

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

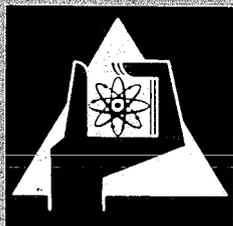
Februar 1972

KFK 1560

Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit  
Projekt Nukleare Sicherheit

Umweltbelastung durch Tritium

L. A. König



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

Februar 1972

KFK 1560

Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit

Projekt Nukleare Sicherheit

Umweltbelastung durch Tritium

L.A. König

Gesellschaft für Kernforschung mbH.

Vortrag am 21.2.1972 im Umweltkolloquium,  
Kernforschungszentrum Karlsruhe



## Zusammenfassung

Es wird ein Überblick über den derzeitigen Stand der Kenntnisse bezüglich der Umweltbelastung durch Tritium gegeben. Nach einer Zusammenstellung der wichtigsten Eigenschaften wird der theoretische Zusammenhang zwischen Tritiuminkorporation und Strahlenbelastung behandelt. Quellen der Tritiumkontamination der Umwelt sind die Tritiumproduktion in der Natur und in Fissionsreaktoren, die Anwendung von tritiumhaltigen Leuchtfarben sowie vor allem die Kernwaffenversuche.

Das freigesetzte Tritium erfährt eine weltweite Verteilung mit dem zirkulierenden Wasser. Die über Konzentrationsmessungen bestimmte Strahlenbelastung infolge dieser Tritiumkontamination liegt z.Z. bei 0,1 mrem/a. Ein Anstieg dieser Strahlenbelastung wird nicht vor dem Jahr 2000 erwartet.

Bei einer Realisierung von Fusionsreaktoren wird dem Tritiumproblem erhebliche Aufmerksamkeit zu widmen sein, da der Tritiumbedarf eines Fusionsreaktors  $4 \cdot 10^5$  Ci/MWa beträgt, während im Schwerwasserreaktor nur ca.  $10^3$  Ci  $^3\text{H}$ /MWa und im Leichtwasserreaktor ca.  $10^1$  Ci  $^3\text{H}$ /MWa erzeugt werden.

## Summary

This is a review of the present state of knowledge with respect to the tritium burden on the environment. Following a compilation of the most important characteristics the theoretical relationship between tritium incorporation and radiation burden is dealt with. Sources of environmental tritium contamination are the tritium produced by nature and in nuclear fission reactors, the use of tritium-containing luminous colours, and, above all, the nuclear weapon tests.

The tritium released undergoes a worldwide spread by the circulating water. The radiation burden due to this tritium contamination and evaluated by concentration measurements amounts presently to 0.1 mrem/a. An increase of this radiation burden is not anticipated until the year 2000.

In case of realization of fusion reactors considerable attention will have to be paid to the tritium problem, since the tritium requirements of a fusion reactor amount to  $4 \times 10^5$  Ci/MWa, while in the heavy-water reactor only about  $10^3$  Ci  $^3\text{H}$ /MWa and in the light-water reactor about  $10^1$  Ci  $^3\text{H}$ /MWa are produced.



Eine besonders wichtige Aufgabe der Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt ist die Messung der langlebigen Radionuklide, d.h. der Radionuklide mit einer Halbwertszeit, die gegenüber der Dauer des Menschenlebens nicht vernachlässigbar ist. Diese Radionuklide erfahren durch Transportvorgänge in der Atmosphäre und der Hydrosphäre eine weltweite Verteilung, deren Beobachtung dringend geboten erscheint. Eines der interessantesten dieser Radionuklide ist Tritium, das zwar als wenig radiotoxisch gilt (vgl. z.B. [1]), das aber als Wasserstoffisotop leicht von Organismen aufgenommen wird und diese mit seiner Strahlung belastet.

Da die Tritiumableitungen aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe ca. 3000 Ci/a betragen, wird hier der Umweltbelastung durch dieses Radionuklid besondere Aufmerksamkeit gewidmet. Im folgenden Bericht sind die im Zusammenhang mit dem Überwachungsprogramm auf Tritium interessanten Informationen zusammengestellt. Dabei kann wegen des Umfangs der vorliegenden Literatur keine auch nur annähernd vollständige Literaturübersicht gegeben werden; dies ist jedoch auch nicht notwendig, da eine Reihe von unter anderen Gesichtspunkten zusammenfassenden Arbeiten vorliegen (vgl. z.B. [2, 3, 4]).

### 1. Eigenschaften von Tritium

In Tab. 1 sind die wichtigsten physikalischen Eigenschaften von Tritium zusammengestellt. Besonders hervorzuheben ist die sehr

Tab. 1 Eigenschaften von Tritium (vgl. z.B. [3, 4, 6])

Zerfallsart:  ${}^3\text{H}(\beta^-){}^3\text{He}$ , 100 %  $\beta^-$ -Zerfall, keine  $\gamma$ -Strahlung

$E_{\text{max}} = 18,6 \text{ KeV}$

Physikalische Halbwertszeit:  $12,361 \pm 0,028 \text{ a}$

Zerfallskonstante:  $1,78 \cdot 10^{-9} \text{ sec}^{-1}$

Spezifische Aktivität:  $9,7 \cdot 10^3 \text{ Ci/g } {}^3\text{H}$

Reichweite der $\beta^-$ -Teilchen	in Luft	4,5 ... 6 mm
	in $\text{H}_2\text{O}$	6 $\mu$
	in biologischem Gewebe	6 $\mu$ (90 % < 1 $\mu$ )

niedrige  $\beta$ -Energie, die besondere Anforderungen an die Meßtechnik stellt. Im low level-Bereich ist keine Messung ohne Kompensation der Umgebungsstrahlung möglich (vgl. z.B. [5]).

Als HTO vorliegendes Tritium wird über die Atmung, über die Ernährung sowie auch direkt durch die Haut in den menschlichen Körper aufgenommen. Als HTO-Dampf eingeatmet wird es dabei zu 98 bis 99 % im Körper zurückgehalten und ist nach 10 Minuten im Blut feststellbar. Eingeatmetes  $T_2$  und HT werden dagegen nur zu 0,1 bis 5 % absorbiert und zu HTO oxidiert [7].

Eine für die Strahlenbelastung von Gewebe durch ein Radionuklid wichtige Eigenschaft ist die biologische Halbwertszeit  $T_{1/2}^b$ . Sie läßt sich beim Menschen aus der im Körper enthaltenen Wassermenge (Standardwert für den erwachsenen Mann 42 kg [8]) und der Wasserbilanz [8, 9], die in Tab. 2 wiedergegeben wird, abschätzen. Man erhält

$$T_{1/2}^b = \ln 2 \frac{42 \text{ l}}{2,5 \text{ l/d}} \approx 12 \text{ d.}$$

Tab. 2 Aufnahme und Ausscheidung des Standardmenschen - Wasserbilanz

Aufnahme $\text{cm}^3/\text{Tag}$		Ausscheidung $\text{cm}^3/\text{Tag}$	
Nahrung	1 000	Urin	1 400
Flüssigkeiten	1 200	Schweiß	600
Oxydation	300	von der Lunge	300
		Fäzes	200
Gesamt	2 500	Gesamt	2 500

Diese Abschätzung gilt unter der Voraussetzung, daß die Austauschvorgänge bezüglich Wasser in allen Körperorganen gleich schnell verlaufen ("Ein-Compartment-Modell"). Die Erfahrung zeigt jedoch, daß die Verhältnisse komplizierter liegen. Beobachtungen nach Tritiuminkorporationen ergeben, daß das Abklingen der Tritiumkonzentration im Körper besser durch eine Summe von Exponentialfunktionen dargestellt wird, für die verschiedene Halbwertszeiten gelten. In der Literatur sind Werte von ca. 1 - 8 d, 20 - 25 d, 200 - 300 d und ca. 2000 d zu finden (vgl. z.B. [2, 3, 10]). Die angegebenen Zeiten sind dabei als grobe Näherungswerte anzusehen, die von Individuum zu Individuum beträchtlich schwanken können. Die drei größeren Halbwertszeiten werden organisch gebundenem Tritium zugeschrieben.

Im Zusammenhang mit der biologischen Wirkung ist die Frage interessant, inwieweit durch Isotopie-Effekte eine Aufkonzentrierung im Körper oder in der Nahrungskette möglich ist und auch, inwieweit ein besonderer biologischer Schaden durch den Einbau von Tritium in organische Moleküle zu erwarten ist (siehe z.B. [2, 11]).

In Tierexperimenten wurde bisher die Konzentration im Körperwasser immer höher als im Gewebe beobachtet. Dies würde also eher für einen Verdünnungseffekt im Körper sprechen. Fälle, in denen in Lebewesen höhere Konzentrationen als in deren Umgebung gefunden wurden, müssen mit Vorsicht interpretiert werden, da es sich um Nachwirkungen früherer höherer Umweltkontaminationen handeln kann. Dabei kann die Erniedrigung der Umweltkonzentration unter Umständen auch durch einen Wechsel des Aufenthaltsortes verursacht sein.

Ebensowenig wie für eine Aufkonzentrierung im Körper gibt es bisher Hinweise auf eine Aufkonzentrierung in der Nahrungskette. Einer der Gründe hierfür ist, daß organische Verbindungen im allgemeinen nicht unverändert in den Körper eingebaut werden.

Die für die lebenden Zellen gefährlichste Substanz scheint das tritiierte Thymidin zu sein, das bevorzugt von Zellen aufgenommen wird, die vor der Mitose stehen. Thymidin wird in die DNA, den Träger der genetischen Information eingebaut oder zu anderen Substanzen umgebaut. Diese Art der Schädigung ist um einen Faktor 1000 effektiver als die durch HTO. Für die Praxis ist dieser Effekt jedoch ohne Bedeutung, da in der Natur kein Tritium in der Form von Thymidin aufgenommen wird. Andererseits zeigt die Erfahrung, daß von dem in den Körper aufgenommenen HTO nur ein kleiner Bruchteil organisch gebunden wird.

Durch den radioaktiven Zerfall entstehen bei organisch gebundenem Tritium  $^3\text{He}$ -Atome, die das Molekül verlassen. Diese Art der Schädigung darf jedoch nicht überschätzt werden, da das bei dem Zerfallsakt freiwerdende  $\beta$ -Teilchen mehrere hundert Ionen und Radikale hinterläßt, die eine erheblich höhere Wirkung verursachen.

Von Interesse ist auch der Isotopen-Masseneffekt. Es ist bekannt, daß  $^2\text{H}$  in hoher Konzentration toxisch wirkt, wobei hohe Konzentration bedeutet, daß ein wesentlicher Teil der  $^1\text{H}$ -Atome durch  $^2\text{H}$ -Atome ersetzt sind. Eine entsprechend hohe Tritiumkonzentration im Körper würde zu einem tödlichen Strahlenschaden führen. Daher kann der Isotopen-Masseneffekt als Schadensursache außer Betracht bleiben.

Vorstehend wiedergegebene Überlegungen zeigen, daß bei der Aufnahme von Tritium unter den naturgegebenen Umweltbedingungen keine Besonderheiten - verglichen mit den üblichen Verfahren - bei der Berechnung der Strahlenbelastung zu berücksichtigen sind.

## 2. Theoretische Zusammenhänge zwischen Tritiuminkorporation und Strahlenbelastung

### 2.1 Berechnung der Strahlenbelastung durch Tritium bei zeitlich konstanter Tritiuminkorporation

Wegen der geringen Reichweite der von Tritiumkernen ausgesandten  $\beta$ -Teilchen wird die Berechnung der Strahlenbelastung durch Tritium recht einfach und besteht letzten Endes nur in der Anwendung von Umrechnungsfaktoren. Für die Dosisleistung  $\dot{D}$  gilt

$$\begin{aligned} \dot{D} &= \frac{E \cdot (QF) \cdot 1,6021 \cdot 10^{-6} \frac{\text{erg}}{\text{MeV}}}{100 \frac{\text{erg}}{\text{rad}} \cdot \rho} \cdot 3,7 \cdot 10^4 \frac{\text{zps}}{\mu\text{Ci}} \cdot 3600 \frac{\text{s}}{\text{h}} \cdot C \\ &= 2,134 \frac{\text{rad}}{\text{h} \cdot \mu\text{Ci} \cdot \text{MeV}} \frac{E(QF)}{\rho} \cdot C \end{aligned} \quad (1)$$

Hierin bedeuten (QF) den Qualitätsfaktor, E die mittlere  $\beta$ -Energie in MeV,  $\rho$  die Dichte und C die Konzentration.

Aus der Literatur [8, 9] entnimmt man die Werte  $E = 5,73 \text{ KeV}$ ,  $(QF) = 1,7$ ,  $\rho = 1,07 \text{ g/cm}^3$ . Führt man die Rechnung durch, so gelangt man zu der Beziehung

$$\dot{D} = 1,92 \cdot 10^{-2} \frac{\text{rem cm}^3}{\text{h} \mu\text{Ci}} \cdot C \quad (2a)$$

bzw.

$$\dot{D} = 168 \frac{\text{rem cm}^3}{\text{a} \mu\text{Ci}} \cdot C \quad (2b)$$

Hätte man den Wert von (QF) offen gelassen, so hätte sich statt Gl. (2b)

$$\dot{D} = 99 \frac{\text{rem cm}^3}{\text{a} \mu\text{Ci}} \cdot (QF) \cdot C \quad (2c)$$

ergeben.

Gl. (2a) bzw. (2b) setzen eine zeitlich konstante Tritiumkonzentration im Körper voraus. Aus Gl. (2c) liest man ab, daß eine zeitlich konstante Tritiumkonzentration von 1 pCi/ml im Körper eine Strahlenbelastung von 0,10 · (QF) mrem/a verursacht (vgl. auch [12]). Da sich die Strahlenbelastung durch Tritium nur sehr langsam ändert, erhält man eine vernünftige Abschätzung, wenn man annimmt, daß - bezogen auf das Verhältnis der Wasserstoffisotope in den verschiedenen Komponenten des biologischen Systems - die Tritiumkonzentration im Körper die gleiche ist wie die im Wasser der Umwelt [13]. Damit läßt sich die Strahlenbelastung der Bevölkerung leicht abschätzen.

## 2.2 Maximal zulässige Körperbelastung

Ausgehend von Gl. (2b) läßt sich die maximal zulässige Körperbelastung leicht abschätzen. Löst man Gl. (2b) nach C auf und setzt den für beruflich strahlenexponierte Personen höchstzulässigen Dosiswert von 5000 mR/a ein, so erhält man unter Berücksichtigung des Zusammenhangs

$$C = \frac{a}{m (1/\rho)} = \frac{a}{70000 \text{ g } (1/1,07) \frac{\text{cm}^3}{\text{g}}} = \frac{a}{65400 \text{ cm}^3} \quad (3)$$

für die zulässige Körperbelastung 1,96 mCi. Dieser Wert wurde unter der Voraussetzung abgeleitet, daß das Tritium gleichmäßig im Körper verteilt ist. Nun ist der Wassergehalt der einzelnen Körperorgane verschieden, daher erhalten Organe mit höherem Wassergehalt eine höhere Strahlenbelastung. Eine Abschätzung für die zulässige Körperbelastung nach der sicheren Seite erhält man daher, wenn man von einem fiktiven Organ ausgeht, in dem das gesamte Körperwasser (42 l) vereinigt ist. Führt man hierfür die Rechnung durch, so ergibt sich für die zulässige Körperbelastung ca. 1,3 mCi.

### 2.3 Zusammenhang zwischen Konzentration in der Atemluft und der Äquivalentdosisleistung

Die Aktivitätsbilanz des kritischen Organs lautet unter der Voraussetzung, daß die Abnahme der Aktivität durch nur eine effektive Halbwertszeit beschrieben werden kann,

$$\frac{d(qf_2)}{dt} = P - \lambda (qf_2) . \quad (4)$$

Hierin bedeuten  $P$  die tägliche Aktivitätsaufnahme des kritischen Organs

$(qf_2)$  die Aktivität im kritischen Organ  
( $q$ : Aktivität im gesamten Körper,  
 $f_2$  Anteil davon im kritischen Organ)

Erfolgt die Aktivitätsaufnahme über die Atmung, so gilt

$$P = C \cdot S \cdot f_a , \quad (5)$$

worin  $C$  die (als zeitlich konstant angenommene) Konzentration in der Atemluft,  $S$  die Atemrate und  $f_a$  den aus der Atemluft ins kritische Organ gelangenden Bruchteil der Aktivität darstellen. Im Gleichgewichtszustand gilt also nach den Gl. (4) und (5)

$$Sf_a C = \lambda (qf_2) \quad (6)$$

In Gl. (6) läßt sich nun noch  $qf_2$  durch die Äquivalentdosisleistung ausdrücken. Es gilt nach den Gln. (1) und (3)

$$\dot{D} = 1,8694 \cdot 10^4 \frac{\text{g rem}}{\text{MeV} \cdot \mu\text{Ci} \cdot \text{a}} \frac{E_{\text{eff}}}{m} (qf_2) . \quad (7)$$

Hierin bezeichnen  $E_{\text{eff}}$  ( $= (QF) \cdot E$ ) die effektive Energie der Strahlung und  $m$  die Masse des kritischen Organs.

Aus den Gln. (6) und (7) folgt

$$\frac{\dot{D}}{C} = 1,8694 \cdot 10^4 \frac{\text{g rem}}{\text{MeV} \cdot \mu\text{Ci} \cdot \text{a}} \frac{E_{\text{eff}}}{\text{m}} \frac{S f_a}{\lambda} \quad (8)$$

Setzt man hierin  $E_{\text{eff}} = 1 \cdot 10^{-2} \text{ MeV}$ ,  $m = 4,2 \cdot 10^4 \text{ g}$ ,  
 $S = 20 \text{ m}^3/\text{d}$ ,  $f_a = 1$  und  $\lambda = \frac{0,6931}{12} \text{ d}^{-1} = 21,08 \text{ a}^{-1}$ , so  
 folgt

$$\frac{\dot{D}}{C} = 0,0489 \frac{\text{rem m}^3}{\text{Ci sec}} \quad (9)$$

Gl. (9) gilt für das Körperwasser als kritisches Organ.  
 Für den gesamten Körper als kritisches Organ würde man  
 $0,0293 \frac{\text{rem m}^3}{\text{Ci sec}}$  erhalten.

In Gl. (9) ist die Tritiuminkorporation durch die Haut  
 bei Vorliegen von Tritium als HTO-Dampf in der Luft nicht  
 berücksichtigt. Ohne luftdichte Schutzkleidung wird durch  
 die Haut praktisch ebensoviel Tritium wie durch Atmung  
 aufgenommen, so daß der in Gl. (7) angegebene Zahlenwert  
 mit einem Faktor 2 zu multiplizieren ist.

Im Fall einer einmaligen Inkorporation läßt sich die  
 Äquivalentdosis D nach der Beziehung

$$D = 0,10 \frac{\text{rem m}^3}{\text{Ci sec}} \cdot \int C \text{ dt} \quad (10)$$

berechnen. (Hier wurde der im Zusammenhang mit Gl. (9)  
 erwähnte Faktor 2 angewandt.)

Bei der Anwendung von Gl. (10) auf Umweltprobleme ist  
 besondere Sorgfalt im Zusammenhang mit der Bestimmung  
 von  $\int C \text{ dt}$  notwendig, das wegen seiner Kleinheit i.a. nur  
 durch Ausbreitungsrechnungen bestimmt wird. Durch das  
 Auftreten von Kontaminationen ist der tatsächliche Wert  
 von  $\int C \text{ dt}$  unter Umständen um ein Vielfaches größer als  
 der durch eine Ausbreitungsrechnung bestimmte Wert, so  
 daß bei einer rechnerischen Abschätzung der durch Tritium-  
 immissionen verursachten Strahlenbelastung eine erhebliche

Unterschätzung möglich ist. Es sind daher sowohl häufige und genaue Messungen der Tritiumkontamination der Atemluft als auch des im Urin ausgeschiedenen Tritiums notwendig.

#### 2.4 Strahlenbelastung bei einmaliger Inkorporation

Die Strahlenbelastung bei einer einmaligen Inkorporation klingt nach der Beziehung

$$\dot{D}(t) = \dot{D}(0) \sum_i A_i e^{-\lambda_i t} \quad (11)$$

$$\text{mit } \sum_i A_i = 1$$

ab.  $\dot{D}(0)$  kann hierin nach Gl. (2a) bzw. (2b) eingesetzt werden. Die Koeffizienten  $A_i$  sind wie die Abklingkonstanten  $\lambda_i$  für das Individuum empirisch zu ermitteln.

Durch Integration erhält man aus Gl. (11) unter Beachtung von  $\lambda_i = \ln 2 / T_{1/2,i}$  ( $T_{1/2}$  = effektive Halbwertszeit)

$$D = \int \dot{D}(t) dt = \dot{D}(0) \cdot \ln 2 \sum_i A_i T_{1/2,i} \quad (12)$$

Sobald organisch gebundenes Tritium eine Rolle spielt, ist Gl. (12) an Stelle von Gl. (10) zu verwenden, da dann die größeren effektiven Halbwertszeiten erhebliche Beiträge zur Dosis liefern, bzw. es ist eine numerische Integration einer der Gln. (2) auszuführen, um den Umweg über die Bestimmung der Größen  $A_i$  und  $\lambda_i$  zu vermeiden. Bei konstantem Aktivitätspegel ist es dagegen ohne Bedeutung, in welcher Form Tritium vorliegt, wenn es sich nicht gerade um eine Verbindung handelt, für die ein anderes kritisches Organ in Betracht zu ziehen wäre. Nach den bisherigen Erfahrungen ist jedoch nicht zu erwarten, daß solche organischen Verbindungen radioökologische Bedeutung erlangen werden, wenngleich ein gewisser Anstieg des Anteils an organisch gebundenem Tritium in

der Umwelt im Verlauf von Jahrzehnten denkbar ist.

### 3. Quellen der Tritiumkontamination der Umwelt

Die heutige Tritiumkontamination der Umwelt ist zum überwiegenden Teil künstlich erzeugt. Ein geringer Bruchteil ist natürlichen Ursprungs. Im folgenden wird zusammenfassend über die wichtigsten Tatsachen berichtet. Bezüglich weiterer Einzelheiten wird auf zusammenfassende Arbeiten wie z.B. [14, 15] verwiesen.

#### 3.1 Natürliche Tritiumproduktion

Der Hauptanteil des natürlich entstandenen Tritiums wird in der oberen Atmosphäre bei Kernreaktionen mit Stickstoff und Sauerstoff erzeugt. Die wichtigsten tritiumerzeugenden Reaktionen sind Spallation durch Protonen mit Energien oberhalb 100 MeV sowie die Reaktionen  $^{14}\text{N}(n,t)^{12}\text{C}$  und  $^{16}\text{O}(n,t)^{14}\text{N}$  mit Sekundärneutronen aus der kosmischen Strahlung. In Tab. 3, die aus der Arbeit [16] übernommen wurde, sind die Beiträge der verschiedenen Nukleonenenergien angegeben.

Tab. 3 Tritiumproduktion in der Atmosphäre [18]

Erzeugende Komponente der kosmischen Strahlung	Tritiumfluß ( $\text{cm}^{-2} \text{sec}^{-1}$ )	
	Bestwert	Grenzen
Nukleonen > 100 MeV	0,082	0,062 - 0,102
Nukleonen 10-100 MeV	0,01	0,00226 - 0,046
Neutronen < 10 MeV	0,05	0,022 - 0,077
Muonen, Gammas	$10^{-5}$	
Summe	0,14	0,09 - 0,22

Die Angaben über die Tritiumproduktion in der Atmosphäre schwanken in einem weiten Bereich, nämlich von 0,09 bis 2,0 Tritiumatome pro  $\text{cm}^2$  und sec. Diese Schwankung entspricht Gleichgewichtswerten des Weltinventars von 12 bis 275 MCi [15 - 18]. (Aus der Erdoberfläche von  $5,10 \cdot 10^{18} \text{ cm}^2$  und einer Produktionsrate von  $1 \text{ }^3\text{H-Atom/cm}^2 \text{ sec}$  ergibt sich eine Gleichgewichtsaktivität von 137,8 MCi.)

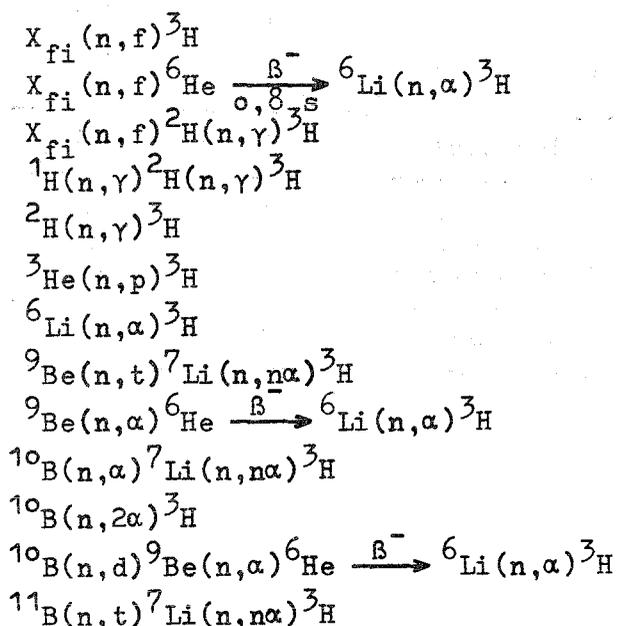
Eine weitere Quelle für die Erzeugung von Tritium sind die spontane Spaltung von Uran und über  $(\alpha, n)$ -Reaktionen ausgelöste Spaltungen von Uran und Thorium sowie Kernreaktionen. Nach [17] ist jedoch der Beitrag der Tritiumproduktion vernachlässigbar klein.

Der Vollständigkeit halber sei der Einfang von aus der Sonne ausgeströmtem Tritium in der Erdatmosphäre als weitere Quelle für natürliches Tritium erwähnt [19]. Er wird in [20] zu  $0,4 \text{ }^3\text{H-Atome/cm}^2 \text{ sec}$  angegeben.

### 3.2 Tritiumproduktion in Fissionsreaktoren

Die wichtigsten Tritiumentstehungsreaktionen in Fissionsreaktoren sind in Tab. 4 zusammengestellt. Neben der diesen

Tab. 4 Wichtigste  $^3\text{H}$ -Entstehungsreaktionen in Reaktoren



Reaktoren gemeinsamen Kernspaltung führt eine Reihe von Kernreaktionen zur Bildung von Tritium. Die Tritiumausbeute hängt vom Neutronenspektrum sowie von den im Reaktor vorhandenen Materialien ab.

Tab. 5 gibt eine Übersicht über die Ausbeuten an Tritium bei verschiedenen Spaltstoffen und verschiedenen Neutronenenergien. Die angegebenen Werte wurden nach einem semiempirischen Verfahren berechnet [21]. Wie man erkennt, liefern die Plutoniumisotope um einen Faktor 2 bis 3 höhere Spaltausbeuten.

Tab. 5 Ausbeuten an  $^3\text{H}$  verschiedener Spaltstoffe [21]

Spaltnuklid	n-Energie (MeV)	errechnete $^3\text{H}$ -Ausbeute in $10^{-4}$
U-233 + n	0	1,1
U-235 + n	0	1,3
	1,0	1,2
	2,5	1,1
	3,0	0,82
U-238 + n	0	2,6
	2,5	1,4
Pu-239 + n	0	2,3
	1,0	2,5
Pu-240	Spontanspaltung	3,2
Pu-241 + n	0	2,6
Pu-242	Spontanspaltung	3,1
Cf-252	Spontanspaltung	2,3

In Tab. 6 ist die Tritiumproduktion in verschiedenen Reaktortypen zusammengestellt. Die angegebenen Zahlen können dabei nur als Anhaltspunkte dienen, da der Zusammenhang zwischen der Produktionsrate und der durch Spaltung freigesetzten Energie in Wirklichkeit erheblich komplizierter ist.

Tab. 6 Tritiumproduktion in Reaktoren

Reaktortyp / Vorgang	Produktionsrate in Ci/MWa
Kernspaltung ( $^{235}\text{U}$ )	ca. 5,2
Schwerwasserreaktoren	650 - 1100
Leichtwasserreaktoren	6,0 - 9,9
Na-gekühlter schneller Brüter	5,5 - 17,3

Die Tritiumproduktion durch Spaltung läßt sich leicht abschätzen: Für die Freisetzung einer Energie von 1 MWa sind  $9,83 \cdot 10^{23}$  Spaltungen erforderlich. Bei einer Spaltausbeute von  $1,3 \cdot 10^{-4}$  (s. Tab. 5) erhält man unter Berücksichtigung der in Tab. 1 angegebenen Zerfallskonstante den in der Tabelle für  $^{235}\text{U}$  angegebenen Wert. Die für Schwerwasserreaktoren angegebenen Zahlen sind im Zusammenhang mit den Reaktoren MZFR und FR 2 im Kernforschungszentrum Karlsruhe ermittelte Erfahrungswerte. Die übrigen Zahlen in Tab. 6 sind aus [15] entnommen. Der Vergleich zeigt, daß bei Schwerwasserreaktoren die Tritiumproduktion durch Kernspaltung vernachlässigbar gegen jene im Schwerwasser ist. In Leichtwasserreaktoren wird durch Kernreaktionen im Extremfall die Tritiumproduktionsrate gegenüber dem Beitrag der Spaltung verdoppelt, während man im natriumgekühlten schnellen Brüter eine Verdreifachung der Produktionsrate erreichen kann.

### 3.3 Tritiumproduktion für Kernfusion

Bei langfristigen Vorhersagen über die Tritiumproduktion muß auch die Kernfusion berücksichtigt werden. Eine leicht nachzuvollziehende Abschätzung wird in [22] gegeben: Nimmt man an, daß die Energie im Fusionsreaktor durch die beiden Reaktionen  ${}^2\text{H}(t,n){}^4\text{He}$  und  ${}^6\text{Li}(n,t){}^4\text{He}$  erzeugt wird, deren Energiefreisetzung 17,6 bzw. 4,8 MeV beträgt, so erhält man pro Kernfusion eine Energiefreisetzung von 22,4 MeV. Unter der Annahme eines Energiebedarfs, der durch Fusion gedeckt werden soll, kann man also die Zahl der Fusionen und damit die Zahl der zu produzierenden Tritiumkerne erhalten. Man erhält einen Tritiumbedarf von 0,42 MCi/MWa freigesetzter Energie, da für die Freisetzung der Energie von 1 MWa  $8,79 \cdot 10^{24}$  Fusionen, also auch ebensoviele Tritiumatome, erforderlich sind. Bei einer installierten Kraftwerksleistung von  $10^6$  MW - dies ist die Größenordnung des jetzigen Weltbedarfs an Strom (vgl. z.B. [24, 25]) - erhält man also einen Tritiumbedarf von  $4 \cdot 10^{11}$  Ci/a.

### 4. Strahlenbelastung der Bevölkerung durch Freisetzung von Tritium

Tritium wird von kerntechnischen Anlagen sowohl im Abwasser als auch in der Abluft in die Umgebung abgegeben. Dort wird es mit dem zirkulierenden Wasser vermischt, dessen Gesamtvolumen in [14] auf  $2,74 \cdot 10^{16} \text{ m}^3$  geschätzt wird. (Durch Multiplikation der Meeresoberfläche mit 75 m - es wird also angenommen, daß Wasser unterhalb dieser Wassertiefe nicht an der Durchmischung teilnimmt - erhält man  $2,70 \cdot 10^{16} \text{ m}^3$ , zu denen noch kleine Beiträge des Wassers in Oberflächengewässern auf den Kontinenten und des oberflächennahen Grundwassers sowie des Feuchtegehaltes der Atmosphäre hinzukommen.)

Die Verdünnung von Tritium, das in die Umwelt freigesetzt worden ist, ist - entsprechend dem Wasserkreislauf - ein sehr komplizierter Vorgang. Im einzelnen sind die Verdunstung aus Oberflächengewässern, aus dem Boden und an Pflanzen, der Ab-

lauf des Wassers zum Meer, Verdünnung mit Grundwasser, Meeresströmungen usw. zu berücksichtigen. Auch die Zivilisation beeinflusst den Wasserkreislauf in einer nicht vernachlässigbaren Weise. Auf keinen Fall lassen sich die Vorgänge durch einfache Ausbreitungsmodelle hinreichend genau beschreiben, so daß eine meßtechnische Überwachung unbedingt erforderlich ist, um die Tritiumkontamination in der Umgebung von Emittenten unter Kontrolle zu halten. Einzelheiten über die Ausbreitung von Tritium in der Umwelt enthält der Bericht [23].

Tab. 7 enthält eine grobe Wasserbilanz für die Bundesrepublik und die Welt. Die Werte sind in m/a ( $m^3/m^2$  Bodenfläche und Jahr) angegeben.

Tab. 7 Mittlere Wasserbilanz in m/a

		BRD [27]	Welt [14]
Niederschlag über Festland		0,80	0,66
Ablauf	Oberflächenwasser	0,30	0,25
	Grundwasser	0,09	
Verdunstung	Oberflächengewässer	0,01	0,41
	Boden, landwirtsch. Nutzung	0,11	
	Pflanzen	0,29	

Man erhält eine Abschätzung für die Strahlenbelastung durch die in die Umwelt freigesetzte Tritiumaktivität A, wenn man in Gl. (2c)  $C = A / (2,74 \cdot 10^{16} m^3)$  einsetzt. Man erhält

$$\dot{D} = 3,61 \cdot 10^{-15} \frac{\text{rem}}{\text{a} \cdot \text{Ci}} \cdot (\text{QF}) \cdot A \quad (13a)$$

bzw. für (QF) = 1,7

$$\dot{D} = 6,13 \cdot 10^{-15} \frac{\text{rem}}{\text{a} \cdot \text{Ci}} \cdot A \quad (13b)$$

Die Gln. (13a) bzw. (13b) stellen Abschätzungen nach der unsicheren Seite dar, da sie vollständige Durchmischung des freigesetzten Tritium im zirkulierenden Wasser voraussetzen.

#### 4.1 Freisetzung von Tritium aus kerntechnischen Anlagen

Die Tritiumfreisetzung aus Schwerwasserreaktoren ist im wesentlichen durch die nicht zu vermeidenden Schwerwasserverluste bedingt. Bei den beiden Schwerwasserreaktoren im Kernforschungszentrum Karlsruhe betrug die jährliche Tritiumfreisetzung 1971 6,7 ‰ (MZFR) bzw. 4,9 ‰ (FR 2) des Inventars. Die Freisetzung in die Atmosphäre lag zwischen 80 und 85 % der Gesamtfreisetzung. Der Rest gelangte ins Abwasser.

In Leichtwasserreaktoren diffundiert ein Teil des entstandenen Tritiums durch die Umhüllung des Brennstoffes in das Kühlmittel und gelangt dann bei Kühlmittelverlusten in die Atmosphäre bzw. ins Abwasser. Die Freisetzungsraten hängen erheblich vom Reaktortyp ab [3]. Die Verbesserung der Hüllwerkstoffe wird sicher zu einer Verlagerung der Freisetzung des durch Spaltung entstandenen Tritiums in die Wiederaufbereitungsanlagen führen. Die Freisetzung aus Wiederaufbereitungsanlagen ist vom angewandten Verfahren abhängig.

Da es mit einem wirtschaftlich vernünftigen Aufwand praktisch nicht möglich ist, Tritium aus Wasser zu entfernen, bleibt daher nur die Lagerung als einzige Möglichkeit, Tritium aus dem Wasserkreislauf in der Umwelt fernzuhalten. Hieraus ergibt sich, daß die Verdünnung von Tritium in Abwässern möglichst vermieden werden sollte, wenn dieses in Konzentrationen anfällt, die eine Lagerung sinnvoll erscheinen lassen. Nach einer Dekontamination von anderen Radionukliden bietet sich die Endlagerung in Schluckbrunnen als Möglichkeit an, einen wesentlichen Teil der produzierten Tritiummenge aus dem Wasserkreislauf der Umwelt fernzuhalten [26].

#### 4.2 Freisetzung von Tritium bei Kernwaffenexplosionen

Eine Sprengkraft äquivalent 1 kt TNT entspricht einer freigesetzten Energie von 0,13 MWa. Nach Tab. 6 entspricht dem also eine Tritiumproduktion und -freisetzung von 0,68 Ci bei einer Spaltbombe. Dies stimmt mit Angaben in [14, 15] überein.

Bei der Explosion von thermonuklearen Bomben werden ca. 7 MCi Tritium pro Mt TNT-Äquivalent freigesetzt.

Zu der Freisetzung aus der eigentlichen Kernwaffenexplosion kommt noch die Tritiumproduktion bei Sekundärreaktionen mit Sauerstoff, Stickstoff und Bombenmaterialien sowie evtl. verschiedenen Nukliden im Erdboden. Für thermonukleare Explosionen findet man hierfür Schätzwerte bis zu 50 MCi/Mt TNT-Äquivalent [14, 15, 28].

Die Tritiumfreisetzung bei der Explosion thermonuklearer Bomben ist also ungleich höher als bei der von Spaltbomben. Die gesamte Freisetzung bei den vorausgegangenen Kernwaffenversuchen wurde auf  $1,7 \cdot 10^9$  Ci Tritium geschätzt (vgl. z.B. [14]). Setzt man als Schätzwert für das derzeitige Tritiuminventar der Hydrosphäre  $10^9$  Ci in Gl. (13b) ein, so folgt eine Strahlenbelastung von 6  $\mu\text{rem/a}$ .

#### 4.3 Strahlenbelastung aus tritiumhaltigen Leuchtfarben

Im Zusammenhang mit der Strahlenbelastung der Bevölkerung durch Tritium dürfen tritiumhaltige Leuchtfarben nicht unerwähnt bleiben. Diese führen nicht nur zu einer Belastung bei der Herstellung sondern auch bei der Benutzung.

Der Zusammenhang zwischen dem Tragen von Armbanduhren mit tritiumhaltigen Leuchtziffern und dem Tritiumgehalt im Urin ihrer Träger wird in [29] untersucht. Dabei wurde im Extremfall mehr als das zehnfache der Tritiumkontamination im Urin als bei Vergleichspersonen gefunden. Daher darf diese Art der Tritiumbelastung nicht außer Acht gelassen

werden, obwohl sie noch weit unter der Grenze des Zulässigen liegt.

#### 4.4 Vergleich mit experimentellen Daten

Nach eigenen Messungen [30] in der weiteren Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe, die recht gut mit jenen anderer Autoren [31 - 37] übereinstimmen, liegt die Tritiumkonzentration im Trinkwasser, der Luftfeuchte und im Oberflächenwasser in der Größenordnung 1 pCi/ml ( $= 10^{-6}$  Ci/m<sup>3</sup>). Es erscheint daher zulässig, diesen Wert in Gl. (2b) einzusetzen. Man erhält damit eine jährliche Strahlenbelastung von 0,17 mrem/a, einen Wert also, der um einen Faktor größer als 10 höher als der unter 4.2 berechnete ist.

Bei einer genaueren Abschätzung der Tritiumbelastung der Bevölkerung sind die Unterschiede in der Größe der Konzentration in der Atemluft, im Trinkwasser und in der Nahrung zu beachten. Nach hier durchgeführten Messungen, über die an anderer Stelle ausführlich berichtet werden soll [38], liegt z.B. die Tritiumkontamination im Niederschlag und in ausgefrorener Luftfeuchte deutlich über jener im Oberflächenwasser. Auch wurden in der Luftfeuchte, die in geschlossenen Räumen ausgefroren wurde, in den meisten Fällen höhere Tritiumkonzentrationen als in Proben, die gleichzeitig im Freien ausgefroren wurden, gefunden.

#### 4.5 Strahlenbelastung bei Energieerzeugung durch Kernfusion

Wie unter 3.3 gezeigt wurde, würden zur Erzeugung des jetzigen Weltbedarfs an Strom durch Kernfusion  $4 \cdot 10^5$  MCi/a Tritium als "Brennstoff" benötigt. Diese Zahl liegt um drei Größenordnungen über dem z.Z. in der Umwelt befindlichen Tritium. Es ist daher notwendig, dem Tritiumproblem bei der Entwicklung eines Fusionsreaktors besondere Aufmerksamkeit zu widmen, zumal noch eine erhebliche Steigerung des Weltenergiebedarfs zu erwarten ist. Dies wird insbe-

sondere deutlich, wenn man der Tritiumproduktion eines Schwerwasserreaktors von  $10^3$  Ci/MWa dem Tritiumbedarf des Fusionsreaktors von  $4 \cdot 10^5$  Ci/MWa gegenüberstellt. Es ist daher eine Einschließung des Tritiums anzustreben, die um einige Größenordnungen besser als die bei Schwerwasserreaktoren ist.

#### 5. Zukünftige Entwicklung der Strahlenbelastung der Bevölkerung durch Tritium

Aus Abschätzungen der zeitlichen Entwicklung des Tritiuminventars der Welt (vgl. z.B. [3, 15]) läßt sich unter Berücksichtigung von Gl. (13a) bzw. (13b) die zu erwartende Strahlenbelastung der Bevölkerung ableiten. Nach den Vorhersagen werden um das Jahr 2000 die in Reaktoren erzeugte Tritiumaktivität und das durch Kernwaffenversuche freigesetzte Tritium etwa die gleiche Größenordnung erreichen, vorausgesetzt, daß nicht durch weitere Kernwaffenexplosionen erhebliche Tritiummengen erzeugt bzw. freigesetzt werden. Bei Addition der Beiträge aus Kernwaffenexplosionen und aus der friedlichen Anwendung der Kerntechnik gelangt man zu dem Ergebnis, daß sich die derzeitige Strahlenbelastung der Bevölkerung bis zum Jahr 2000 nicht erheblich ändern dürfte. Die unter 4.4 gezeigte Diskrepanz zwischen gemessenen Werten und den abgeschätzten Werten um einen Faktor größer als 10 nach der unsicheren Seite hin macht jedoch deutlich, daß eine Abschätzung der Strahlenbelastung der Bevölkerung nach den Gln. (13) zu grob und daher eine sorgfältige Beobachtung der Tritiumkontamination in der Umwelt erforderlich ist.

#### Schlußbemerkung

Die Strahlenbelastung der Bevölkerung durch Tritium beträgt z.Z. nur 1‰ der natürlichen bzw. wenige Prozent der nicht-natürlichen Strahlenbelastung. Trotzdem erscheint ihre laufende Überwachung sinnvoll, da bei der Beurteilung der Beeinträchtigung der Umwelt durch die Zivilisation viele kleine Effekte

aufzusummieren sind. Andererseits vermittelt das Studium des zeitlichen Verlaufs und der räumlichen Verteilung der Umweltkontamination interessante Erkenntnisse über die Zirkulation des Wassers und damit auch über die Verteilung von Schadstoffen in der Hydrosphäre.

- [ 1 ] Europäische Atomgemeinschaft: Strahlenschutznormen, Juni 1967
- [ 2 ] J.W. Elwood: Nuclear Safety, 12, 326 (1971)
- [ 3 ] R. Boehnert, H. Bonka: Zu erwartende Tritiumverunreinigung durch Kernreaktoren in der Luft und im Wasser bei homogener Verteilung bis zum Jahr 2000, Jül-763-RG, Mai 1971
- [ 4 ] E. Dietrich, L.A. König: Atompraxis, 13, Heft 10, (1967)
- [ 5 ] H. Kiefer, R. Maushart: Strahlenschutzmeßtechnik, Verlag G. Braun, Karlsruhe, 1964
- [ 6 ] C.M. Lederer, J.M. Hollander, I. Perlman: Table of Isotopes, 6<sup>th</sup> Edition, John Wiley and Sons, Inc., New York, 1968
- [ 7 ] E.A. Pinson, W.H. Langham: J. Appl. Physiology, 10, 108 (1957)
- [ 8 ] Bureau of Radiological Health and Training Institute Environmental Control Administration: Radiological Health Handbook, US Department of Health, Education, and Welfare, Public Health Service, Publication No. 2016, January 1970
- [ 9 ] Recommendations of the International Commission on Radiological Protection (ICRP Publication 2), Report of Committee II on Permissible Dose for Internal Radiation (1959), Pergamon Press, London - New York - Paris - Los Angeles
- [ 10 ] A.A. Moghissi, M.W. Carter, R. Liebermann: Health Physics, 21, 57 (1971)
- [ 11 ] V.P. Bond: Evaluation of Potential Hazards from Tritiated Water, IAEA-SM-146/13, STI/PUB/261, 287 (1971)

- [ 12 ] A.A. Moghissi, C.R. Porter: Radiological Health Data and Reports, 9, 337 (1968)
- [ 13 ] A.A. Moghissi, R.G. Patzer, M.W. Carter: Environmental Aspects of Tritium, Tritiumsymposium Las Vegas, Nev., 30.8.-2.9.1971
- [ 14 ] D.G. Jacobs: Sources of Tritium and its Behaviour upon Release to the Environment, TID-24 635 (1968; 1971)
- [ 15 ] H.T. Peterson Jr., J.E. Martin, C.L. Weaver, E.D. Harward: Environmental Tritium Contamination from Increasing Utilisation of Nuclear Energy Sources, IAEA-SM-117/78, STI/PUB/226, 35 (1969)
- [ 16 ] F. Begemann, W.F. Libby: Geochimica et Cosmochimica Acta 12, 227 (1957)
- [ 17 ] S. Kaufman, W.F. Libby: Physical Review, 93, 1337 (1954)
- [ 18 ] L.A. Currie, W.F. Libby, R.L. Wolfgang: Physical Review, 101, 1557 (1956)
- [ 19 ] J.R. Arnold, B. Feld: In [ 16 ] zitierte private Mitteilung (1956)
- [ 20 ] E. Flamm, R.E. Lingenfelter, G.J.F. MacDonald, W.F. Libby: Science, 138, 48 (1962)
- [ 21 ] N.D. Dudgey: Review of Low-mass Atom Production in Fast Reactors, ANL 7434 (1968)
- [ 22 ] D.J. Rose: Health Physics, 18, 439 (1970)
- [ 23 ] J.J. Koranda, J.R. Martin: The Movement of Tritium in Ecological Systems, UCRL-73 178, Tritiumsymposium Las Vegas, Nev., 30.8.-2.9.1971
- [ 24 ] M.K. Hubbert: Energy Resources for Power Production, IAEA-SM-146/1, STI/PUB/261, 13 (1971)

- [25] P.C. Putnam: Energy in the Future, Van Norstrand, New York (1953)
- [26] W. Hild: Beitrag zum Statusbericht des Projektes Schneller Brüter am 29.10.71. Zitiert in Nachr. Chem. Techn., 20, 5 (1972)
- [27] O. Uhden: Taschenbuch landwirtschaftlicher Wasserbau, Franckh Verlag, Stuttgart (1964)
- [28] O.I. Leipunsky: Radiation Hazards from Clean Hydrogen Bomb and Fission Atomic Bomb Explosions (U.N. translation). Hearings, Joint Committee on Atomic Energy of the Congress of the United States, Fallout from Nuclear Weapons Tests, Volume 3, May 5-8, 1959, pp. 2423 - 2447
- [29] W.R. Schell, B.R. Payne: International Journal of Applied Radiation and Isotopes, 22, 653 (1971)
- [30] L.A. König, M. Winter: Über die Tritiumkontamination der Umwelt, Symposium "Die Radioökologie, angewendet auf den Schutz des Menschen und seiner Umwelt", Rom, 7.-10.9.1971
- [31] Der Bundesminister für Bildung und Wissenschaft: Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung, laufende Jahresberichte
- [32] Bundesministerium für soziale Verwaltung: Radioaktivitätsmessungen in Österreich, 8. Jahresbericht 1967 (1968), Wien; 9. Jahresbericht 1968 (1969), Wien; 10. Jahresbericht 1969 (1970), Wien
- [33] Environmental Protection Agency: Radiological Health Data and Reports, laufende Veröffentlichungen von Meßwerten
- [34] D.C. Boden, C.A. Henkel, C.G.C. White, G.A. Welford: Tritium Intake in New York City, Tritiumsymposium, Las Vegas, Nev., 30.8.-2.9.1971

- [ 35 ] F.J. Cosolito: Environmental Tritium Measurements, Tritiumsymposium Las Vegas, Nev., 30.8.-2.9.1971
- [ 36 ] J.S. Leventhal, W.F. Libby: J. Geophys. Research, 75, 7628 (1970)
- [ 37 ] IAEA: World Survey of Isotope Concentration, Environmental Isotope Data, Technical Report Series No. 129-STI/DOC/10/129
- [ 38 ] L.A. König, H. Schüler, M. Winter: KFK-Bericht in Vorbereitung