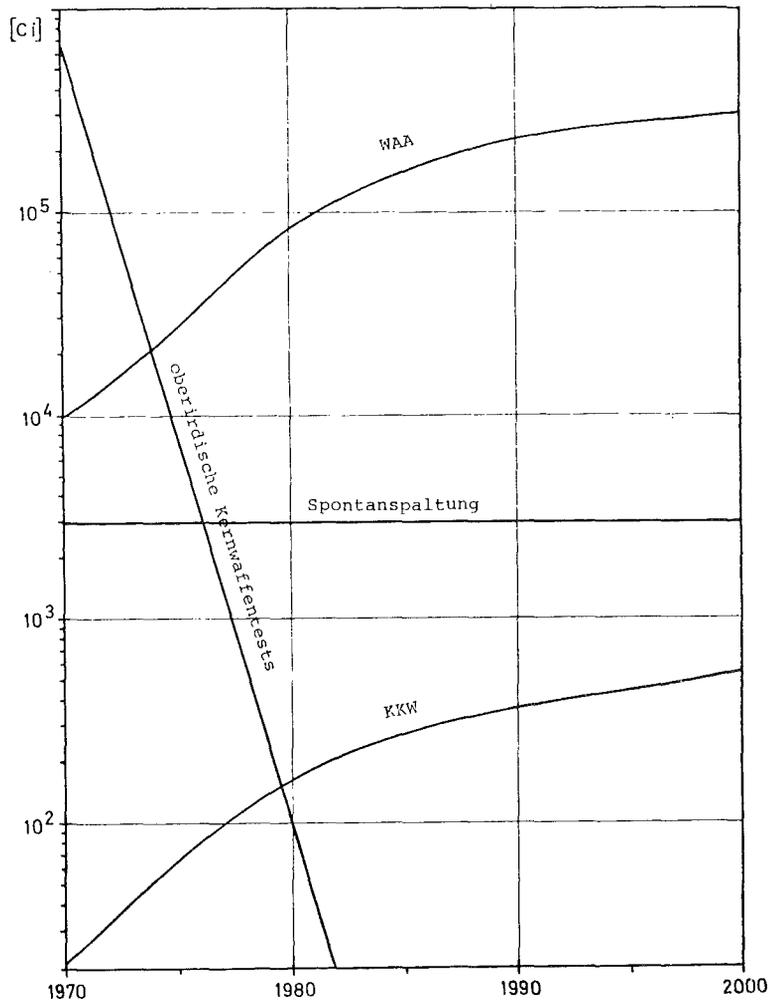


Abb.8-13 Global freigesetzte akkumulierte Ce-144-Aktivität aus natürlicher Entstehung, oberirdischen Kernwaffentests und aus kerntechnischen Anlagen bis zum Jahr 2000

Die Cs-137-Konzentration betrug 0,14 bis 0,01 pCi/l, diejenige von Ru-Rh-106 2,42 bis 0,20 pCi/l /218/. Aus Abb.8-14 ist die Abnahme der Sr-90-Konzentration vom Regen über Flußwasser und Uferfiltrat bis zum Grundwasser ersichtlich. Die Konzentration im Grundwasser beträgt nur etwa 1/100 derjenigen im Regen. Dies ist auf die fast vollständige Bindung von Strontium im Boden zurückzuführen /49/.

Im Jahr 2000 werden die durch kerntechnische Anlagen freigesetzten radioaktiven Strontiumisotope nur etwa $10^{-16}\%$ des natürlichen stabilen Strontium ausmachen. Die entsprechenden Werte für die Rutheniumisotope liegen bei $10^{-12}\%$, für die Cäsiumisotope bei $10^{-14}\%$ und für die Cerisotope bei $10^{-17}\%$.

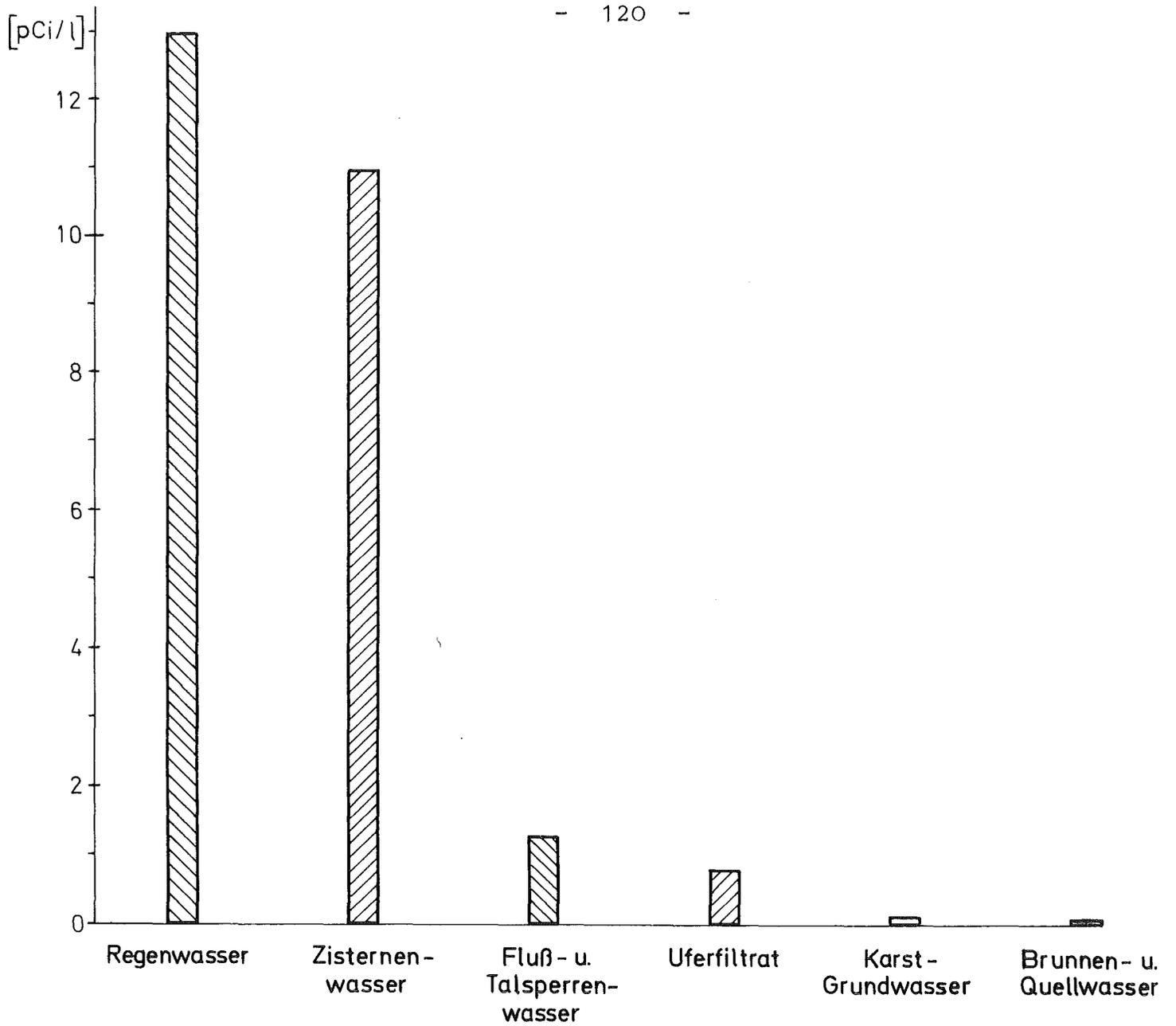


Abb.8-14 Mittlerer Sr-90-Gehalt verschiedener Wasservorkommen (1963-1966, BR Deutschland) /49/

$$\left(1 \frac{\text{pCi}}{\text{l}} = 10^{-9} \frac{\mu\text{Ci}}{\text{cm}^3} \right)$$

Durch Fallout aus Kernexplosionen erwartete Strahlendosen

Abschließend sind in Tabelle 8-8 einige aufgrund des Fallouts der Kernexplosionen zu erwartende Strahlendosen langlebiger Nuklide zusammengestellt. Die Dosis durch Sr-90 wurde im UNSCEAR-Bericht von 1969 /24/ gegenüber demjenigen von 1972 /22/ etwas überschätzt, die Dosis durch Cs-137 dagegen unterschätzt. Radionukliden wie Cs-137, die durch äußere γ -Strahlung zur Ganzkörper-Strahlenbelastung beitragen und sich in den oberen Bodenschichten akkumulieren, mißt man neuerdings größere Bedeutung bei. Nach Angaben von Terpilak u.a. /240/ ist Cs-137 das wichtigste Nuklid bei äußerer γ -Strahlung. Durch die UNSCEAR-Abschätzung in Tabelle 8-8 wird bestätigt, daß etwa 2/3 der gesamten Dosis durch Cs-137 von äußerer γ -Strahlung verursacht wird und nur etwa 1/3 über die Ingestion (vgl. Abschnitt 3.1.1). Cs-137 scheint den Hauptbeitrag zur Gesamtkörper-Dosis zu leisten /22/.

Für Ru-106 und Ce-144 liegen keine Daten über zu erwartende Strahlendosen vor. Wahrscheinlich wird ihnen aufgrund ihrer kürzeren Halbwertszeiten keine so große Bedeutung beigemessen. Ru-106 wandert schneller durch den Erdboden und verbleibt nicht in dem Ausmaß an der Erdoberfläche wie Cs-137. Für Sr-89 liegt im UNSCEAR-Bericht von 1969 /24/ eine Abschätzung vor, wonach die zu erwartende Knochenmarksdosis dieses Nuklides weniger als 1 mrad betragen soll.

Tabelle 8-8 Durch Fallout aus Atomwaffentests erwartete Strahlendosen [$\bar{\text{mrad}}$]
(gesamte Lebenszeit)

Bestrahlungsart	Sr-90		Cs-137	Geltungsbereich	Autor (Jahr)
	Knochenhaut	Knochenmark	Gesamtkörper		
äußere Bestrahlung			59 (36)* 16 (8) 40	nördl. Temperaturzone südl. Temperaturzone Welt	UNSCEAR (1972)/22/
	85 (130) 23 (28) 57	62 (64) 17 (14) 42	26 (21) 7 (4) 18	nördl. Temperaturzone südl. Temperaturzone Welt	
innere Bestrahlung			15	Großbritannien	Godfrey, Vennart (1968) /21/
	170**		17,5	USA	Gustafson, Miller (1969) /23/

* in Klammern jeweils die Daten aus dem UNSCEAR-Bericht von 1969 /24/

** gilt für Knochen

9. Zusammenfassung

Neben Tritium, den Jodisotopen und radioaktiven Edelgasen stellen die langlebigen radioaktiven Isotope der Elemente Strontium (Sr-89, Sr-90), Ruthenium (Ru-103, Ru-106), Cäsium (Cs-134, Cs-135, Cs-137) und Cer (Ce-141, Ce-144) eine weitere wichtige Nuklidgruppe dar.

Diese Isotope entstehen

- a) bei der Spontanspaltung schwerer Kerne in der Erdkruste. Das globale Sättigungsinventar der einzelnen Isotope liegt im Bereich von 2 bis $4 \cdot 10^6$ Ci. Man nimmt an, daß davon etwa 1 ‰ durch Verwitterung und ähnliche Prozesse freigesetzt werden und dann am Kreislauf der Biosphäre teilnehmen.
- b) bei Kernwaffenexplosionen. Bei den bisherigen Explosionen wurden etwa $2 \cdot 10^7$ Ci an Sr-90 und $3 \cdot 10^7$ Ci an Cs-137 erzeugt. Nur diese beiden langlebigen Nuklide sind heute (ca. 11 Jahre nach Unterzeichnung des Teststoppabkommens) noch von Bedeutung. Der Fallout führte zu einer globalen Verteilung.
- c) bei Kernspaltung und Neutroneneinfang in Kernkraftwerken. Sie werden teilweise aus diesen Anlagen und den Wiederaufarbeitungsanlagen freigesetzt. Ablagerungs- und Akkumulationsvorgänge finden in lokalen bis regionalen Bereichen statt.

Die in dieser Arbeit erfaßten Nuklide fallen bei der Kernspaltung mit relativ hoher Ausbeute als Spaltprodukte an. Es wurde die Erzeugung in den Brennstäben aufgrund neuerer Spaltausbeutenberechnet und das Verhalten der Nuklide in den verschiedenen Reaktortypen untersucht. Dabei zeigt es sich, daß im Vergleich mit den übrigen hier betrachteten Elementen die Freisetzungsrates von Cäsium ins Kühlmittel besonders hoch ist, da es im Brennstoff in relativ flüchtiger Form vorliegt (Cs oder Cs_2O) und außerdem das Edel-

gas Xenon als direkten Vorläufer hat. Die Abgaben der Radionuklide an die Umgebung, die zur Zeit technisch nicht vollständig vermeidbar sind, erfolgen vorwiegend mit dem Abwasser. Bei einem 1000 MWe-Leichtwasserreaktor sind es jährlich etwa 0,05 Ci Sr-90, 0,01 Ci Ru-106, 2,5 Ci Cs-134, 4 Ci Cs-137 und 0,1 Ci Ce-144. Die jährlichen Abgaben mit der Abluft in Form von Aerosolen sind im Vergleich dazu gering (jeweils etwa 0,001 Ci Sr-90, Ru-106 und Ce-144, etwa 0,004 Ci Cs-134 und 0,007 Ci Cs-137). In Übereinstimmung mit Schwibach /241/ kann festgestellt werden, daß zur Zeit nur grobe Abschätzungen der Aktivitätsabgaben möglich sind. Die aus den Abluftabgaben eines 1000 MWe-LWR resultierenden Strahlendosen betragen unter der Annahme eines Ausbreitungsfaktors von $J = 5 \cdot 10^{-7} \frac{\text{s}}{\text{m}^3}$; $2,4 \cdot 10^{-3}$ mrem/a durch Inhalation von Sr-90 (Knochendosis), $2,3 \cdot 10^{-3}$ mrem/a durch äußere γ -Strahlung von am Erdboden abgelagertem Cs-134 und Cs-137 (Ganzkörperdosis) nach 5 Jahren und $1,3 \cdot 10^{-2}$ mrem/a nach 50 Jahren. Die über den Milchpfad verursachten Strahlenbelastungen liegen bei $4 \cdot 10^{-2}$ mrem/a durch Sr-90 (Knochendosis) und $1 \cdot 10^{-3}$ mrem/a durch Cs-137 (Ganzkörperdosis). Bei den genannten Dosiswerten handelt es sich um konservative Abschätzungen, wobei für alle Bestrahlungspfade jeweils der Aufpunkt mit der höchsten Aktivitätskonzentration zugrundegelegt wurde.

Die Aktivitätsabgaben von Magnox-Reaktoren mit dem Abwasser liegen um ein bis zwei Größenordnungen über denen von Leichtwasserreaktoren gleicher Größe. Hochtemperaturreaktoren geben Aktivitätsmengen der gleichen Größenordnung ab wie Leichtwasserreaktoren, natriumgekühlten schnellen Brutreaktoren soll keine Abwasseraktivität abgegeben werden.

Bei der Wiederaufarbeitung des Brennstoffes eines 1000 MWe-Reaktors werden höhere Aktivitätsmengen freigesetzt als während des Betriebes dieses Kraftwerkes. Zum weitaus größten Teil erfolgt auch bei Wiederaufarbeitungsanlagen die Freisetzung der Nuklide auf dem Abwasserwege. Bei der jährlichen Aufarbeitung des Brennstoffes eines 1000 MWe-LWR

(36,5 t/a) betragen die auf diesem Wege freigesetzten Aktivitätsmengen etwa: 40 Ci Sr-90, 220 Ci Ru-106, 35 Ci Cs-134, 40 Ci Cs-137 und 30 Ci Ce-144.

Für eine 1500 t/a LWR-Brennstoff aufarbeitende WAA wurden die resultierenden Strahlendosen berechnet. Mit einem Ausbreitungsfaktor $J = 5 \cdot 10^{-7} \frac{\text{s}}{\text{m}^3}$ ergibt sich für Sr-90 ($DF=4 \cdot 10^8$) eine Inhalationsdosis von etwa 1 mrem/a. Die beiden Cäsiumisotope Cs-134 und Cs-137 ($DF = 4 \cdot 10^8$) tragen bei Ablagerung am Erdboden durch äußere γ -Strahlung zur Ganzkörperdosis mit etwa 0,2 mrem/a nach 5 Jahren bei, nach 50 Jahren sind es etwa 0,8 mrem/a. Die Ingestionsdosen betragen: 16 mrem/a durch Sr-90 und $6 \cdot 10^{-2}$ mrem/a durch Cs-137.

Basierend auf einer Prognose über die bis zum Jahr 2000 installierte Kernkraftwerksleistung und den zur Zeit üblichen Dekontaminationsfaktoren wurde die akkumulierte Aktivität der aus sämtlichen kerntechnischen Anlagen freigesetzten Nuklide berechnet. Im Jahr 2000 werden es aufgrund der Abschätzungen weltweit etwa $2,4 \cdot 10^6$ Ci Sr-90, $5 \cdot 10^6$ Ci Ru-106, $2,6 \cdot 10^6$ Ci Cs-134, $6 \cdot 10^6$ Ci Cs-137 und $3 \cdot 10^5$ Ci Ce-144 sein. Die freigesetzten Mengen der langlebigen Nuklide Sr-90 und Cs-137 liegen unter denen, die aus oberirdischen Kernwaffenversuchen bis zu diesem Zeitpunkt noch vorhanden sein werden. Eine Unterschreitung der Werte für kerntechnische Anlagen bei der geplanten Verbesserung von Filtrations- und Aufbereitungsverfahren erscheint durchaus möglich.

Zur Klärung der Frage, nach welchen Gesetzmäßigkeiten die aus kerntechnischen Anlagen lokal freigesetzten Nuklide über die lokale und regionale Verbreitung hinaus in den globalen Kreislauf aufgenommen werden, bedarf es noch weiterer Untersuchungen.

Auf die Endlagerung radioaktiver Abfälle und ihre Probleme wird im Anhang eingegangen. Die langlebigen Nuklide Sr-90 und Cs-137 werden etwa 10% der gesamten bis zum Jahr 2000 anfallenden Abfallaktivität ausmachen.

10. Anhang

10.1 Definition von Aerosolen

Als Aerosol wird ein Gas bezeichnet, das feste oder flüssige Schwebstoffe enthält. Die Partikel liegen in sehr fein verteilter Form vor, sie können längere Zeit in der Schweben bleiben /32/. Der Durchmesser der Teilchen erstreckt sich über 7 Größenordnungen, er reicht von 10^{-4} μm bis 10^3 μm /242/. Von Kernwaffenexplosionen aus der Stratosphäre stammende Partikel haben in Erdbodennähe einen Durchmesser von 0,5 μm bis 1 μm /243/. Die Form der Partikel ist oft sehr unregelmäßig /244/. Ein Aerosol läßt sich als kolloides System auffassen, bei dem das Dispersionsmittel ein Gas ist /32/. Die dynamische Stabilität eines Aerosols wird hauptsächlich von 3 Faktoren beeinflusst /244/: Absinken durch Gravitation, Brownscher Diffusionsbewegung und Anlagerung der Partikel aneinander. Enthält das Aerosol flüssige Schwebeteilchen, so bezeichnet man es als einen Nebel. Bei festen Teilchen, die aus einem Verbrennungsprozeß stammen, spricht man von Rauch. Auch staubhaltige Luft stellt ein Aerosol dar. Oft tragen die Teilchen eines Aerosols eine elektrische Ladung. Die Art der Teilchen und ihre Aufladung sind in der Atmosphäre von entscheidender Bedeutung für das Wettergeschehen. Feste Aerosolteilchen dienen beispielsweise als Kondensationskeime bei der Bildung von Wolken und Nebel /32/.

Radioaktive Aerosole setzen sich zusammen aus nichtradioaktiven und aus radioaktiven Stäuben. An die nichtradioaktiven Stäube lagern sich kondensierte radioaktive Dämpfe oder die aus gasförmigen Nukliden entstandenen festen Zerfallsprodukte an /71/. In KKW versteht man unter radioaktiven Aerosolen nichtgasförmige luftgetragene Nuklide (ausschließlich Jod /118/), die durch Anlagerung an Staubpartikel filtrierbar werden /150/.

Zur Aerosolentstehung in KKW kommt es hauptsächlich durch Kühlmittelleckagen im Primärsystem. Die Zusammensetzung

des Aerosolgemisches hängt stark von der Art der Leckage (Dampf oder Wasser) ab. Bei einer undichten Dampfleitung sind die austretenden Edelgase selbst unbedeutend, im Aerosolgemisch sind hauptsächlich Folgeprodukte der Krypton- und Xenonisotope, die Nuklide Rb-87, Rb-88 und Cs-138, zu finden. Bei einer Wasserleckage wird durch das aus der Leckstelle verdampfende heiße Wasser der Jodanteil für die Aufenthaltsdauer von Personen bestimmend /245/.

10.2 Berechnung der weltweit aus kerntechnischen Anlagen freigesetzten akkumulierten Aktivität

Die Berechnung der weltweit aus KKW und WAA bis zum Jahr 2000 freigesetzten akkumulierten Aktivität wurde mit Hilfe eines Rechenprogrammes* durchgeführt. Basis für die Rechnung ist eine Prognose der bis zum Jahr 2000 in der Welt installierten Kernkraftwerksleistung /237/ (vgl. Abb.8-4). Die in Abb.8-4 dargestellten Kurven für die einzelnen Reaktortypen wurden zunächst analytisch angenähert. Für LWR ergibt sich /246/:

$$y = 100 \left(\frac{x}{5}\right)^2 \cdot e^{-\frac{x}{36,2}} \quad (10-1)$$

Für HTGR lautet der analytische Ausdruck /246/:

$$y = 100 \left(\frac{x}{5}\right)^2 \cdot e^{-\frac{x}{200}} \quad (10-2)$$

Mit diesen Beziehungen ist eine gute Näherung möglich. Unter Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalls und der Anfangsbedingungen erhält man daraus durch Integration die zum Zeitpunkt t weltweit akkumulierte Aktivität $N_i(t)$ des Nuklides i:

$$N_i(t) = K_1 C_{1/2i} \left\{ \left[\frac{t^2}{\lambda_i - \frac{1}{K_2}} - \frac{2t}{(\lambda_i - \frac{1}{K_2})^2} + \frac{2}{(\lambda_i - \frac{1}{K_2})^3} \right] e^{-\frac{t}{K_2}} - \frac{2}{(\lambda_i - \frac{1}{K_2})^3} e^{-\lambda_i t} \right\} \quad (10-3)$$

* Für die Aufstellung des Rechenprogrammes bedanke ich mich bei Herrn DP. M. Schückler.

Es werden folgende Bezeichnungen verwendet:

K_1 bis K_5 = Proportionalitätsfaktoren

C_{1i} bis C_{5i} $\left[\frac{Ci}{1000 \text{ MWe a}^{-1}} \right]$ = jährliche Aktivitätsfreisetzungen eines 1000 MWe-Reaktors (Lastfaktor 0,8) bzw. Aktivitätsfreisetzungen durch Aufarbeitung des Brennstoffs dieses Reaktors

λ_i $\left[\text{a}^{-1} \right]$ = Zerfallskonstante des Nuklids i

Für AGR/Magnox-Reaktoren und PHWR wurde die Kurve bis 1985 bzw. 1990 durch eine Gerade angenähert. Für $N_i(t)$ ergibt sich:

$$N_i(t) = K_3 C_{3/4i} \left(\frac{t}{\lambda_i} - \frac{1}{\lambda_i^2} + \frac{e^{-\lambda_i t}}{\lambda_i^2} \right) \quad (10-4)$$

Ab 1985 bzw. 1990 wurde die an AGR/Magnox-Reaktoren bzw. PHWR installierte Leistung als konstant angenommen. Man erhält die folgende Beziehung:

$$N_i(t) = N_{oi} e^{-\lambda_i t} + \frac{K_4 C_{3/4i}}{\lambda_i} (1 - e^{-\lambda_i t}) \quad (10-5)$$

N_{oi} $\left[\bar{C}_i \right]$ = bis zum Zeitpunkt $t = 15a$ bzw. $t = 20a$ akkumulierte Aktivität des Nuklids i (aus Gleichung (10-4))

Die Kurve für LMFBR läßt sich durch eine quadratische Funktion annähern /246/:

$$y = 250 \left(\frac{x}{7,5} \right)^2 \quad (10-6)$$

Durch Integration erhält man daraus:

$$N_i(t) = K_5 C_{5i} \left(\frac{t^2}{\lambda_i} - \frac{2t}{\lambda_i^2} + \frac{2}{\lambda_i^3} - \frac{2}{\lambda_i^3} e^{-\lambda_i t} \right) \quad (10-7)$$

Die in der Rechnung verwendeten Daten sind Tabelle 10-1 zu entnehmen. Es wurden nur Aktivitätsabgaben mit dem Abwasser berücksichtigt. Da für HTGR keine Abgabedaten vorliegen, wurden für diesen Reaktortyp näherungsweise die gleichen Abgaben wie bei LWR angenommen. LMFBR sollen voraussichtlich keine Abwasseraktivität abgeben (vgl. Abschnitt 6.3.4). Die Aktivitätsfreisetzungen durch Wiederaufarbeitung von Brennstoff wurden mit Hilfe der pro t Brennstoff enthaltenen Aktivitätsmengen (aus Tab. 7-2) sowie der in Tabelle 7-5 abgeschätzten Dekontaminationsfaktoren für WAA und der jährlich aufzuarbeitenden Brennstoffmenge eines 1000 MWe-Reaktors (aus Tab. 7-1) berechnet. Dabei wurde eine Abklingzeit von 150 d für LWR-, AGR- und HTGR-Brennstoff sowie 30 d für LMFBR-Brennstoff zugrunde gelegt. Der Wert t_0 gibt das Jahr an, in welchem (für die durchgeführte Rechnung) die Aktivitätsfreisetzung aus den jeweiligen KKW bzw. WAA beginnt. Für WAA wurde dabei eine zeitliche Verzögerung gegenüber KKW berücksichtigt, da der Brennstoff erst nach einer bestimmten Standzeit im Reaktor zur Aufarbeitung kommt. Der Brennstoff von PHWR (Natururan) wird in Kanada nicht aufgearbeitet /198/.

Die durchgeführte Rechnung stellt in den Jahren vor etwa 1980 eine teilweise große Unterschätzung dar, weil z.B. bereits lange vor 1973 Magnox-Brennstoff aufgearbeitet wurde (vgl. Tab. 7-4). Die Kurven wurden daher aufgrund der über Aktivitätsfreisetzungen aus WAA und KKW vorliegenden Daten korrigiert.

Nach Angaben von Yook u. a. /20/ soll bis zum Jahr 2000 in den USA eine akkumulierte Cs-137-Aktivität von etwa $1,5 \cdot 10^6$ Ci aus kerntechnischen Anlagen freigesetzt werden. Aus der vorliegenden Arbeit ergibt sich für die gesamte Welt ein Wert von etwa $6 \cdot 10^6$ Ci. Da in den USA etwa die Hälfte der insgesamt in der Welt installierten Kernkraftwerks- und Wiederaufarbeitungskapazität vorhanden sein wird, ergibt sich eine recht gute Übereinstimmung beider Abschätzungen.

Tabelle 10-1 Zur Aktivitätsberechnung verwendete Daten

	LWR		HTGR		AGR/Magnox		PHWR	LMFBR
	$K_1 = 4$ $K_2 = 36,2$		$K_1 = 4$ $K_2 = 200$		$K_3 = 2,67$ $K_4 = 40$ $N_0 = N(t=15a)$		$K_3 = 3,5$ $K_4 = 70$ $N_0 = N(t=20a)$	$K_5 = 4,45$
Nuklid	C_1 (KKW)	C_1 (WAA)	C_2 (KKW)	C_2 (WAA)	C_3 (KKW)	C_3 (WAA)	C_4 (KKW)	C_5 (WAA)
Sr-89	0,5	50	1	35	7	2000	0,001	160
Sr-90	0,05	40	0,1	30	5	2400	0,05	10
Ru-103	0,02	170	0,02	100	2	1500	0,2	4500
Ru-106	0,01	220	0,01	140	0,5	2000	0,01	3100
Cs-134	2,5	35	2,5	30	40	20000	30	7,5
Cs-135	0,00006	0,0006	0,00006	0,0005	0,002	0,12	0,001	0,0003
Cs-137	4,0	40	4,0	30	120	8000	90	26
Ce-141	0,03	2	0,03	1,2	4	200	0,25	36
Ce-144	0,1	30	0,1	20	5	4500	0,1	31
Start- jahr t_0	1970	1972	1980	1982	1970	1973	1970	1985

10.3 Technische Verwendungsmöglichkeiten langlebiger Spaltprodukte

Die Abtrennung langlebiger Nuklide aus dem radioaktiven Abfall der Wiederaufarbeitungsanlagen zwecks nutzbringendem Einsatz in der Technik ist in der Diskussion und wird zum Teil bereits durchgeführt. Einzelne Isotope lassen sich aus dem Abfallgemisch mit vertretbarem technischen und finanziellen Aufwand nicht isolieren, in der Praxis ist nur die Gewinnung eines Isotopengemisches eines Elementes möglich. Ein für technische Zwecke gut geeignetes Nuklid kann evt. wegen anderer störender Isotope unbrauchbar sein /183/.

Sr-90

Die Vorteile dieses Nuklides sind seine große Halbwertszeit, seine relativ hohe spezifische Leistung (0,96 W/g) sowie seine kostenmäßig günstige Gewinnung. Sr-90 fällt in WAA zu etwa 50% unter den gesamten Strontiumisotopen an. Der reine β -Strahler ist bisher am häufigsten in Nuklidbatterien (Leuchtfeuer, schwimmende Wetterstationen, Unterwasseraufgaben) verwendet worden. Da der Nachfolger von Sr-90 (Y-90) eine hohe β -Energie (2,27 MeV) aussendet, ist eine relativ dicke Abschirmung erforderlich. Durch Überführung in Strontiumtitanat, das in Wasser nur sehr wenig löslich ist und deshalb kaum am Biozyklus teilnimmt, wird die hohe Toxizität von Sr-90 verringert. Es bestehen gute Verwendungsmöglichkeiten in Heizaggregaten an entlegenen Punkten der Erde, in Meeren oder im Weltraum. Der Bedarf an Sr-90 in der Bestrahlungstechnik wird wahrscheinlich gering sein /183/.

Ru-106

Bei Uranbrennstoff fällt Ru-106 mit geringer Isotopenreinheit an, bei Plutoniumbrennstoff beträgt sie etwa 20%. Die Gewinnungskosten für Ru-106 sind relativ hoch. Die spezifische Leistung dieses Nuklids liegt bei 33,1 W/g. Aufgrund

der relativ kurzen Halbwertszeit ist sein Einsatz auf ca. 1 Jahr befristet. Über bisherige technische Anwendungen ist nichts bekannt, Ru-106 könnte evt. als Wärmequelle dienen. Nach Abklingen der Radioaktivität (ca. 30 Jahre) könnte Ruthenium als chemischer Prozeßkatalysator oder als Legierungszusatz verwendet werden /247/.

Cs-137

Cs-137 fällt in WAA etwa in gleichem Ausmaß an wie Sr-90, von Vorteil ist seine um 2 Größenordnungen geringere Radio-toxizität. Die Isotopenreinheit von Cs-137 beträgt etwa 35%, seine spezifische Leistung nur 0,42 W/g /247/. Cs-137 hat für Nuklidbatterien ungünstigere Eigenschaften als Sr-90, wegen seines γ -strahlenden Nachfolgers Ba-137m (0,662 MeV) ist eine starke Abschirmung erforderlich. Bisher fand Cs-137 in Batterieform bei Unterwasseraufgaben Verwendung. In der Diskussion ist ein teilweiser Ersatz von Co-60 durch Cs-137 (bzw. Cs-134/Cs-137) als γ -Strahlungsquelle /248,249,250,251,252/. Gegenüber Co-60 ($T_{1/2}=5,27a$) besitzt Cs-137 eine niedrigere spezifische Aktivität, seine γ -Energie (0,662 MeV) ist niedriger als die von Co-60 (1,17 MeV). Diese beiden Eigenschaften sind von Nachteil. Bei zusätzlicher Anwesenheit von Cs-134 zu Cs-137 läßt sich die spezifische Leistung dieser γ -Quelle erhöhen.

In Isotopen-Bestrahlungsanlagen kann Cs-137 zu folgenden Zwecken eingesetzt werden:

- a) Sterilisation von Geräten und Materialien für den medizinischen Bedarf
- b) Polymerisation von Monomeren (Herstellung von Polymerholz und Polymerbeton)
- c) Keimhemmung, Pasteurisierung und Sterilisierung von Lebens- und Futtermitteln
- d) chemische Synthesen

Cs-137 hat hierbei gegenüber Co-60 den Vorteil, daß seine Aktivität über mehrere Jahre nahezu konstant bleibt. In den USA werden zur Zeit jährlich etwa 2 MCi an Cs-137 aus radioaktivem Abfall abgetrennt. In der WAK wäre eine Abtrennung von etwa 2,4 MCi Cs-137 pro Jahr möglich /183/. Nach Angaben von Wood /251/ besteht 1980 eine jährliche Marktnachfrage von etwa 24 MCi Cs-134/Cs-137 oder 16 MCi Co-60. Die Übernahme des Marktanteils von Co-60 durch Cs-137 erscheint wenig aussichtsreich, zumal mit Co-60 schon 15-jährige Erfahrungen gesammelt werden konnten, während Cs-137 noch nicht in der Industrie erprobt ist /250/.

Ce-144

Die Gewinnungskosten für Ce-144 sind relativ niedrig, seine Leistungsdichte ist trotz geringer Isotopenreinheit hoch. Von Nachteil sind die relativ kurze Halbwertszeit und eine erforderliche dicke Abschirmung. Die spezifische Leistung von Ce-144 beträgt 25,6 W/g, die Einsatzzeit ist auf etwa 1 Jahr begrenzt. Bisher wurde dies Nuklid in Wetterstationen und bei der Versorgung von Satelliten verwendet /183/. Zukünftige großtechnische Anwendungsmöglichkeiten sind nicht in Aussicht.

Hauptsächlich dürften die beiden langlebigen Nuklide Sr-90 und Cs-137 zukünftig in der Technik Verwendung finden, Sr-90 als β -strahlende Wärmequelle (Nuklidbatterie), Cs-137 als γ -Strahlungsquelle bei der Durchführung strahlungstechnischer Prozesse, Sterilisation u.a.

10.4 Endlagerungs- und Beseitigungsmöglichkeiten für radioaktive Abfälle

Die bis zum Jahr 2000 in der gesamten Welt an Spaltprodukten anfallende akkumulierte Aktivität wird auf etwa 400 bis $600 \cdot 10^9$ Ci geschätzt. Davon sollen 20 bis $40 \cdot 10^9$ Ci auf Sr-90 und 30 bis $40 \cdot 10^9$ Ci auf Cs-137 entfallen /25,26,27/.

Zusammen haben diese beiden Nuklide einen Anteil von etwa 10% an der Abfallaktivität /253/. Etwa die Hälfte des gesamten Abfalls wird in den USA anfallen /20,186,254,255/.

Bisher sind unterschiedliche Methoden der Lagerung radioaktiver Abfälle gehandhabt worden bzw. noch in der Diskussion. An die jeweiligen Verfahren sind folgende Bedingungen zu stellen:

- 1) technologische Realisierbarkeit
- 2) niedrige aufzuwendende Kosten und Energie für den Transport zur Lagerstelle und für die Einlagerung
- 3) geringe Risiken beim Transport zur Lagerstelle
- 4) sicherer Ausschluß des Abfalls aus der Biosphäre für Jahrtausende (kein Eindringen von Wasser, keine geologischen Bewegungen)
- 5) ausreichende Möglichkeit der Wärmeabfuhr
- 6) Überwachungsmöglichkeit auf den Austritt von Radioaktivität
- 7) geringe Bevölkerungsdichte in der Umgebung der Lagerstelle

In Übereinstimmung mit McGrath /256/ kann festgestellt werden, daß es keine Abfallbehandlungsmethode gibt, die sämtliche Forderungen erfüllt. Die Lösung des Problems ist in einer Kombination verschiedener Verfahren zu suchen. Im folgenden wird auf die einzelnen Verfahren sowie deren Vor- und Nachteile kurz eingegangen.

10.4.1 Vorübergehende Lagerung

Bei der Wiederaufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe fallen mehr als 95% der Abfälle in flüssiger Form an /254/. Wegen der Wärmeabstrahlung der Spaltprodukte ist eine ständige Kühlung erforderlich. Bisher wurden die radioaktiven Flüssig-

keiten überwiegend in oberirdischen Stahlbehältern gelagert (z.B. USA, England). Wie die Erfahrung gezeigt hat, sind die Behälter jedoch stark korrosionsgefährdet. Radioaktivität kann außerdem bei Ausfall der Kühlung, Wasserstoff-Explosionen sowie durch externe Ursachen (Erdbeben, Sabotage u.a.) freigesetzt werden. Bei Ausfall der Kühlung würde sich der Abfall im Zentrum des Tanks nach 100 bis 200 h auf über 1000 °C erhitzen. Die flüchtigen Komponenten des Abfalls würden in die Atmosphäre freigesetzt, wegen ihres relativ niedrigen Dampfdruckes hauptsächlich die Cäsium- und Rutheniumisotope (bei Ausfall von Kondensator und Filter zu ca. 90% /256/).

In den USA sind zur Zeit etwa 320000 m³ an Spaltproduktlösungen eingelagert. Von den 198 Tanks der AEC wurden bisher 20 durch Korrosion undicht. Dabei sollen etwa 200000 Ci an Cs-137 freigesetzt worden sein. In Savannah River haben von 608 Kühlschlängen in den Tanks bisher 62 versagt /198,257/. Die AEC hat die Dauereinlagerung hochaktiver Flüssigkeiten inzwischen aufgegeben. Nach einer Zwischenlagerungszeit von nicht mehr als 5 Jahren sollen die Flüssigkeiten verfestigt werden. In Windscale (GB) sind bisher keine Tankleckagen bekannt geworden /26/. Auch dort soll mit der Verfestigung von radioaktiven Flüssigkeiten begonnen werden. Die Spaltprodukte sollen in Gläser eingeschmolzen und in Behältern versiegelt werden.

Zur Verfestigung flüssiger Abfälle wurden in den USA verschiedene Kalzinierungs- und Verbrennungsmethoden entwickelt, in Europa ist hauptsächlich die Verglasungsmethode untersucht worden /27/. Die Einlagerung in fester Form ist erheblich sicherer. Korrodiert ein Stahlbehälter mit festen Abfällen oder versagt die Kühlung, so werden wesentlich weniger Spaltprodukte freigesetzt als bei flüssigen Abfällen. Überwiegend sind dies die flüchtigen Cäsium- und Rutheniumisotope. Die Freisetzungsrates dieser Nuklide beträgt pro Stunde etwa 0,5 bis 1% des gesamten Inventars /256/.

In den USA ist der Bau von großen oberirdischen Stahl- und Betontanks zur langfristigen Lagerung (mehr als 100 Jahre)

verfestigter hochaktiver Abfälle geplant. Die Tanks sind gut zugänglich und lassen sich auf Aktivitätsfreisetzungen überwachen. Defekte Behälter können jederzeit ausgetauscht werden, eine Umlagerung an einen anderen Ort ist möglich. In den USA sind bis zum Jahr 2010 ca. $50 \cdot 10^9$ Ci an verfestigten Spaltprodukten mit einer Wärmeleistung von ca. 200 MW einzulagern /198/.

Eine Alternative zur Verfestigung stellt die Abtrennung verschiedener Radionuklide aus hochaktivem Abfall dar. Transurane eignen sich evt. als Energiequellen hoher spezifischer Leistung. Bei Abtrennung von Sr-90 und Cs-137 könnte die verbleibende Abfalllösung als mittelaktiver Abfall behandelt werden. Bisher gibt es **jedoch** nur geringe Verwendungsmöglichkeiten für diese Nuklide. Anstelle der Einzelnuclidabtrennung scheint in Zukunft evt. der direkte Einsatz verfestigter hochaktiver Spaltprodukte als Strahlenquelle möglich /258/.

10.4.2 Endgültige Lagerung

Die endgültige Lagerung kann i.a. nicht mehr rückgängig gemacht werden, da die Abfälle nicht mehr zugänglich sind. Das ist von großem Nachteil, wenn sich eine Lagerstelle nachträglich als ungeeignet herausstellen sollte.

a) Versenken im Meer

Dies Verfahren kann nur in großen Meerestiefen (>2000m) und Gebieten geringer Strömung praktiziert werden. Wegen der Korrosion der Stahlbehälter durch Salzwasser kommt es für hochaktive Abfälle nicht infrage. Von den USA wurden bis 1963 ca. 90000 Behälter mit einer Gesamtaktivität von etwa 61000 Ci im Meer versenkt /113/. Die natürliche Radioaktivität des Meeres beträgt zum Vergleich etwa $5 \cdot 10^{11}$ Ci /213/. Großbritannien versenkte ebenfalls radioaktiven Abfall. Die USA gaben diese Methode wegen zu hoher Kosten seit 1963 auf. Die Sicherheit dieses Verfahrens erscheint zudem gering (vor der spanischen Küste wurden z.B. von den

USA versenkte Abfallbehälter angetrieben).

b) Vergraben und Versickern im Erdboden

In den USA wurde das Versenken im Meer durch Vergraben und Versickern von Abfällen im Erdboden abgelöst. Möglich ist dies nur bei schwach- und mittelaktiven Abfällen und in geeigneten regenarmen Gebieten. Das Grundwasser darf nicht gefährdet werden. Wegen der klimatischen Verhältnisse scheidet dies Verfahren für Mitteleuropa aus /113/. In Hanford (USA) wurden Abwässer in spezielle Versickerungsanlagen abgeleitet. Die in ihnen enthaltenen Radionuklide werden in den Bodenschichten wie in einer Ionenaustauschersäule zurückgehalten. Bestimmte Verbindungen des Rutheniums sinken jedoch in das tiefer gelegene Grundwasser ab und gelangen von dort allmählich in das nächste Oberflächengewässer /198/. In der Nähe der WAA Centre de la Hague (Frankreich) wurden bis zum Juni 1970 mehr als 45000 Fässer mit radioaktiven Abfällen vergraben /184/.

c) Lagerung in Salzvorkommen

Das Konzept der Salzlagerung wird in den USA und der BR Deutschland verfolgt. Mit großer Sicherheit sind Salzlagerstätten über sehr lange Zeiträume vom Wasserkreislauf isoliert, da es wegen der sehr guten Wasserlöslichkeit von Salz sonst nicht zur Bildung derartiger Lagerstätten hätte kommen können. Salz besitzt gute thermische sowie plastische Eigenschaften unter hydrostatischem Druck. Es läßt sich leicht abbauen, gegen Gase und Flüssigkeiten ist es außerordentlich dicht /113/. In der BR Deutschland werden schwach- und mittelaktive Abfälle in das ehemalige Salzbergwerk Asse eingelagert /26,258/. In den USA wird ein tafelförmiges Salzvorkommen in Neu-Mexiko als Endlager für hochaktive Festabfälle untersucht /198/. Die Mindestlebensdauer der Behälter soll größer sein als 90 Tage, damit eine evt. spätere Auslagerung möglich ist. Nach Angaben von McGrath /256/ sollen Abfallbehälter in Salzlagerstätten aufgrund von Korrosionserscheinungen nicht länger als einige Jahre dicht bleiben.

d) Lagerung in der Antarktis

Bei Temperaturen erheblich unter dem Schmelzpunkt hat Eis viele Eigenschaften mit Salz gemeinsam. Es ist undurchlässig für Wasser und besitzt eine relativ hohe Wärmeleitfähigkeit. Die Polargebiete (etwa $\frac{1}{12}$ der gesamten Erdoberfläche) liegen weit abseits von bewohnten Gegenden. Als mögliche Lagerstelle wurde ein 1300 km vom Festland entferntes Gebiet mit einer Eisdicke von 1000 bis 3000 m vorgeschlagen. Aufgrund der Wärmeentwicklung würden die Abfallbehälter (Glaszylinder) allmählich bis zum Felsuntergrund absinken. Es wird erwartet, daß sie an einem stationären Platz verbleiben. Bei einer Wanderung von 10 m pro Jahr mit dem Eis würden mindestens 130000 Jahre bis zum Erreichen des Festlandes vergehen. Der Transport des Abfalls mit Containerschiffen in die Antarktis ist mit erheblichen Risiken verbunden. Vorgeschlagen wurde bisher eine Lagerung von Spaltprodukten mit Halbwertszeiten von weniger als 50 Jahren /256/. Es gibt jedoch einen internationalen Vertrag, der die Beseitigung radioaktiver Abfälle in der Antarktis untersagt /198/.

e) Einschmelzen in geologische Formationen

Diese Methode beruht auf einem ähnlichen Prinzip wie die Einlagerung im Polareis. Zunächst werden im Gestein Löcher von ca. 2 km Tiefe vorgebohrt /198,256/. In diese Bohrlöcher werden hochaktive Abfälle eingebracht, die in Metallkugeln eingeschlossen sind. Aufgrund von Wärmeentwicklung und Schwerkraft sinken die Kugeln langsam in größere Tiefen ab. Man schätzt, daß in Basaltfelsen nach 105 Jahren eine maximale Tiefe von ca. 16,2 km erreicht würde /256/. Wären in den Metallkugeln ausschließlich die langlebigen Strontium- und Cäsiumisotope vorhanden, so könnte aufgrund größerer Wärmeentwicklung die Eindringtiefe mehr als 50 km betragen. Das würde ein Durchdringen der Erdkruste bedeuten.

f) Lagerung in einem durch nukleare Sprengkraft geschaffenen unterirdischen Hohlraum

In einer Tiefe von 2 bis 3 km sollen durch eine nukleare Explosion in Silikatgestein Hohlräume für die Lagerung hochaktiver Flüssigkeiten geschaffen werden /198,256/. Während der Einlagerung wird das Gestein so weit abgekühlt, daß es nicht schmilzt. Nach Beendigung des Einlagerns wird die Kühlung abgebrochen. Spaltprodukte und **umgebendes** Gestein liegen mehrere 100 Jahre in geschmolzenem Zustand vor. Bei Eindringen größerer Mengen Grundwasser könnte sich ein hoher Druck aufbauen. Dadurch könnten Gestein und radioaktiver Abfall evt. an die Erdoberfläche geschleudert werden. Erst nach Erkalten des Gesteins ist der Abfall sicher eingeschlossen; für flüchtige Nuklide ist dies Verfahren nicht geeignet /256/.

g) Transport ins Weltall

Der Transport von hochaktivem Abfall in den Weltraum ist seit längerer Zeit in der Diskussion. Für möglich gehalten werden erdnahe Parkbahnen oder der Schuß zur Sonne /198/. Die sehr hohen Kosten lassen diese Methode wenig aussichtsreich erscheinen /184/. Die Risiken beim Transport sind sehr groß. Im April 1964 verfehlte z.B. ein mit Plutonium antriebener Navigationssatellit die Umlaufbahn und verglühte beim Wiedereintritt in die Atmosphäre. Dadurch erhöhte sich der Pu-238-Gehalt der Atmosphäre auf etwa das 3-fache. Beim Transport mit Raketen können nur relativ kleine Abfallmengen befördert werden. Die Tragkraft einer Saturn V-Rakete beträgt etwa 35 t. Zum Abtransport des gesamten Abfalls der BRD wären im Jahr 2010 etwa 4 Saturn V-Raketen pro Monat erforderlich. Bei Beseitigung nur der Aktiniden würde eine Rakete im Jahr ausreichen /256/.

Das Versenken von Abfällen im Meer sowie das Vergraben und Versickern im Erdboden sind keine sehr sicheren Methoden der

Abfallbeseitigung. Die Chancen für eine Einlagerung in Salzvorkommen können als gut bezeichnet werden, nicht zuletzt wegen einer evt. möglichen späteren Auslagerung. Die Entwicklung von korrosionsbeständigeren Behältern ist wünschenswert. Mit Einlagerungen im Felsgestein oder im Polareis gibt es bisher noch keine Erfahrungen. Der Transport von radioaktivem Material ins Weltall stellt die eleganteste Lösung dar, ist aber mit großen Transportrisiken und hohem finanziellen Aufwand verbunden und nur für kleine Abfallmengen geeignet. Einen zusammenfassenden Überblick über sämtliche Verfahren gibt Tabelle 10-2.

10.4.3 Endgültige Beseitigung

Eine ungestörte Endlagerung radioaktiven Abfalls über einen Zeitraum von vielen Jahrtausenden erscheint nicht ausreichend gewährleistet. Eine endgültige Beseitigung ist mit der sogenannten Nuklid-Transmutation möglich. Durch Teilchenbeschuss werden langlebige radioaktive Nuklide in kurzlebige oder sogar stabile umgewandelt. Die infrage kommenden Nuklide müssen zunächst vom restlichen Spaltproduktgemisch abgetrennt werden. Das ist mit Schwierigkeiten verbunden, zudem werden dabei große Mengen an kontaminiertem Wasser, Luft und Chemikalien produziert /256/. Man denkt hauptsächlich an eine Isolierung von Sr-90 und Cs-137 sowie der langlebigen Transurane /259/.

Als aussichtsreich wird der Beschuss mit schnellen Neutronen von ca. 14 MeV betrachtet /256/, wobei (n,2n)-Reaktionen ablaufen (in Klammern jeweils die Halbwertszeiten der Nuklide):

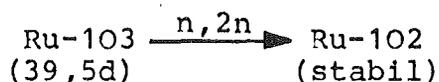
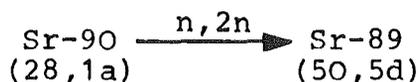
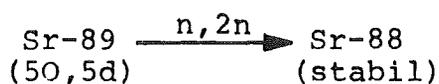
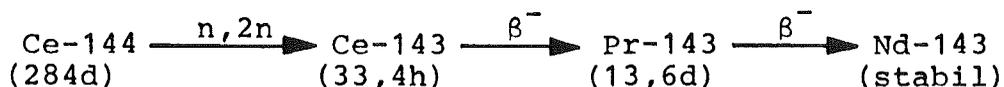
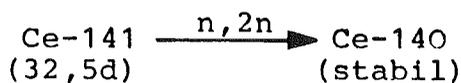
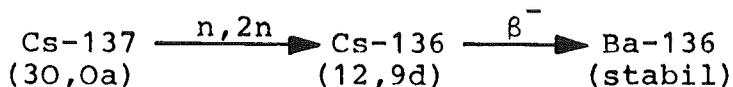
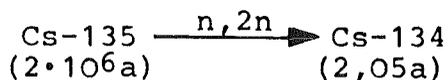
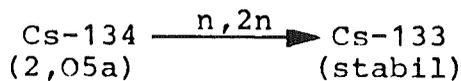
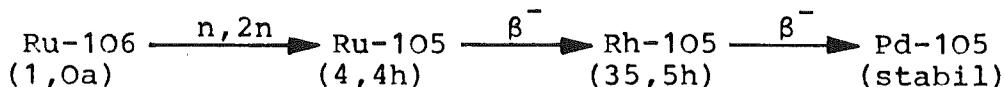


Tabelle 10-2 Vergleich verschiedener Endlagerungsmöglichkeiten

Vorteile	Versenken im Meer	Vergraben und Versickern im Erdboden	Lagerung in Salzvorkommen	Lagerung in der Antarktis *	Einschmelzen in geologische Formationen	Lagerung in unterirdischem Hohlraum	Transport ins Weltall
in der Praxis erprobt	X	X	X				
niedrige Kosten		X					
geringe Transportrisiken	X	X	X		X	X	
Ausschluß aus der Biosphäre für sehr langen Zeitraum			X	X	X		X
Überwachung auf Radioaktivitätsaustritt möglich							
geringe Bevölkerungsdichte		X		X	X	X	X
für hochaktive Abfälle geeignet			X	X	X	X	X
für große Abfallmengen geeignet	X	X	X	X	X	X	
Auslagerung möglich			X**				

* durch internationalen Vertrag verboten

** bei korrosionsbeständigen Behältern



Sämtliche Radionuklide gehen entweder direkt oder nach kurzer Zeit über β^- -Zerfall in stabile Nuklide über. Die stabilen Nuklide müssen jedoch von den übrigen abgetrennt werden. Anderenfalls fangen sie Neutronen ein und werden weiter umgewandelt /259/.

Im thermischen Reaktor wäre für (D,T)-Reaktionen ein Neutronenfluß von ca. 10^{17} n/cm²sec erforderlich, um ausreichende Transmutationsraten zu erzielen /259,260/. Die Kosten für beide Verfahren sind sehr hoch. Aufgrund der günstigen Neutronenökonomie ist der finanzielle Aufwand für die Transmutationen bei einem schnellen Reaktor wesentlich niedriger als bei einem thermischen /259/.

Es wäre denkbar, daß in Zukunft die relativ kurzlebigen Spaltprodukte in geologische Formationen eingelagert werden, während langlebige Nuklide nach Abtrennung in den Weltraum befördert oder transmutiert werden könnten.

Literaturverzeichnis

- /1/ Environmental Behaviour of Radionuclides Released in the Nuclear Industry
Report on the International Symposium Held in Aix-en-Provence from 14 to 18 May 1973
Atomic Energy Review 11, 3 (1973) 691-697
- /2/ USAEC:
The Potential Radiological Implications of Nuclear Facilities in a Large Region in the U.S. in the Year 2000, "The Year 2000 Study"
Report WASH-1209 (1973)
- /3/ J.R. Beattie:
An Assessment of Environmental Hazard from Fission Product Releases
Report AHSB (S) R64 (1963)
- /4/ B. Kahn u.a.:
Radiological Surveillance Studies at a BWR
Report BRH/DER 70-1 PHS (1970)
- /5/ C.G. Welty, M.B. Biles:
The U.S. Atomic Energy Commission Program for Monitoring the Behaviour of Radionuclides Released to the Environment
Vortrag auf dem IAEA-Symposium "Environmental Behaviour of Radionuclides Released in the Nuclear Industry", Aix-en-Provence, Mai 1973, IAEA-SM-172/36
- /6/ P.R. Kamath, I.S. Bhat:
Field Monitoring and Investigations for the Evaluation of Public Health Hazards Through Contamination of Water Sources
Vortrag auf dem FAO-/IAEA-/WHO-Seminar "Environmental Contamination by Radioactive Materials", Wien, 24.-28. März 1969, SM-117/53
- /7/ B. Kahn u.a.:
Radiological Surveillance Studies at a PWR
Report RD 71-1 (1971)
- /8/ R.L. Blanchard, B. Kahn:
Pathways for the Transfer of Radionuclides from Nuclear Power Reactors through the Environment to Man
Symposium "Radioecology Applied to the Protection of Man and his Environment", Rom, 7.-10. Sept. 1971, S. 175-190
- /9/ J.R. Beattie, P.M. Bryant:
Assessment of Environmental Hazards from Reactor Fission Product Releases
Report AHSB (S) R135 (1970)

- /10/ W. Comper, W. Hübschmann:
Die Strahlenbelastung der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe
Abschätzung für das Jahr 1971
Bericht KFK-1481 (1971)
- /11/ R. Bödege u.a.:
Radiological Surveillance of the Environments of the Nuclear Power Stations at Kahl, Gundremmingen, Lingen and Obrigheim
Vortrag auf dem IAEA-Symposium "Environmental Surveillance around Nuclear Installations", Warschau, 5.-9. November 1973, IAEA-SM-180/13
- /12/ K.J. Vogt:
Dispersion of Airborne Radioactivity Released from Nuclear Installations and Population Exposure in the Local and Regional Environment
Vortrag auf dem IAEA-Symposium "Physical Behaviour of Radioactive Contaminants in the Atmosphere", Wien, 12.-16. November 1973, IAEA-SM-181/39
- /13/ P.M. Bryant, F. Morley:
Disposal of Radioactive Wastes Arising in the United Kingdom from the Peaceful Uses of Atomic Energy
Report NRPB-R-1 (1971)
- /14/ B. Kahn, B. Shleien, C. Weaver:
Environmental Experience with Radioactive Effluents from Operating Nuclear Power Plants
Fourth United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Genf (1971), P.087, Vol.11
- /15/ J.A. Martin Jr.:
Calculations of Environmental Radiation Exposures and Population Doses Due to Effluents from a Nuclear Fuel Reprocessing Plant
Radiation Data and Reports 14 (1973) 59-76
- /16/ B. Shleien:
An Estimate of Radiation Doses Received by Individuals Living in the Vicinity of a Nuclear Fuel Reprocessing Plant in 1968
Report BRH/NERHL 70-1 (1970)
- /17/ G.E. Barasch, R.H. Beers:
Aerial Radiological Measuring Surveys of the Nuclear Fuel Services Plant, West Valley, New York, 1968 and 1969
Report ARMS-68.6.9 (1971)
- /18/ J.E. Logsdon, J.W.N. Hickey:
Radioactive Waste Discharges to the Environment from a Nuclear Fuel Reprocessing Plant
Radiological Health Data and Reports 12, 6 (1971)
305-312

- /19/ R.P. Rowlands:
Environmental Monitoring Associated with Discharges
of Radioactive Waste during 1970 from UKAEA Establishments
Report AHSB (RP) R111 (1971)
- /20/ Yook C.Ng., W.L. Robison, D.W. Wilson:
Modeling Radiation Exposures to Populations from Radio-
activity Released to the Environment
Aix-en-Provence, 1973, /5/, IAEA-SM-172/77
- /21/ B.E. Godfrey, J. Vennart:
Measurements of Caesium-137 in Human Beings in 1958-67
Nature 218, 5 (1968) 741-746
- /22/ 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)
- /23/ P.F. Gustafson, J.E. Miller:
The Significance of Cs-137 in Man and his Diet
Health Physics 16 (1969) 167-183
- /24/ A Report of the UN Scientific Committee on the Effects
of Atomic Radiation
UN, New York (1969)
- /25/ Y. Sousselier:
Principes de Securite de Stockage des Produits de
Fission
Vortrag auf dem IAEA Symposium "Management of Radio-
active Wastes from Fuel Reprocessing", Paris,
27. Nov. - 1. Dez. 1972, p.181
- /26/ A. Martin:
Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing
Nuclear Engineering International 2 (1973) 124-130
- /27/ R. Bödege:
Radioaktive Abfälle
Atom und Strom 18, 1/2 (1972) 30-32
- /28/ F. Porz:
Erzeugung und Freisetzung von radioaktiven Jodisotopen
durch Kernreaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen und
die voraussichtliche radiologische Belastung bis zum
Jahr 2000
Bericht KFK-1912 (1974)
- /29/ G.P. Kalinin:
Global Hydrology
Gidrometeorologicheskoe Izdatel'stvo, Leningrad (1968)
Übersetzt aus dem Russischen:
Israel Program for Scientific Translations, Jerusalem
(1971)

- /30/ K.K. Turekian:
The Oceans, Streams, and Atmosphere
Handbook of Geochemistry, Springer Verlag, Berlin-
Heidelberg-New York (1969)
- /31/ W. Schreiter:
Seltene Metalle
VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie,
Leipzig (1960)
- /32/ Meyers Lexikon -
Technik und exakte Naturwissenschaften
Bibliographisches Institut Mannheim/Wien/Zürich
(1969)
- /33/ E.D. Goldberg:
Minor Elements in Sea Water
in: Chemical Oceanography
Academic Press, London (1965)
- /34/ E. Bolter, K.K. Turekian, D.F. Schutz:
The Distribution of Rubidium, Cesium and Barium
in the Oceans
Geochimica et Cosmochimica Acta 28 (1964) 1459-1466
- /35/ E. Browning:
Toxicity of Industrial Metals
Butterworths, London (1969)
- /36/ H. Remy:
Grundriß der anorganischen Chemie
Akademische Verlagsgesellschaft Geest & Portig KG,
Leipzig (1967)
- /37/ W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig, H. Münzel:
Nuklidkarte, 3. Auflage (1968)
Bundesminister für wissenschaftliche Forschung, Bonn
- /38/ C.M. Lederer, J.M. Hollander, I. Perlman:
Table of Isotopes, 6th Edition, New York (1967)
- /39/ M.E. Meek, B.F. Rider:
Summary of Fission Product Yields for U-235, U-238,
Pu-239, and Pu-241 at Thermal, Fission Spectrum and
14 MeV Neutron Energies
Report APED-5398-A (1968)
- /40/ Task Group on Lung Dynamics:
Deposition and Retention Models for Internal Dosimetry
of the Human Respiratory Tract
Health Physics 12 (1966) 173-207
- /41/ W. Comper:
Berechnung der Dosisfaktoren radiologisch wichtiger
Nuklide
Bericht KFK-1615 (1972)

- /42/ J. Westphal:
Berechnung von Dosisfaktoren g nach Inhalation radio-
aktiver Stoffe
unveröffentlicht
- /43/ P.M. Bryant:
Developments in the United Kingdom in the Derivation
of Emergency Reference Levels in Environmental Materials
Warschau, 1973, /11/, IAEA-SM-180/12
- /44/ K.J. Vogt:
Umweltkontamination und Strahlenbelastung durch radio-
aktive Abluft aus kerntechnischen Anlagen
Bericht Jül-637-ST (1970)
- /45/ K. Aurand, H. Rühle, H. Schmier:
Grundlagen des Strahlenschutzes
Anhang 11 in: Radioaktive Stoffe und Trinkwasserver-
sorgung bei nuklearen Katastrophen,
Bundesministerium des Inneren (1971)
- /46/ B. Shleien:
An Evaluation of Internal Radiation Exposure Based
on Dose Commitments from Radionuclides in Milk, Food
and Air
Health Physics 18 (1970) 267-275
- /47/ G. Blässer, K. Wirtz:
Nukleare Grundlagen für Standort- und Gebäudewahl von
Kernreaktoren
Bericht KFK-646 (1960)
- /48/ Emissionsquellstärke von Kernkraftwerken
Schriftenreihe Kernforschung 6
Bundesminister für Bildung und Wissenschaft, Bonn (1972)
- /49/ K.-H. Lindackers, K. Aurand u.a.:
Kernenergie - Nutzen und Risiko
Deutsche Verlags-Anstalt Stuttgart (1970)
- /50/ H. Schüttelkopf:
Private Mitteilung (1974)
Kernforschungszentrum Karlsruhe, ASS
- /51/ S. Strauch u.a.:
A Study of the Potential Radiological Impact of an
Expanding Nuclear Power Industry on the Tennessee
Valley Region
Aix-en-Provence, 1973, /5/, IAEA-SM-172/38
- /52/ P.M. Bryant:
Data for Assessments Concerning Controlled and Accidental
Releases of J-131 and Cs-137 to Atmosphere
Health Physics 17 (1969) 51-57

- /53/ L.G. Bengtsson:
Time Variation of Cesium-137 and Potassium in Humans
from Southern Sweden
Acta Radiologica: Therapy Physics Biology 6 (1967)
259-282
- /54/ Z. Pietrzak-Flis:
Biological Half-Life of Caesium-137 in Teenagers
Nukleonika-Tom XVII - Nr. 10 (1972) 547-554
- /55/ T.F. McCraw:
The Half-Time of Cesium-137 in Man
Radiological Health Data 6, 12 (1965) 711-718
- /56/ M.A. Cryer, K.F. Baverstock:
Biological Half-Life of Cs-137 in Man
Health Physics 23, 9 (1972) 394-395
- /57/ R.D. Lloyd:
Cesium-137 Half-Times in Humans
Health Physics 25, 6 (1973) 605-612
- /58/ H.J. Dunster:
The Application and Interpretation of ICRP
Recommendations in the United Kingdom Atomic Energy
Authority
Report AHSB (RP) R78 (1967)
- /59/ D.H. Slade:
Meteorology and Atomic Energy 1968
Report TID-24190, USAEC (1968)
- /60/ ICRP Publication 9:
Recommendations of the International Commission
on Radiation Protection
Pergamon Press (1966)
- /61/ ICRP Publication 2:
Recommendations of the International Commission on
Radiological Protection
Pergamon Press (1959)
- /62/ United States Code of Federal Regulations, Title 10
"Atomic Energy"
(Part 20 - Standards for Protection Against Radiation)
ab 1957
- /63/ OECD:
Gesetz zum Ratsbeschuß der Organisation für wirt-
schaftliche Zusammenarbeit und Entwicklung vom 18.12.1962
BGBl Teil II, Nr. 36 (1964)
- /64/ 1. Strahlenschutzverordnung vom 15.10.1965, Bundes-
gesetzblatt Nr. 61 der BRD

- /65/ K. Aurand, J. Arndt, H. Rühle, R. Wolter:
Abgabe radioaktiver Abwässer aus Kernkraftwerken
Atomwirtschaft 18, 5 (1973) 529-531
- /66/ J. Schwibach:
Strahlenschutzrichtwerte für die Genehmigung der
Ableitung radioaktiver Stoffe (III)
Atomwirtschaft 17, 5 (1972) 280-282
- /67/ P.M. Bryant:
Derivation of Working Limits for Continuous Release
Rates of Sr-90 and Cs-137 to Atmosphere in a Milk
Producing Area
Health Physics 12 (1966) 1393-1405
- /68/ Atomic Energy Law Reports, 10 CFR 50
Atomic Energy Clearing House 17, 24 (1971) 2-11
- /69/ G. Fritze, R. Herrmann:
The Interpretation of Aerosol Release Measurements
at Nuclear Power Plants
Warschau, 1973, /11/, IAEA-SM-180/30
- /70/ E. Sauter:
Grundlagen des Strahlenschutzes
Siemens Aktiengesellschaft (1971)
- /71/ E. Schrüfer (KWU Frankfurt):
Vorlesung über Reaktormesstechnik an der Universität
(TH) Karlsruhe (1974)
- /72/ T.P. Kohman:
Chronology of Nucleosynthesis and Extinct Natural
Radioactivity
Journal of Chemical Education 38 (1961) 73-82
- /73/ G.W. Wetherill:
Spontaneous Fission Yields from Uranium and Thorium
Physical Review 92, 4 (1953) 907-912
- /74/ USAEC:
Reactor Physics Constants
Report ANL-5800, Second Edition (1963)
- /75/ N.M. Rao:
Radiochemical Studies of Spontaneous Fission of
U-238
Thesis, Cologne, Universität (1962)
- /76/ I. Zander, R. Araskog:
Nuclear Explosions 1945-1972, Basic Data
Report FOA4 A 4505-A1 (1973)
- /77/ M. Eisenbud:
Environmental Radioactivity
McGraw-Hill, New York - London, 1963

- /78/ 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
- /79/ D.H. Peirson:
Worldwide Deposition of Long-Lived Fission Products from
Nuclear Explosions
Nature 234, 11 (1971) 79-80
- /80/ F.W. Stead:
Distribution in Groundwater of Radionuclides from Underground
Nuclear Explosives
Report TID-7695 (1964) 127-138
- /81/ W. Jacobi, N. Stolterfoht:
Abschätzung der Kontamination des Oberflächenwassers
durch den Nahfallout bei Kernexplosionen
Anhang 7 in: /45/ (1971)
und: Bericht HMI-SP 12 (1969)
- /82/ N.A. Hallden u.a.:
Radioactive Decay of Weapon Debris
Report HASL-117 (1961) 194-199
- /83/ H. Rühle:
Menge und Eigenschaften der bei nuklearen Explosionen
freigesetzten Spaltprodukte
Anhang 3 in: /45/ (1971)
- /84/ C.E. Junge:
Air Chemistry and Radioactivity
Academic Press, New York and London (1963)
- /85/ N.G. Stewart, R.N. Crooks, E.M.R. Fisher:
The Radiological Dose to Persons in the UK
Due to Debris from Nuclear Test Explosions
Prior to January 1965
AERE Report HP/R 2017 (1956)
- /86/ L.B. Lockhart u.a.:
Fission Products Radioactivity in the Air Along the
80th Meridian (West) During 1959
NRL Report No. 5528 (1960)
- /87/ O.I. Leipunskii u.a.:
Mean Residence Time of Radioactive Aerosols in the
Upper Layers of the Atmosphere Based on Fallout of
High-Altitude Tracers
Journal of Geophysical Research, 75, 18 (1970),
3569-3574
- /88/ P.W. Krey, B.T. Krajewski:
Comparison of Atmospheric Transport Model
Calculations with Observations of Radioactive Debris
Journal of Geophysical Research 75, 15 (1970) 2901-2908

- /89/ H.W. Feely u.a.:
Project Stardust
Report AD-642279, DASA-1821 (1966)
- /90/ D.H. Peirson, R.S. Cambray:
Interhemispheric Transfer of Debris from Nuclear
Explosions Using a Simple Atmospheric Model
Nature 216, 25 (1967) 755-758
- /91/ W.W. Cooper, J.N. Beck u.a.:
Radioactive Strontium and Barium Fallout
Health Physics 19, 11 (1970) 625-632
- /92/ P. Fabian, W.F. Libby, C.E. Palmer:
Stratospheric Residence Time and Interhemispheric
Mixing of Strontium 90 from Fallout in Rain
Journal of Geophysical Research 73, 12 (1968)
3611-3616
- /93/ C.W. Thomas u.a.:
The Measurement and Behaviour of Airborne Radionuclides
since 1962
Vortrag auf dem Symposium "Radionuclides in the Environment",
San Francisco, 1.-3. April 1968, P.158
- /94/ P.W. Krey, B. Krajewski:
HASL Model of Atmospheric Transport
Report HASL-215 (1969)
- /95/ D.H. Peirson, J.R. Keane:
Characteristics of Early Fall-Out from the Russian
Nuclear Explosions of 1961
Nature 196, 4857 (1962) 801-807
- /96/ S. Csupka:
Die Staubniederschlagsmenge und ihr Einfluß auf die
Höhe der Radioaktivität im Fallout
Kernenergie, 12, 4 (1969) 136-138
- /97/ D.H. Ehhalt, G. Haumacher:
The Seasonal Variation in the Concentration of
Strontium-90 in Rain and its Dependence on Latitude
Journal of Geophysical Research 75, 15 (1970)
3027-3031
- /98/ E.A. Martell:
The Size Distribution and Interaction of Radioactive
and Natural Aerosols in the Stratosphere
Tellus 18, 2 (1966) 486-498
- /99/ J.D. Sherwood, D.T. Moore, P.K. Kuroda:
Radioactive Cerium Isotopes: The Fallout from Recent
French and Chinese Nuclear Weapons Tests
Health Physics 24, 5 (1973) 491-495

- /100/ J.R. Noyce u.a.:
Fallout from Nuclear Weapons Testing and Interhemispheric
Transport of Nuclear Debris
Health Physics 25, 8 (1973) 109-114
- /101/ P.W. Krey, B.T. Krajewski:
Updating Stratospheric Inventories to July 1971
Report HASL-257 (1972), Appendix I-33-I-42
- /102/ Yu.A. Izrael, A.A. Ter-Saakov, Yu.E. Kazakov:
Radioactive Contamination of the Atmosphere and Ground
by Single and Multiple Underground Nuclear Cratering
Explosions
Report UCRL-Trans-10517 (1970)
- /103/ Yu.A. Izrael, V.N. Petrov:
Spread of Underground-Nuclear-Explosion Radioactive
Products over Long Distances
Report UCRL-Trans-10517 (1970)
- /104/ J.B. Knox u.a.:
Radioactivity Released from Underground Nuclear
Detonations: Source Transport, Diffusion and Deposition
Report UCRL-50230, Rev.1 (1970)
- /105/ V.N. Petrov, A.A. Ter-Saakov:
Escape into the Atmosphere of Inert Radioactive Gases,
and Formation from them of Secondary Aerosols, in an
Uncontained Underground Nuclear Explosion
Report UCRL-Trans-10517 (1970)
- /106/ Yu.A. Izrael:
Radioactivity in Contained Underground Nuclear Explosions
Report UCRL-Trans-10475 (1970)
- /107/ D.J. Brown:
Migration Characteristics of Radionuclides through
Sediments Underlying the Hanford Reservation
Vortrag auf dem IAEA/ENEA-Symposium "Disposal of
Radioactive Wastes into the Ground", Wien,
29. Mai - 2. Juni 1967, SM-93/16
- /108/ K.F. Flynn, L.E. Glendenin:
Yields of Fission Products for Several Fissionable
Nuclids at Various Incident Neutron Energies
Report ANL-7749 (1970)
- /109/ F. Schmittroth, R.E. Schenter:
Fast Neutron Capture Cross Sections for Fission Product
Isotopes
Report HEDL TME 73-63 (1973)
- /110/ J.P. Hosemann, H. Jordan, W. Schikarsky, H. Wild:
Nukleare Schadstoffe in der Nachunfallatmosphäre eines
Leichtwasser-Reaktor (LWR)-Containments
Bericht KFK-1800 (1973)

- /111/ G. Herrmann:
Abgabe radioaktiver Stoffe bei Normalbetrieb aus
Leichtwasserreaktoren in der BRD
Bericht IRS-W-1 (1972)
- /112/ J.H. Wright:
Environmental Radiation from Pressurized Water
Reactors
J. Inst. Nuc. Eng. - Jan./Feb. (1971) 8-12 und
Transactions of the ANS 13, 1 (1970) 221
- /113/ W. Winkler:
Die Sicherheitsaspekte der Reaktorphysik und die
Entstehung der Spaltprodukte
Informationstagung über die Sicherheit von Kern-
kraftwerken und die Probleme der Radioaktivität,
Bern (1970)
- /114/ H.F. Macdonald, P.J. Darley, R.H. Clarke:
Recent Developments in the Prediction of the Environmental
Consequences of Radioactive Release from Nuclear Power
Reactors
Wien, 1973, /12/, IAEA-SM-181/33
- /115/ S. Hiller:
Gammaskpektrometrische Abbrandbestimmungen an Reaktor-
brennstäben
Kerntechnik 12,11 (1970) 485-490
- /116/ E. Schrüfer (Herausgeber des Buches):
Strahlung und Strahlungsmessung in Kernkraftwerken;
Kapitel 7: Nachweis von Brennelementschäden,
Verfasser: R. Hock (1974)
- /117/ H.J. Schroeder:
Chemie im Kernkraftwerk mit Siedewasserreaktor
Sonderheft VGB, Speisewassertagung (1969) 52-61
- /118/ W. Stephan:
Private Mitteilung (1974)
Kernkraftwerk Obrigheim GmbH.
- /119/ R. Förthmann u.a.:
Development of Coated Fuel Particles for Increased
Safety Requirements
Vortrag auf dem IAEA-Symposium "Principles and Standards
of Reactor Safety", Jülich, 5.-9. Februar 1973, IAEA-SM-
169/40
- /120/ G. Mielken, M. Will:
Plate-Out Evaluation as a Basic Criterion for Plant
Design and Safety Analysis in Indirect and Direct
Cycle HTR Systems
Jülich, 1973, /119/, IAEA-SM-169/39

- /121/ D. Bedenig:
Gasgekühlte Hochtemperaturreaktoren
Verlag Karl Thieme, München, Bd.44 (1972)
- /122/ F.E. Vanslager u.a.:
Fission Product Transport in HTGR-Systems - A Summary
Proceedings of Gas-Cooled Reactor Information Meeting,
Oak Ridge National Laboratory, 27.-30. April 1970,
P.3/104
- /123/ H. Nickel, R. Förthmann, M. Hamesch:
Verbesserung des Rückhaltevermögens beschichteter Brennstoffteilchen für feste Spaltprodukte durch Zusätze definierteter Metalloxide zum Brennstoffkern
Reaktortagung Bonn, 30.3.-2.4.1971, S.634
- /124/ J. Engelhard:
Untersuchungen zur Diffusion von metallischen Spaltprodukten und Schwermetallen in der Umschichtung von Brennstoffteilchen für Hochtemperaturreaktoren
Bericht Jül-752-RG (1971)
- /125/ P.E. Reagan, J.G. Morgan, O. Sisman:
Solid Fission-Product Release from Coated-Particle Fuels During Irradiation
Report ORNL-4589 (1970)
- /126/ K. Röllig, A. Schmidt:
Spaltproduktfreisetzung von kugelförmigen HTR-Elementen unter Test- und Betriebsbedingungen
Reaktortagung Berlin, 20.-22. April 1970, S.442
- /127/ N. Eickelpasch:
Radioaktivität und Strahlenschutz in einer SWR-Anlage
Atom und Strom 18, 9/10 (1972) 122-127
- /128/ L. Lindner u.a.:
Kontaminationsuntersuchungen an der direkt-beaufschlagten Turbine des Kernkraftwerkes Gundremmingen
Atom und Strom 15, 7/8 (1969) 117-119
- /129/ Druckwasserreaktoren von Siemens
Siemens-Aktiengesellschaft (1973) Nr. A 300/1109
- /130/ R. Bödege u.a.:
Erfahrungen mit Abgabe und Überwachung von Aktivitäten in den vier deutschen LWR-Kernkraftwerken VAK, KRB, KWL und KWO
VGB Kraftwerkstechnik - Mitteilungen der VGB 52, 5 (1972) 396-404
- /131/ J. Arndt, H. Rühle:
Private Mitteilung (1974)
Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene des Bundesgesundheitsamtes

- /132/ R. Wolter:
Ein System zur Erfassung der Abgabe radioaktiver Stoffe
aus Kernkraftwerken mit den Abwässern
NEA-Seminar on the Monitoring of Radioactive Effluents,
Karlsruhe, 14.-17. Mai 1974
- /133/ USAEC:
Report on Releases of Radioactivity from Power Reactors
in Effluents during 1970
Report WASH-1198 (1970)
- /134/ Atomstromerzeugung aus Kernkraftwerken 1967
Atomwirtschaft 13, 3 (1968) 113
- /135/ Stromerzeugung aus Kernkraftwerken in der Welt
Atomwirtschaft 15, 2 (1970) 100
Atomwirtschaft 16, 3 (1971) 130
Atomwirtschaft 17, 3 (1972) 170-171
- /136/ atw-Schnellstatistik
Kernkraftwerke 1972 - Weltübersicht
Atomwirtschaft 18, 3 (1973) 142-144
- /137/ J.A. Richardson:
Radioactive Waste Quantities Produced by Light Water
Reactors and Methods of Storage, Transportation, and
Disposal
Journal of the British Nuclear Energy Society 12, 2
(1973) 199-213
- /138/ Betriebsergebnisse der Kernkraftwerke in der Euro-
päischen Gemeinschaft
Atomwirtschaft 17, 5 (1972) 260-262
Atomwirtschaft 18, 5 (1973) 250-252
- /139/ J.E. Logsdon:
Radioactive Waste Discharges to the Environment from
Nuclear Power Facilities
Radiation Data and Reports 13, 3 (1972) 117-129
- /140/ M. Kempken:
Verzeichnis der Kernkraftwerke der Welt (1973)
Atomwirtschaft 18, 10 (1973) 487-495
- /141/ M. Eisenbud:
Review of USA Power Reactor Operating Experience
Vortrag auf dem IAEA-Symposium "Environmental Aspects
of Nuclear Power Stations", New York, 10.-14. August 1970,
IAEA-SM-146/35
- /142/ R. Kirchmann u.a.:
Utilisation des Bioindicateurs à des Fins de Surveillance
des Sites Nucléaires
Warschau, 1973, /11/

- /143/ W. Schikarski:
Kernenergie und Umwelt
Atom und Strom 18, 2 (1972) 37-44
- /144/ M.J. Shmuklarsky:
Environmental Radioactivity in Illinois, 1970
Rad. Health and Data Reports 13, 11 (1972) 589-602
- /145/ Betriebserfahrungen in Kernkraftanlagen
Jahresbericht 1968
Atom und Strom 15, 11 (1969) 193-208
- /146/ B. Kahn u.a.:
Radionuclide Release at a PWR Nuclear Power Station
Transactions of the American Nuclear Society 14 (1971)
326-327
- /147/ Kommission der EG:
Radioaktive Ableitungen von Kernkraftwerken der Ge-
meinschaft
Bericht (1972)
- /148/ J.J. Martin, B. Chaperon:
Rejet d'Effluents Gazeux et Liquides et Production de
Dechets Solides des Centrales Nucleaires d'Electricite
de France
VII° Congres International de la Societe Francaise de
Radioprotection, Versailles, 28.-31. Mai 1974,
VII-SFRP/43-01
- /149/ Skafi, Hock, Banz:
Erfahrungen über Entstehung und Abgabe von Aktivitäten
in Kernkraftwerken mit AEG-Siedewasserreaktoren
Reaktortagung Hamburg, 11.-14. April 1972, S.676
- /150/ A. Grau:
Private Mitteilung (1974)
Versuchsatomkraftwerk Kahl GmbH.
- /151/ P. Lindner:
Air Filters for Use at Nuclear Facilities
Technical Report Series No.122
IAEA, Vienna (1970)
- /152/ D. Hasenclever:
Filter zur Luft- und Gasreinigung in kerntechnischen
Anlagen
Staub 31, 2 (1971) 45-51
- /153/ A. Winkel:
Aktuelle Probleme der Staubmeßtechnik
Staub 22 (1962) 77-79

- /154/ H. Gebauer:
Überwachungsanlagen für radioaktive Aerosole
Atomwirtschaft 19, 2 (1974) 81-85
- /155/ H. Büker, P. Jansen, W. Sassin, W. Schikarski:
Kernenergie und Umwelt
Studie im Auftrag des BM für Forschung und Technologie
Berichte Jül-929-HT-WT, KFK-1366 (1973)
- /156/ N. Eickelpasch u.a.:
Private Mitteilung (1974)
Kernkraftwerk RWE-Bayernwerk GmbH., Gundremmingen
- /157/ H. Engel:
Betriebserfahrungen mit Brennelementen und Aktivitäten
in SWR-Kernkraftwerken
Atomwirtschaft 15, 11 (1970) 523-527
- /158/ F. Hilbert:
Erzeugung und Freisetzung von radioaktiven Krypton-
und Xenonisotopen durch Kernreaktoren und Wiederauf-
arbeitungsanlagen und die voraussichtliche radiolo-
gische Belastung bis zum Jahr 2000
Bericht KFK-2035 (1974)
- /159/ P.J. Barry, A.M. Marko:
Release of Radionuclides to the Environment from
CANDU-Type Reactors - A Summary of Canadian Experience
in: Some Aspects of the Release of Radioactivity and
Heat to the Environment from Nuclear Reactors in Canada
Report AECL-4156 (1972)
- /160/ Nuclear Power and the Environment
Information Booklet Prepared by the IAEA in Collaboration
with WHO
IAEA, Wien (1973)
- /161/ H. Marois, R.J. Wilson:
Environmental Monitoring and Control of Radioactive
Materials Released from Quebec and Ontario Hydro
Nuclear Power Stations
Canadian Nuclear Association,
Forteenth Annual International Conference
Montreal, Canada, 9.-12. Juni 1974
Volume 6: Nuclear Energy and the Public
- /162/ P.J. Barry:
Estimating Dose Commitments to Populations from
Radioactive Waste Disposals into Large Lakes
Aix-en-Provence, 1973, /5/, IAEA-SM-172/43
- /163/ R.B. Pepper:
Experience in Complying with Authorisation Conditions
For the Discharge of Liquid and Gaseous Radioactive
Effluents from CEGB Nuclear Power Stations
Karlsruhe, 1974, /132/

- /164/ D.S. Woodhead:
The Estimation of Radiation Dose-Rates to Fish in
Contaminated Environments, and the Assessment of the
Possible Consequences
Vortrag auf dem IAEA-Seminar "Radiological Safety
Evaluation of Population Doses and Application of
Radiological Safety Standards to Man and the Environment"
Portoroz, 20.-24. Mai 1974
- /165/ T.G. Huges u.a.:
Development, Design and Operation of the Oxide Fuel
Reprocessing Plant at the Windscale Works of British
Nuclear Fuels Ltd.
Genf, 1971, /14/, P.491, Vol.8
- /166/ J.R. Beattie:
Radiological Significance of Caesium-137
Releases from Mark II and Mark III Gas-Cooled Reactors
Report SRD R11 (1972)
- /167/ Fort St. Vrain wurde kritisch
VDI Nachrichten 28, 10 (1974) 1
- /168/ Konsortium THTR:
Sicherheitsbericht: 300 MWe THTR, Prototyp-Kernkraftwerk
(August 1969) (unveröffentlicht), (2. Nachtrag vom 1.1.1971)
(unveröffentlicht)
- /169/ W. Schikarski, H. Wild:
Zur Umweltbelastung durch ein natriumgekühltes Schnell-
brüter-Kraftwerk
Reaktortagung Bonn, 30.3.-2.4.1971, S.502
- /170/ W. Mühlhoff, U. Helms, J. Strathemann:
Der Aktivitätsfluß durch die SNR-Anlage
Reaktortagung 1972, /149/, S.679
- /171/ W.S. Clough:
The Behaviour of Barium and Strontium Fission Products
in Liquid Sodium
Journal of Nuclear Energy 25 (1971) 437-443
- /172/ H. Ullmann, K. Künstler, W. Richter:
Die Radioaktivität im Primärsystem natriumgekühlter
Schneller Reaktoren
Kernenergie 16, 4 (1973) 96-105
- /173/ W.S. Clough, A. Fraser:
Tellurium, Caesium, Iodine and Methyl Iodide in Fast
Reactors
Journal of Nuclear Energy 27 (1973) 1-14
- /174/ G.W. Keilholtz, G.C. Battle, Jr.:
Fission Product Release and Transport in Liquid-Metal-
Cooled Fast Breeder Reactors
Nuclear Safety 9, 6 (1968) 494-509

- /175/ A.W. Castleman Jr.:
LMFBR Safety
I. Fission-Product Behaviour in Sodium
Nuclear Safety 11, 5 (1970) 379-390
- /176/ D.R. O'Boyle, F.L. Brown, A.E. Dwight:
Analysis of Fission Product Ingots Formed in Uranium-
Plutonium Oxide Irradiated in EBR-II
Journal of Nuclear Materials 35 (1970) 257-266
- /177/ G.B. Zwetzig:
Survey of Fission- and Corrosion-Product Activity
in Sodium- or NaK-Cooled Reactors
Report AI-AEC-MEMO-12790 (1969)
- /178/ V.V. Orlov u.a.:
Some Problems of Safe Operation of the BR5 Plant
International Conference on the Safety of Fast Reactors
Aix-en-Provence, 19.-22. Sept. 1967, Session VA
"Reactor Operation and Accident Detection", Nr.7
- /179/ Konsortium SNR:
Sicherheitsbericht: SNR 300 MWe Prototyp-Kernkraftwerk
mit Schnelltem Natriumgekühlten Reaktor
Oktober 1969 und März 1971 (unveröffentlicht)
- /180/ G. Sachse, G. Anders:
Radioaktive Abfallstoffe der wässrigen Wiederaufar-
beitung ausgebrannter Kernbrennstoffe
Kernenergie 16, 2 (1973) 37-47
- /181/ W. Ochsenfeld:
Wiederaufarbeitung der Brennelemente schneller Brut-
reaktoren
Atomwirtschaft 13, 8/9 (1968) 422-425
- /182/ G. Sachse:
Die Bearbeitung radioaktiver Abwässer
Kernenergie 14, 6 (1971) 177-181
- /183/ Ingenieurgemeinschaft Kernverfahrenstechnik (IGK)
Leybold, Lurgi, Uhde:
Die Behandlung von hochaktiven wässrigen Abfällen
aus Reprocessinganlagen und die Gewinnung von Radio-
isotopen und Transuranen (1971)
- /184/ K. Schlosser, F.J.P. Oszusky:
Die Bewältigung der Umwelteinflüsse als Folge des
ersten österreichischen Kernkraftwerkes
Bericht SGAE RT-40/1971
- /185/ V. Heinzl:
Unterlagen und Daten von neueren Leistungsreaktoren
unveröffentlicht

- /186/ Siting of Fuel Reprocessing Plants and Waste Management Facilities
Report ORNL-4451 (1970)
- /187/ D.S. Woodhead:
Levels of Radioactivity in the Marine Environment and the Dose Commitment to Marine Organisms
Vortrag auf dem IAEA-Symposium "Radioactive Contamination of the Marine Environment", Seattle, 10.-14. Juli 1972, IAEA-SM-158/31
- /188/ P. Magno, T. Reavey, J. Apidianakis:
Liquid Waste Effluents from a Nuclear Fuel Reprocessing Plant
Vortrag auf dem Symposium "Health Physics Aspects of Nuclear Facility Siting", Ramada Inn - Idaho Falls, Idaho, 3.-6. November 1970
- /189/ T.C. Runion:
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
- /190/ P.J. Magno:
Studies of Dose Pathways from a Nuclear Fuel Reprocessing Plant
Aix-en-Provence, 1973, /5/, IAEA-SM-172/35
- /191/ West Valley Reprocessing Plant (NFS)
Quarterly Report for April 1, 1972 through June 30, 1972
Report DOCKET-50201-125 (1972)
- /192/ West Valley Reprocessing Plant (NFS)
Liquid Effluents 1970
Report SRO-344-12 (1971)
- /193/ F. Baumgärtner:
Die Wiederaufarbeitung von Uran-Plutonium-Kernbrennstoffen
Bericht KFK-1046 (1969)
- /194/ ENEA:
Radioactive Waste Management Practices in Western Europe
ENEA (1971)
- /195/ USAEC:
The Safety of Nuclear Power Reactors and Related Facilities
Report WASH-1250 (1973)
- /196/ A. Martin, H. Apsimon:
The Forecasting of Radioactive Wastes Arising from Nuclear Fuel Reprocessing
Paris, 1972, /25/, P.55
- /197/ J.R. Clark, G.W. Mc Donald:
Low-Level Liquid Waste Treatment at the NFS Reprocessing Plant
Transactions of the ANS 15 (1972) 321-322

- /198/ J. Schwibach:
Sicherheitsfragen und Umweltschutzprobleme bei der Be-
handlung radioaktiver Abfälle
Atomwirtschaft 18, 5 (1973) 231-234
- /199/ D.F. Jefferies:
Exposure to Radiation from Gamma-Emitting Fission-Product
Radionuclides in Estuarine Sediments from the Northeast
Irish Sea
Kapitel 26 in "Environmental Surveillance in the Vicinity
of Nuclear Facilities", C.C. Thomas, Springfield, Illinois
(1970)
- /200/ N.T. Mitchell:
Monitoring of the Aquatic Environment of the United
Kingdom and its Application to Hazard Assessment
Wien, 1969, /6/, SM-117/20
- /201/ J. Spaander, L. Strackee:
Radioecology as an Aid to the General Environmental
Pollution Problem
Rom, 1971, /8/, S.587-601
- /202/ O. Suschny:
Radioactive Contamination of the Oceans
Report WMO-No.169.TP.83 (1965) 123-146
in: Meteorological Aspects of Atmospheric Radioactivity,
Technical Note No. 68
- /203/ R.J. Pentreath:
The Roles of Food and Water in the Accumulation of
Radionuclides by Marine Teleost and Elasmobranch Fish
Seattle, 1972, /187/, IAEA-SM-158/26
- /204/ W.-J. Schmidt-Küster:
Das Entsorgungssystem im nuklearen Brennstoffkreislauf
Atomwirtschaft 19, 7 (1974) 340-345
- /205/ P. Zühlke:
Wiederaufarbeitung an der Schwelle zur wirtschaftlichen
Nutzung
Atomwirtschaft 19, 7 (1974) 346-351
- /206/ J.J. Alderhout, T. Franke, W. Hunzinger:
The Population Dose as Criterion for an Environmental
Monitoring Program
Wien, 1969, /6/, SM-117/36
- /207/ R.B. Platt, J.M. Palms, H.L. Ragsdale, D.J. Shure:
Empirical Benefits Derived from an Ecosystem
Approach to Environmental Monitoring of a Nuclear
Fuel Reprocessing Plant
Aix-en-Provence, 1973, /5/, IAEA-SM-172/31

- /208/ S.V. Kaye:
Assessing Potential Radiological Impacts to Aquatic
Biota in Response to the National Environmental
Policy Act (NEPA) of 1969
Aix-en-Provence, 1973, /5/, IAEA-SM-172/74
- /209/ A. Preston, D.F. Jefferies:
Aquatic Aspects in Chronic and Acute Contamination
Situations
Wien, 1969, /6/, SM-117/44
- /210/ H. Zindler:
Zu einigen Problemen der Abgabe radioaktiver Gase
und Aerosole aus Kernanlagen an die Atmosphäre
Bericht SZS-17/69 (1969)
- /211/ W. Johnson, C.L. Nayfield:
Elevated Levels of Cesium-137 in Common Mushrooms
(Agaricaceae) with Possible Relationship to High
Levels of Cesium-137 in Whitetail Deer, 1968-1969
Radiological Health Data and Reports 11, 10 (1970)
527-531
- /212/ H. Grueter:
Radioactive Fission Product Cs-137 in Mushrooms
in W.Germany during 1963-1970
Health Physics 20, 6 (1971) 655-656
- /213/ H. Kautsky:
Radioaktivität im Meer zur Zeit unbedenklich
Umschau 73, 17 (1973) 527-529
- /214/ D. Lal and Rama:
Characteristics of Global Tropospheric Mixing
Based on Man-Made C-14, H-3, and Sr-90
Journal of Geophysical Research 71, 12 (1966)
2865-2874
- /215/ C.E. Junge:
Studies of Global Exchange Processes in the Atmosphere
by Natural and Artificial Tracers
Journal of Geophysical Research 68, 13 (1963) 3849-3856
- /216/ J.G. Wilson, S.A. Wouthuysen:
Progress in Elementary Particle and Cosmic Ray Physics,
Volume VI
North-Holland Publishing Company, Amsterdam (1962)
- /217/ E.P. Hardy u.a.:
Strontium-90 on the Earth's Surface
Nature 219, 8 (1968) 584-587
- /218/ K. Aurand u.a.:
Gefährdung von Grundwasservorkommen durch radioaktive
Kontaminatoren
Anhang 10 in: /45/ (1971)

- /219/ P.F. Gustafson, L.D. Marinelli, S.S. Brar:
Natural and Fission-Produced Gamma-Ray Emitting
Radioactivity in Soil
Science 127, 5 (1958) 1240-1242
- /220/ H.J. Gale, D.L.O. Humphreys, E.M.R. Fisher:
Weathering of Caesium-137 in Soil
Nature 201, 1 (1964) 257-261
- /221/ H.M. Squire:
Long-Term Studies of Strontium-90 in Soils and
Pastures
Radiation Botany 6 (1966) 49-67
- /222/ C.W. Thornthwaite, J.R. Mather, J.K. Nakamura:
Movement of Radiostrontium in Soils
Science 131, 3406 (1960) 1015-1019
- /223/ K.B. Mistry, B.M. Rhujbal, T.J. D'Sousa:
Influence of Agronomic Practices on Uptake of Fission
Products by Crops from Soils of Regions Adjoining Nuclear
Installations in India
Aix-en-Provence, 1973, /5/, IAEA-SM-172/10
- /224/ R.S. Russell:
Deposition of Strontium-90 and its Content in Vegetation
and in Human Diet in the United Kingdom
Nature 182, 9 (1958) 834-839
- /225/ G.M. Milbourn:
The Uptake of Radioactive Strontium by Crops under Field
Conditions in the United Kingdom
Journal of Agricultural Science 55, 2 (1960) 273-282
- /226/ W. Kühn, J. Handl, H.P. Schätzler:
Transport of J-131, Cs-137, Ru-106, Ce-144, and Mn-54
in an Undisturbed Soil under Natural Environmental
Conditions
Aix-en-Provence, 1973, /5/, IAEA-SM-172/19
- /227/ E. van der Stricht, P. Gaglione, M. de Bortoli:
Predictions of Sr-90 Levels in Milk on the Basis of
Deposition Values
Health Physics 21, 8 (1971) 217-226
- /228/ B.O. Bartlett, R.S. Russel:
Prediction of Future Levels of Long-Lived Fission
Products in Milk
Nature 209, 5028 (1966) 1062-1065
- /229/ B.O. Bartlett, R.S. Russel, W. Jenkins:
Improved Relationship between the Deposition of
Strontium-90 and the Contamination of Milk in the
United Kingdom
Nature 238, 7 (1972) 46-48

- /230/ B.G. Bennett:
Estimation of Sr-90 Levels in the Diet
Report HASL-246 (1972)
- /231/ A. Aarkrog:
Prediction Models for Strontium-90 and Caesium-137
Levels in the Human Food Chain
Health Physics 20, 3 (1971) 297-311
- /232/ R. Coulon:
Deposition of Sr-90 and Contamination of Milk,
Proposition of a Model of Transfer
Second International Conference on Strontium Metabolism,
Glasgow and Strontian, 16.-19. Aug. 1972, P.447
- /233/ R.S. Russell:
The Transfer of Sr-90 through Food Chains to the Human
Diet - Progress of Knowledge in the last Fifteen Years
Vortrag auf dem NEA-Information Meeting "Disposal of
Radioactive Waste", Paris, 12.-14. April 1972, S.111
- /234/ J.J. Lehr, R. Kirchmann:
The Contamination by Radiostrontium and Radiocesium of
Grassland in Relation to the Age of the Deposition and
to the Organic Matter in the Soil
International Journal of Environmental Studies 5 (1973)
99-104
- /235/ Agriculture Research Council:
Letcombe Laboratory
Annual Report 1972
- /236/ St. Csupka u.a.:
Voraussage des zukünftigen Aktivitätspegels von Sr-90
und Cs-137 in der Milch
Zeitschrift für die gesamte Hygiene und ihre Grenz-
gebiete 17 (1971) 26-28
- /237/ G. Grathwohl:
Erzeugung und Freisetzung von Tritium durch Reaktoren
und Wiederaufarbeitungsanlagen und die voraussichtliche
Belastung der Hydrosphäre bis zum Jahr 2000
Bericht KFK-Ext. 4/73-36 (1973)
- /238/ B.I. Spinrad:
The Role of Nuclear Power in Meeting World Energy Needs
New York, 1970, /141/, IAEA-SM-146/2
- /239/ R. Boehnert, H. Bonka:
Zu erwartende Tritiumverunreinigung durch Kernreaktoren
in der Luft und im Wasser bei homogener Verteilung bis
zum Jahr 2000
Bericht Jül-763-RG (1971)

- /240/ M.S. Terpilak, C.L. Weaver, S. Wieder:
Dose Assessment of Ionizing Radiation Exposure to the
Population
Radiological Health Data and Reports 12, 4 (1971) 171-188
- /241/ J. Schwibach u.a.:
Überwachung der Abgabe radioaktiver Stoffe mit der Ab-
luft von Kernkraftwerken
Reaktortagung Berlin, 2.-5. April 1974, 462-465
- /242/ O.-A. Neumüller:
Römpps Chemie-Lexikon
Franckh'sche Verlagshandlung, Stuttgart (1972)
- /243/ L.B. Lockhart u.a.:
The Size Distribution of Radioactive Atmospheric Aerosols
Journal of Geophysical Research 70,24 (1965) 6033-6041
- /244/ Inhalation Risks from Radioactive Contaminants
Technical Report Series No. 142
IAEA, Vienna (1973)
- /245/ E. Schrüfer:
Private Mitteilung
KWU (1974)
- /246/ A. Bayer:
Private Mitteilung (1974)
Kernforschungszentrum Karlsruhe, INR
- /247/ C.A. Rohrmann:
The Availability and Applications of Radioactive and
Stable By-Products from the Chemical Processing of
Spent Nuclear Power Fuels
Report BNWL-SA-4108 (1971)
- /248/ J.H. Cusack, B. Manowitz:
Comparative Characteristics and Values of Co-60 and
Power Reactor Cs-134/137 Mixtures
Transactions of the ANS 15 (1972) 692
- /249/ G.J. Rotariu:
Current and Potential Radiation Applications Amenable
to Use of Cs-137 and Power Reactor Cs-134/137 Mixtures
Transactions of the ANS 15 (1972) 693-694
- /250/ C. Artandi:
Practical Considerations in the Industrial Use of
Cs-137 and Power Reactor Cs-134/137 Mixture
Transactions of the ANS 15 (1972) 694-695
- /251/ P.M. Wood:
Potential Market for Power Reactor Cs-134/137 Mixtures
Transactions of the ANS 15 (1972) 695-696

- /252/ R.W. McKee:
Feasibility and Prospects for Private Separation and
Marketing of Power Reactor Cs-134/137 Mixtures
Transactions of the ANS 15 (1972) 696-697
- /253/ W. Vinck u.a.:
Stand und Entwicklung der Kernenergie
Kommission der EG, GD III/C/4 (1972)
- /254/ H. Ramdohr:
Endbeseitigung radioaktiver Rückstände
Kerntechnik 12, 5/6 (1970) 242-248
- /255/ J.H. Rubin:
The Nuclear Fuel Cycle and Waste Production
Paris, 1972, /25/, P.15
- /256/ P.E. McGrath:
Radioactive Waste Management
Potentials and Hazards from a Risk Point of View
Bericht KFK-1992 (1974)
- /257/ Wm.L. Lennemann:
Management of Radioactive Aqueous Wastes from U.S.
Atomic Energy Commissions Fuel Reprocessing Operations,
Experience and Planning
Paris, 1972, /25/, P.357
- /258/ H. Krause:
Behandlung und Endlagerung radioaktiver Rückstände
Atomwirtschaft 16, 8/9 (1971) 461-467
- /259/ W.C. Wolkenhauer:
The Controlled Thermonuclear Reactor as a Fission
Product Burner
Transactions of the ANS 15 (1972) 92-93
- /260/ H.C. Claiborne:
High-Level Radioactive Waste Disposal by Transmutation
Transactions of the ANS 15 (1972) 91-92

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