

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

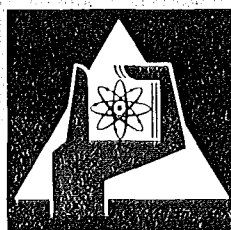
März 1974

KFK 1912

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
Projekt Nukleare Sicherheit

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

F. Porz



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

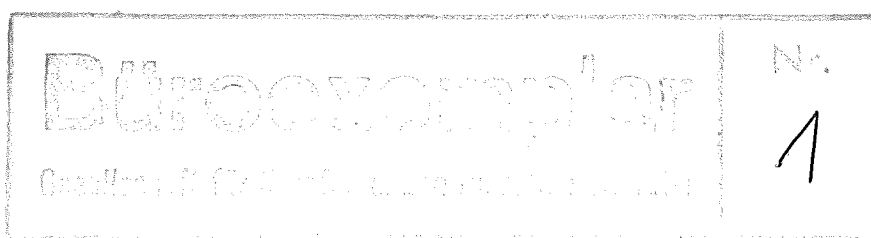
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
Projekt Nukleare Sicherheit

Erzeugung und Freisetzung von radioaktiven Jod-
isotopen durch Kernreaktoren und Wiederaufarbei-
tungsanlagen und die voraussichtliche radio-
logische Belastung bis zum Jahr 2000

F. Porz



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

Es wird die natürliche Produktion von radioaktiven Jodisotopen beschrieben, sowie die Produktion durch Kernwaffenexplosionen und kerntechnischen Anlagen. Für die verschiedenen Typen von Kernkraftwerken werden die spezifischen Produktionsraten ermittelt und die zur Zeit üblichen Abgaberaten an die Umgebung zusammengestellt. In der gleichen Weise werden die Abgaberaten von Wiederaufarbeitungsanlagen dargestellt. Es wurde eine Abklingzeit - Dekontaminationsfaktor - Parameterstudie durchgeführt für eine 1500 to/a - Wiederaufarbeitungsanlage unter der Auflage, daß die Schilddrüsen-Dosisgrenze von 90 mrem/a nicht überschritten werden darf. Aufbauend auf dem prognostizierten Einsatz von Kernenergieanlagen bis zum Jahr 2000 werden die jahresabhängigen Produktions- und Freisetzungsraten sowie die akkumulierten Mengen berechnet.

Production and Release of Radioiodines by Nuclear Power Plants and Reprocessing Plants and the Expected Radiological Burden till the Year 2000

The natural production of radioiodines is summarised in this report together with the yields from nuclear weapons and nuclear facilities. Specific production rates and the consequent release rates, representative of time are evaluated for the different types of nuclear power plants. Release rates from fuel reprocessing plants are also included. For a 1500 t/a -reprocessing plant a decay-decontamination factor-study was performed with the condition that a dose of 90 mrem/a is not exceeded for any release. Based on the forecasted onset of nuclear facilities till the year 2000, the time-dependent production rates as well as the global inventory are calculated.

I N H A L T

	Seite
1. Einleitung	1
2. Eigenschaften der Jodisotope	3
3. Natürliches Vorkommen von radioaktivem ^{129}J	12
4. Joderzeugung und -freisetzung durch Kernreaktoren	15
4.1 Joderzeugung in Kernreaktoren	15
4.2 Jodfreisetzung durch Kernreaktoren	22
4.2.1 Leichtwasserreaktoren	22
4.2.2 Schwerwasserreaktoren	31
4.2.3 Gasgekühlte Reaktoren	34
4.2.4 Schnelle Natriumgekühlte Brutreaktoren	36
5. Jodabgabe durch Wiederaufarbeitungsanlagen	38
6. ^{129}J aus oberirdischen Kernwaffenexplosionen	48
7. Voraussichtliche radiologische Belastung durch die Abgabe von Jodisotopen aus kerntechnischen Anlagen	50
7.1 Lokale Belastung	50
7.2 Globale Belastung	54
8. Zusammenfassung	60
Literaturverzeichnis	64

1. Einleitung

Bei der Kernspaltung in Kernreaktoren entstehen Spaltprodukte, die zum größten Teil radioaktiv sind. Die meisten von diesen Spaltprodukten wandeln sich durch eine Reihe von β -Zerfällen in stabile Isotope um.

Da die radioaktiven Spaltprodukte und ihre radioaktiven Folgesubstanzen ein Gefahrenpotential für die Bevölkerung darstellen, versucht man, ihren Ausfluß aus kerntechnischen Anlagen soweit wie möglich zu verhindern. Dies geschieht bei Kernkraftwerken durch Einschluß in Brennelementhüllen, Primärkreis und Containment und bei Wiederaufarbeitungsanlagen durch hochwirksame Prozeßabgasreinigungssysteme. Durch technisch unumgängliche Lecks ist ein geringfügiges Austreten von Spaltprodukten auch bei Normalbetrieb im Prinzip nicht zu vermeiden, doch sollten diese Ausflüsse "as low as practicable" sein, wie die USAEC [1] ihre Kriterien formuliert.

Von den aus allen kerntechnischen Anlagen ausfließenden radioaktiven Substanzen stellen die Jodisotope eine wichtige Gruppe dar auf Grund der hohen Spaltausbeute, der großen Flüchtigkeit und der hohen Schilddrüsendosisfaktoren. Von diesen wiederum sind das ^{129}J wegen seiner großen Halbwertszeit von $1.6 \cdot 10^7$ Jahren und das ^{131}J wegen des großen Schilddrüsendosisfaktors bei einer Halbwertszeit von 8.05 Tagen die wichtigsten Isotope. Nach Comar [2] wurde die Bedeutung des Jodisotops ^{131}J zwar früh erkannt, aber man widmete ihm zunächst nicht die Aufmerksamkeit wie den beiden anderen wichtigen, in den Lebensmitteln vorhandenen Nukliden ^{90}Sr und ^{137}Cs . Dem Jodisotop ^{129}J beginnt man ab etwa 1971, seit man wie Russel und Hahn [3] Überlegungen über die Akkumulation anstellt, Bedeutung beizumessen.

Das von den kerntechnischen Anlagen in die Atmosphäre abgegebene Jod gelangt durch Inhalation direkt und durch In-

gestion über den Weide-Kuh-Milch-Pfad in den menschlichen Körper, wo es sich in der Schilddrüse anreichert. Die Aufnahme über den Milchpfad übertrifft bei weitem die Aufnahme über die Atemwege [4]. Als ^{Richt}Grenzwert für die Schilddrüsenbelastung von Kleinkindern, die die kritischste Bevölkerungsgruppe darstellen, wurden von der Deutschen Atomkommission [5] 90 mrem/a vorgeschlagen. +)

Das Ziel dieser Arbeit ist es, sowohl für Leichtwasserreaktoren, die in der nahen Zukunft in Deutschland und den USA den überwiegenden Anteil bei der Kernenergieerzeugung einnehmen werden, als auch für andere Reaktortypen, die zum Teil parallel gebaut oder in Zukunft an Bedeutung gewinnen werden, die Erzeugung von Jodisotopen zu beschreiben und die entsprechenden Freisetzungsraten in die Umgebung anzugeben. Weiterhin wird die Jodfreisetzung aus Wiederaufarbeitungsanlagen, wie sie zur Zeit in Betrieb sind oder mit 1500 t/a Durchsatz geplant sind, dargestellt. Aufgrund der Energiebedarfsprognosen und der heute üblichen Freisetzungsraten wird versucht, eine Übersicht über die radiologische Belastung bis zum Jahr 2000 zu geben. Hierbei ist vor allem das ^{129}J wegen seiner Akkumulation und des Kreislaufs in der Atmosphäre, Hydrosphäre und Biosphäre von Bedeutung.

Unter den bisherigen wesentlichen Arbeiten über Jod sind zu nennen: Die Berichte von Russel und Hahn [3] und von König [6], die sich ausschließlich mit ^{129}J befassen, sowie die Arbeit von Stigall, Fowler und Krieger [7] über die ^{131}J -Abgabe aus Siedewasserreaktoren, die auf einer Studie von Kahn [8] basiert. Berücksichtigt wurden ferner die Ergebnisse, die auf dem 7. IRS-Fachgespräch in Köln (8./9. November 1971) sowie auf der 4. Genfer Konferenz über die friedliche Nutzung der Atomenergie (6.-16. September 1971) vorgelegt wurden.

+)
Die USAEC schlägt einen "Design Value" von 15 mrem/a vor, der allerdings mehrfach überschritten werden darf.

2. Eigenschaften der Jodisotope

Bei der Kernspaltung werden die Jodisotope ^{127}J bis ^{139}J gebildet $\langle \bar{9} \rangle$. Von diesen ist nur das Isotop ^{127}J stabil. Die Halbwertszeiten der übrigen zwölf radioaktiven Isotope liegen zwischen 2.7 sec (^{139}J) und $1.6 \cdot 10^7$ a (^{129}J). Die Isotope ^{128}J und ^{130}J entstehen nur direkt aus der Spaltung, während die übrigen Jodisotope direkt gebildet werden und außerdem durch Zerfall ihrer Vorläuferkerne entstehen. Die Spaltausbeuten y der Isotope ^{128}J und ^{130}J sind so niedrig (für therm. Spaltung des ^{235}U : $y_{128\text{J}} = 3.8 \cdot 10^{-5}\%$ und $y_{129\text{J}} = 1.17 \cdot 10^{-3}\%$ $\langle \bar{9} \rangle$), daß diese gegenüber den übrigen Jodisotopen mit Spaltausbeuten von einigen % vernachlässigt werden können.

Die Inkorporation des Jods über den Milchpfad ist weitaus größer als die direkte Inkorporation durch Inhalation. Die Zeitspanne zwischen der Emission des Jods mit der Abluft und dem Genuß der kontaminierten Milch beträgt etwa zwei bis drei Tage $\langle \bar{10} \rangle$. Deshalb sind für die Abgabe aus kerntechnischen Anlagen nur die Jodisotope mit Halbwertszeiten größer als etwa drei Stunden wichtig. Es sind dies die Isotope ^{129}J , ^{131}J , ^{133}J und ^{135}J . In Tabelle 2.1 sind sie mit den entsprechenden kumulativen Spaltausbeuten, den radiologischen Halbwertszeiten und den Zerfallsenergien angegeben. Für die Verknüpfung der Aktivitätsabgaberate mit der Abluft \dot{A} $\langle \bar{\text{Ci/a}} \rangle$ und der Schilddrüsendosisrate \dot{D} $\langle \bar{\text{rem/a}} \rangle$ gilt die folgende Beziehung:

$$\dot{D} = (g_H + g_G) \cdot J \cdot \dot{A} \quad (1)$$

mit $J \langle \bar{\frac{\text{sec}}{\text{m}^3}} \rangle =$ Ausbreitungsfaktor

$g_H \langle \bar{\frac{\text{rem} \cdot \text{m}^3}{\text{Ci} \cdot \text{sec}}} \rangle =$ Inhalationsdosisfaktor

Tabelle 2.1 Spaltausbeute, Halbwertszeit und Zerfallsenergie verschiedener Jodisotope
 $\overline{[11]}$, $\overline{[12]}$

Jodisotop	kumulative Spaltausbeute y $\overline{[\%]}$			Halbwertszeit	Zerfallsenergie $\overline{[MeV]}$		
	^{233}U therm.	^{235}U therm.	^{239}Pu Spaltspektrum		E_{eff}^{β}	E_{eff}^{γ}	E_{eff}
^{129}J	1.94	1.0	1.17	$1.6 \cdot 10^7$ a	0.054	0.004	0.058
^{131}J	3.46	2.93	4.06	8.05 d	0.225	0.371	0.596
^{133}J	5.96	6.5	6.91	21 h	0.515	0.588	1.103
^{135}J	6.0	6.4	7.54	6.7 h	0.383	1.775	2.158

$$g_G \left[\frac{\text{rem} \cdot \text{m}^3}{\text{Ci} \cdot \text{sec}} \right] = \text{Ingestionsdosisfaktor}$$

Die in (1) eingehenden Dosisfaktoren sind in Tabelle 2.2 zusammengestellt. Dazu wurden die in einer Tabelle von Comper [12] angegebenen Inhalationsdosisfaktoren für Erwachsene auf die Werte für die kritischste Bevölkerungsgruppe, die Kleinkinder bis zu einem halben Jahr [13], umgerechnet. Mit den von Bayer [4], [14] angegebenen Formeln für die Dosisfaktoren und dem Milch-Luft-Konversionsfaktor wurden die über das Jahr gemittelten Ingestionsdosisfaktoren für Neugeborene errechnet. Zur Abschätzung der biologischen Belastung durch die drei Isotope ^{131}J , ^{133}J und ^{135}J läßt sich eine "Gefährdungsausflußrate" \dot{G} [rem·m³/sec²] definieren.

$$\dot{G} = (g_G + g_H) \cdot \dot{A} \quad (2)$$

\dot{A} [Ci/sec] ist die Aktivitätsabgaberate mit der Abluft. In Tabelle 2.3 sind für die Isotope ^{133}J und ^{135}J die auf ^{131}J bezogenen Verhältnisse der Gefährdungsausflußraten angegeben. Die dazu verwendeten Aktivitätsabgaberraten sind einer IRS-Studie [10] und der "Jahr-2000-Studie" der USAEC [15] entnommen. Wie ersichtlich, sind die Unterschiede^{+) der Ergebnisse zwischen beiden Studien erheblich. Während die Gefährdungsausflußrate der Isotope ^{133}J bzw. ^{135}J nach der IRS-Studie eine bzw. zwei Größenordnungen kleiner ist als die des ^{131}J , ergeben sich nach der USAEC-Studie bis zu 11 (^{133}J) bzw. 32 (^{135}J) Größenordnungen. Trotz dieser erheblichen Unterschiede ist beiden Studien gemeinsam, daß bei der Jodfreisetzung aus Reaktoren ^{131}J den größten Anteil zur radiologischen Belastung liefert. Das Isotop ^{129}J spielt bei der Jodfreisetzung aus Reaktoren eine untergeordnete Rolle, da die ^{129}J -Aktivitätserzeugungsrate um den Faktor 10^9 kleiner ist als die des ^{131}J .}

^{+) Diese beruhen auf der unterschiedlichen Abgassystemen}

Tabelle 2.2

Inhalationsdosisfaktoren g_H und Ingestionsdosisfaktoren g_G
für verschiedene Jodisotope

Jodisotop	$g_H \left[\frac{\text{rem} \cdot \text{m}^3}{\text{Ci} \cdot \text{sec}} \right]$ Erwachsene	$g_H \left[\frac{\text{rem} \cdot \text{m}^3}{\text{Ci} \cdot \text{sec}} \right]$ Kind, 0,5 Jahre	$g_G \left[\frac{\text{rem} \cdot \text{m}^3}{\text{Ci} \cdot \text{sec}} \right]$ Neugeborene
^{129}J	1830	7064	998800
^{131}J	342	1320	71800
^{133}J	92	355	3170
^{135}J	25	97	300

Tabelle 2.3

Auf ^{131}J bezogenes Verhältnis der Gefährdungsausflußraten

Autor Reaktortyp	IRS [10]		USAEC [15]	
	PWR	BWR	PWR	BWR
Verhältnis der Aktivitätsabgaberaten				
$\frac{\dot{A}_{133\text{J}}}{\dot{A}_{131\text{J}}}$	5	7	$1 \cdot 10^{-9}$	$2 \cdot 10^{-2}$
$\frac{\dot{A}_{135\text{J}}}{\dot{A}_{131\text{J}}}$	5	7	$9 \cdot 10^{-30}$	$1 \cdot 10^{-7}$
Verhältnis der Gefährdungsausflußraten				
$\frac{(g_G + g_H)_{133\text{J}} \cdot \dot{A}_{133\text{J}}}{(g_G + g_H)_{131\text{J}} \cdot \dot{A}_{131\text{J}}}$	$2.5 \cdot 10^{-1}$	$3.4 \cdot 10^{-1}$	$5 \cdot 10^{-11}$	$9 \cdot 10^{-4}$
$\frac{(g_G + g_H)_{135\text{J}} \cdot \dot{A}_{135\text{J}}}{(g_G + g_H)_{131\text{J}} \cdot \dot{A}_{131\text{J}}}$	$3 \cdot 10^{-2}$	$4 \cdot 10^{-2}$	$5 \cdot 10^{-32}$	$6 \cdot 10^{-10}$

Vom Entladen des Brennstoffs aus dem Reaktor bis zur Wiederaufarbeitung vergeht eine gewisse Zeitspanne, in der das ^{131}J zum Teil zerfallen ist, so daß das langlebige ^{129}J an Bedeutung gewinnt. Für die Abschätzung der Jodfreisetzung aus Reaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen werden daher im folgenden nur noch die Isotope ^{129}J und ^{131}J behandelt.

Für diese beiden Isotope wurden in Tabelle 2.4 mittels Gleichung (1) die zulässigen jährlichen Aktivitätsabgaberraten errechnet, ausgehend von dem von der Deutschen Atomkommission vorgeschlagenen Grenzwert für die Schilddrüsenbelastung von Kleinkindern von $\dot{D} = 90 \text{ mrem/a}$ [5]. Treten beide Isotope zugleich auf, so muß die Bedingung

$$\dot{D}_{^{129}\text{J}} + \dot{D}_{^{131}\text{J}} = 90 \text{ mrem/a} \quad (3)$$

erfüllt sein. Der in Gleichung (1) eingehende Ausbreitungsfaktor $J = 5 \cdot 10^{-7} \text{ sec/m}^3$ für 100 m Kaminhöhe und einer Windgeschwindigkeit von 1 m/sec wurde einer Darstellung in [16] entnommen. Dieser Wert müßte noch mit dem Quotienten aus Windfrequenz zu mittlerer Windgeschwindigkeit multipliziert werden. Da dieser Quotient bei bestimmten Standorten und Windrichtungen Werte bis über 1 annehmen kann [16], wird mit dem konservativen Ausbreitungsfaktor von $5 \cdot 10^{-7} \text{ sec/cm}^3$ gerechnet.

Für das langlebige Isotop ^{129}J , das in der Umwelt akkumuliert wird, kann man den zulässigen Anteil von radioaktivem Jod am Gesamtjod, die zulässige "spezifische Aktivität", durch folgende Überlegungen definieren. Nach Gleichung (4) [3] errechnet sich die zulässige spezifische Aktivität zu

$$A_{\text{spez,zul}} = \frac{q_{\text{zul}}}{c \cdot m} \quad (4)$$

Tabelle 2.4

Zulässige jährliche Jodabgaberraten

Jodisotop	$\dot{D} \left[\frac{\text{mrem}}{\text{a}} \right]$	$J \left[\frac{\text{sec}}{\text{m}^3} \right]$	$g_H \left[\frac{\text{rem} \cdot \text{m}^3}{\text{Ci} \cdot \text{sec}} \right]$	$g_G \left[\frac{\text{rem} \cdot \text{m}^3}{\text{Ci} \cdot \text{sec}} \right]$	$\dot{A}_{\text{zul}} \left[\frac{\text{Ci}}{\text{a}} \right]$
^{129}J	90	$5 \cdot 10^{-7}$	7064	998800	0.2
^{131}J	90	$5 \cdot 10^{-7}$	1320	71800	2.5

Darin ist

$$A_{\text{spez,zul}} \left[\frac{\text{Ci}}{\text{g}_{\text{stab Jod}}} \right] = \text{zulässige } ^{129}\text{J-Aktivität pro Gramm stabilem Jod}$$

$$q_{\text{zul}} \left[\frac{\text{Ci}}{\text{g}} \right] = \text{zulässige } ^{129}\text{J-Aktivität in der Schilddrüse}$$

$$c \left[\frac{\text{g}_{\text{stab Jod}}}{\text{g}} \right] = \text{Konzentration von stabilem Jod in der Schilddrüse} \\ (\text{ = 350 } \mu\text{g/g Naßgewebe})$$

$$m \left[\frac{\text{g}}{\text{g}} \right] = \text{Masse der Schilddrüse} \\ (\text{ = 1,8 g für Kleinkinder bis zu einem halben Jahr})$$

Die zulässige ^{129}J -Aktivität in der Schilddrüse läßt sich nach dem in [17] angegebenen Verfahren aus der zulässigen Schilddrüsendosisrate \dot{D} mittels Gleichung (5) errechnen.

$$q_{\text{zul}} = 5.4 \cdot 10^{-11} \cdot \frac{m \dot{D}}{\epsilon} \quad (5)$$

$$q_{\text{zul}} \left[\frac{\text{Ci}}{\text{g}} \right] = \text{zulässige } ^{129}\text{J-Aktivität in der Schilddrüse}$$

$$\dot{D} \left[\frac{\text{rem}}{\text{a}} \right] = \text{Schilddrüsendosisrate}$$

$$m \left[\frac{\text{g}}{\text{g}} \right] = \text{Masse der Schilddrüse} \\ (\text{ = 1,8 g für Kleinkinder})$$

$$\epsilon \left[\frac{\text{MeV}}{\text{g}} \right] = \text{effektive pro Zerfall absorbierte Energie} \\ (\text{ = 0.068 MeV für } ^{129}\text{J})$$

$5.4 \cdot 10^{-11} \frac{\text{Ci} \cdot \text{MeV} \cdot \text{a}}{\text{g} \cdot \text{rem}}$ = Umrechnungsfaktor:
stellt den Zusammenhang
zwischen Dosisgrößen
und Zerfallsgrößen her

Mit $\dot{D} = 90 \text{ mrem/a}$ ergibt sich $q_{\text{zul}} = 1.3 \cdot 10^{-10} \text{ Ci}$.

Daraus erhält man für die zulässige spezifische Aktivität

$A_{\text{spez,zul}} = 0.21 \mu\text{Ci } ^{129}\text{J/g}$ stabilem Jod.

3. Natürliches Vorkommen von radioaktivem ^{129}J

Das bei der Bildung der Elemente (Nuklearsynthese) vor etwa $6 \cdot 10^9$ Jahren $\langle \bar{18} \rangle$ entstandene ^{129}J ($T_{1/2} = 1.6 \cdot 10^7$ a) ist durch Zerfall fast ganz verschwunden. Infolge der ^{129}J -Produktion durch Spontanspaltung schwerer Kerne und durch Reaktion der kosmischen Strahlung mit den in der Atmosphäre vorhandenen Xenonisotopen hat sich jedoch ein säkulares Gleichgewicht der ^{129}J -Aktivität auf der Erde eingestellt $\langle \bar{19} \rangle$.

Das ^{238}U ($T_{1/2\text{Spont.Sp.}} = 8.04 \cdot 10^{15}$ a $\langle \bar{20} \rangle$) liefert bei der Spontanspaltung den Hauptanteil zur ^{129}J -Produktion. Bei einer ^{129}J -Spaltausbeute in gleicher Größenordnung wie beim ^{238}U ist die durch die Spontanspaltung des ^{235}U ($T_{1/2\text{Spont.Sp.}} = 1.8 \cdot 10^{17}$ a $\langle \bar{20} \rangle$) produzierte ^{129}J -Menge wegen der um den Faktor 20 größeren Halbwertszeit gegen Spontanspaltung und dem geringeren Anteil von nur 0.7% am natürlichen Uran gegenüber der ^{238}U -Spaltung vernachlässigbar. Auch die neutroneninduzierte ^{235}U -Spaltung trägt insgesamt kaum zur ^{129}J -Produktion bei $\langle \bar{21} \rangle$, $\langle \bar{22} \rangle$. Bei der Spontanspaltung des ^{232}Th wird nach Wetherill $\langle \bar{23} \rangle$ kein ^{129}J gebildet. Die Spaltausbeute y für die Massenzahl 129 gibt er bei der Spontanspaltung von ^{238}U zu $y \ll 0.012\%$ an. Young und Thode $\langle \bar{24} \rangle$ fanden ein y von $\ll 0.0095\%$.

Rechnet man mit $y = 0.01\%$, so folgt die ^{129}J -Gleichgewichtsaktivität bei der Spontanspaltung von 1 g ^{238}U zu $A_{129\text{J}} = 1.87 \cdot 10^{-17}$ Ci oder mit einem Anteil des ^{238}U am natürlichen Uran von 99.3% zu $A_{129\text{J}} = 1.85 \cdot 10^{-17}$ Ci/g U_{nat} . Daraus und aus dem Urangehalt der Erdkruste von 4 ppm $\langle \bar{25} \rangle$ läßt sich das ^{129}J -Aktivitätsinventar der Erdkruste errechnen. Mit der mittleren Dichte der Erdkruste von 2.9 g/cm^3 $\langle \bar{26} \rangle$ und dem Erdradius von 6370 km ergibt sich die Masse der etwa 60 km dicken Erdkruste zu $9 \cdot 10^{25}$ g. Die Masse des Urans beträgt daher $3.6 \cdot 10^{20}$ g, woraus ein ^{129}J -Aktivitätsinventar von $3.6 \cdot 10^{20}$ g $\cdot 1.85 \cdot 10^{-17}$ Ci $^{129}\text{J/g U}_{\text{nat}} = 6.7 \cdot 10^3$ Ci folgt. Dieses ^{129}J ist allerdings zum größten Teil eingeschlossen und nimmt nicht am Jodkreislauf teil.

Zum ^{129}J -Aktivitätsinventar, das am Kreislauf des Jods in der Atmosphäre, Biosphäre und Hydrosphäre teilnimmt, tragen die folgenden fünf Prozesse bei [19]:

1. Die Spontanspaltung des im Meerwasser vorhandenen Urans,
2. die Verwitterung uranhaltiger Gesteine,
3. die Vulkanaktivität,
4. die Einbringung mit kosmischem Staub,
5. die Produktion durch kosmische Strahlung.

Im Meer sind $1.37 \cdot 10^{24} \text{ cm}^3$ Wasser enthalten [27]. Der Uran-gehalt beträgt $3 \cdot 10^{-9} \text{ g/cm}^3$ [19]. Daraus folgt das ^{129}J -Aktivitätsinventar durch den Prozeß "1" zu $A_1 = 0.08 \text{ Ci}$. Für die Prozesse "2" bis "5" geben Kohman und Edwards [19] die in Tabelle 3.1 zusammengestellten Werte für die Anzahl der im Gleichgewicht vorhandenen ^{128}J -Atome an. Mit der Zerfallskonstanten des ^{129}J von $1.37 \cdot 10^{-15} \text{ sec}^{-1}$ ergeben sich die ebenfalls in Tabelle 3.1 angegebenen ^{129}J -Gleichgewichtsaktivitäten. Man erkennt, daß sich durch die Reaktionen von hochenergetischen Neutronen, Protonen und γ -Strahlen mit den in der Atmosphäre vorhandenen Isotopen ^{129}Xe , ^{130}Xe , ^{131}Xe und ^{132}Xe [21] der Hauptanteil der Gleichgewichtsaktivität ergibt. Die Prozesse "1" bis "4" liefern zusammen nur knapp die Hälfte der durch den Prozeß "5" gebildeten ^{129}J -Aktivität.

Tabelle 3.1 ^{129}J -Inventar in der Atmosphäre, Biosphäre und Hydrosphäre

zum Inventar beitragender Prozeß	Zahl der im Gleichgewicht vorhandenen ^{129}J -Atome	^{129}J -Aktivi- tätsinventar $\frac{\text{Ci}}{\text{t}}$
Spontanspaltung	$0.021 \cdot 10^{26}$	0.08
Verwitterung	$0.36 \cdot 10^{26}$	1.3
Vulkanaktivität	$2.3 \cdot 10^{26}$	8.5
Kosm. Staub	$0.089 \cdot 10^{26}$	0.33
Kosm. Strahlung	$5.8 \cdot 10^{26}$	21.4
Gesamt	$8.57 \cdot 10^{26}$	31.61

4. Joderzeugung und -freisetzung durch Kernreaktoren

Die während des Reaktorbetriebs erzeugte Jodaktivität wird in Abschnitt 4.1 für verschiedene Leistungsreaktortypen errechnet. Im Abschnitt 4.2 wird mit Hilfe der bisher beim normalen Reaktorbetrieb gesammelten Erfahrungswerte von Freisetzungsraten die jährliche Jodabgaberate von verschiedenen Reaktortypen an die Umgebung abgeschätzt.

4.1 Joderzeugung in Kernreaktoren

Die Erzeugung von Jodisotopen im Brennstoff wird durch die Spaltausbeute y beschrieben. In Tabelle 2.1 war diese für die verschiedenen Jodisotope und Spaltstoffe angegeben. Da einer thermischen Leistung von 1 MW $3.1 \cdot 10^{16}$ Spaltungen pro Sekunde entsprechen $[28]$, folgt daraus die Zahl der erzeugten Jodkerne zu

$$\dot{C} = 3.1 \cdot 10^{16} \cdot y \quad (6)$$

$$\dot{C} \left[\frac{1}{\text{MW}_{\text{th}} \cdot \text{sec}} \right] = \text{Zahl der pro Sekunde und Megawatt erzeugten Jodkerne}$$

$$y = \text{kumulative Spaltausbeute}^*)$$

Damit ergibt sich für die Aktivitätserzeugungsrate die Beziehung

$$\dot{A} = \frac{\dot{C} \cdot \lambda}{3.7 \cdot 10^{10}} = \frac{3.1 \cdot 10^{16}}{3.7 \cdot 10^{10}} \cdot y \cdot \lambda = 8.4 \cdot 10^5 \cdot y \cdot \lambda \quad (7)$$

$$\dot{A} \left[\frac{\text{Ci}}{\text{MW}_{\text{th}} \cdot \text{sec}} \right] = \text{pro Sekunde und Megawatt erzeugte Aktivität}$$

$$\lambda \left[\text{sec}^{-1} \right] = \text{Zerfallskonstante des Nuklids}$$

*) y wird im folgenden in absoluten Werten angenommen.

$$3.7 \cdot 10^{10} \frac{1}{\text{Ci} \cdot \text{sec}} = \text{Anzahl der Zerfälle pro Curie und Sekunde}$$

Wird das nach der Betriebszeit t vorhandene Inventar an Jodkernen mit $C(t)$ bezeichnet, so wird das Aktivitätsinventar $A(t)$ im Reaktor durch

$$A(t) = C(t) \cdot \lambda \quad (8)$$

beschrieben.

$$A(t) \left[\frac{\text{Ci}}{\text{MW}_{\text{th}}} \right] = \text{Aktivitätsinventar zum Zeitpunkt } t$$

$$C(t) \left[\frac{1}{\text{MW}_{\text{th}}} \right] = \text{Zahl der zum Zeitpunkt } t \text{ im Reaktor vorhandenen Jodkerne}$$

Die Isotope ^{131}J , ^{133}J und ^{135}J befinden sich schon nach relativ kurzer Zeit im Gleichgewicht. Es gilt dann

$$C(t) = C_{\infty} = \frac{\dot{C}}{\lambda} \quad (9)$$

so daß für das Gleichgewichtsinventar $A_{\infty} \left[\frac{\text{Ci}}{\text{MW}_{\text{th}}} \right]$ folgt:

$$A_{\infty} = \frac{C_{\infty}}{3.7 \cdot 10^{10}} \cdot \lambda = \frac{\dot{C}}{3.7 \cdot 10^{10} \cdot \lambda} \cdot \lambda = 8.4 \cdot 10^5 \cdot \gamma \quad (10)$$

Beim Isotop ^{129}J , mit seiner sehr großen Halbwertszeit, ist die Zahl der im Reaktor erzeugten Kerne in guter Näherung linear von der Betriebszeit $t \left[\frac{\text{sec}}{\text{MW}_{\text{th}}} \right]$ abhängig. Es gilt:

$$C(t) = \dot{C} \cdot t \quad (11)$$

woraus für das Aktivitätsinventar $A(t) \left[\frac{\text{Ci}}{\text{MW}_{\text{th}}} \right]$ zum Zeitpunkt t folgt

$$A(t) = \frac{\dot{C} \cdot t \cdot \lambda}{3.7 \cdot 10^{10}} = 8.4 \cdot 10^5 \cdot y \cdot \lambda \cdot t \quad (12)$$

Die Jodaktivität pro Tonne Brennstoff $A_{\text{spez}} \left[\frac{\text{Ci}}{\text{t}} \right]$ errechnet sich für die im Gleichgewicht vorliegenden Isotope aus dem Aktivitätsinventar $A_{\infty} \left[\frac{\text{Ci}}{\text{MW}_{\text{th}}} \right]$ und der Brennstoffbelastung $L \left[\frac{\text{MW}_{\text{th}}}{\text{t}} \right]$ zu

$$A_{\text{spez}} = A_{\infty} \cdot L \quad (13)$$

Für das langlebige Isotop ^{129}J ist der Abbrand $a \left[\frac{\text{MW} \cdot \text{d}}{\text{t}} \right]$ zur Errechnung der spezifischen Aktivität $A_{\text{spez}} \left[\frac{\text{Ci}}{\text{t}} \right]$ maßgebend. Es gilt mit der Aktivitätserzeugungsrate $\dot{A} \left[\frac{\text{Ci}}{\text{MW}_{\text{th}} \cdot \text{sec}} \right]$

$$A_{\text{spez}} = \dot{A} \cdot a \quad (14)$$

Mit diesen Beziehungen wird das Jodaktivitätsinventar im Brennstoff der Kernreaktoren errechnet und in den Tabellen 4.1 bis 4.4 zusammengestellt. Tabelle 4.1 gibt die Aktivitätserzeugungsrate und das Aktivitätsinventar für die verschiedenen Jodisotope und Spaltstoffe an. Es fällt auf, daß das ^{129}J -Aktivitätsinventar etwa um den Faktor 10^8 geringer ist als das der anderen Jodisotope. In Tabelle 4.2 ist für verschiedene zur Zeit im Bau befindliche Reaktoren mit den von Heinzel $\left[\frac{29}{7} \right]$ zusammengestellten Auslegungsdaten das Aktivitätsinventar des ganzen Cores und der einzelnen Brennstäbe sowie die spezifische Jodaktivität errechnet. Für den THTR wird mit dem Spaltstoff ^{235}U gerechnet. In Tabelle 4.3 findet man das Aktivitätsinventar nach einem Jahr Betriebszeit für verschiedene Reaktortypen mit einer Leistung von 1000 MWe. Es wurden die in der Tabelle angegebenen Nettowirkungsgrade und ein Lastfaktor von 0.8 angenommen. Die spezifische Jodaktivität nach einem mittleren Entladeabbrand ist für verschiedene 1000 MWe-Reaktortypen mit den angegebenen Brennstoffbelastungs- und Abbrandwerten in Tabelle 4.4 errechnet. Es wird dabei deutlich, daß die

Tabelle 4.1 Jodaktivitätserzeugungsrate \dot{A} und Jodaktivitätsinventar A im Reaktor nach 1 Jahr Betriebszeit

Spaltstoff Neutronen- energie	^{233}U thermisch	^{235}U thermisch	^{239}Pu Spaltspektrum
$\dot{A} [\bar{\text{Ci}}/\text{MW}_{\text{th}} \cdot \text{sec}^{-1}]$			
^{129}J	$21 \cdot 10^{-12}$	$11 \cdot 10^{-12}$	$13 \cdot 10^{-12}$
^{131}J	$29 \cdot 10^{-3}$	$25 \cdot 10^{-3}$	$34 \cdot 10^{-3}$
^{133}J	$460 \cdot 10^{-3}$	$500 \cdot 10^{-3}$	$530 \cdot 10^{-3}$
^{135}J	$1500 \cdot 10^{-3}$	$1500 \cdot 10^{-3}$	$1800 \cdot 10^{-3}$
$A [\bar{\text{Ci}}/\text{MW}_{\text{th}}^{-1}]$			
^{129}J	$663 \cdot 10^{-6}$	$342 \cdot 10^{-6}$	$400 \cdot 10^{-6}$
^{131}J	$29 \cdot 10^3$	$25 \cdot 10^3$	$34 \cdot 10^3$
^{133}J	$51 \cdot 10^3$	$55 \cdot 10^3$	$58 \cdot 10^3$
^{135}J	$50 \cdot 10^3$	$54 \cdot 10^3$	$63 \cdot 10^3$

Tabelle 4.2 Jodaktivität im Brennstoff verschiedener Reaktoren nach einem Jahr Betriebszeit. Lastfaktor 0.8.

Kernkraftwerk	Biblis	Philippsburg	Atucha	SNR-300	THTR-300
Reaktortyp	PWR	BWR	PHWR	LMFBR	THTGR
Leistung $[\overline{MW}_{th}]$	3462	2575	1100	730	750
Nettoleistung $[\overline{MWe}]$	1146	864	320	295	308
Brennstoffladung $[\overline{t}]$	112.5	131	43.8	5.5	7.69 *
Zahl der Brennstäbe	45548	29008	9361	25519	675000 **
Aktivitätsinventar ^{129}J im Core $[\overline{Ci}]$ ^{131}J	0.95 $87 \cdot 10^6$	0.71 $64 \cdot 10^6$	0.30 $28 \cdot 10^6$	0.23 $25 \cdot 10^6$	0.21 $19 \cdot 10^6$
Aktivität pro kg ^{129}J Brennstoff $[\overline{Ci/kg}]$ ^{131}J	$8 \cdot 10^{-6}$ 769	$5 \cdot 10^{-6}$ 491	$7 \cdot 10^{-6}$ 628	$42 \cdot 10^{-6}$ 4513	$28 \cdot 10^{-6}$ *** 2640 ***
Aktivität pro ^{129}J Brennstab $[\overline{Ci/Stab}]$ ^{131}J	$21 \cdot 10^{-6}$ $1.9 \cdot 10^3$	$24 \cdot 10^{-6}$ $2.2 \cdot 10^3$	$32 \cdot 10^{-6}$ $2.9 \cdot 10^3$	$9 \cdot 10^{-6}$ $0.97 \cdot 10^3$	$0.3 \cdot 10^{-6}$ **** 28 ****

- * t U-Th
- ** Zahl der Kugeln
- *** Ci/kg U-Th
- **** Ci/Kugel

Tabelle 4.3 Jodaktivitätsinventar in 1000 MWe Reaktoren
nach 1 Jahr Betriebszeit
Lastfaktor 0.8

Reaktortyp	Spaltstoff	Wirkungsgrad	LWR	LMFBR	THTGR	
			^{235}U	^{239}Pu	^{233}U	^{235}U
			34%	40%	40%	40%
Aktivitäts-	^{129}J		0.81	0.80	1.33	0.69
inventar						
$\overline{\text{Ci/a 1000 MWe}}$	^{131}J		$74 \cdot 10^6$	$85 \cdot 10^6$	$73 \cdot 10^6$	$63 \cdot 10^6$

Tabelle 4.4 Jodaktivität im Brennstoff von 1000 MWe Reaktoren nach mittlerem Endabbrand

Reaktortyp	LWR	LMFBR	THTGR	
			^{233}U	^{235}U
Spaltstoff	^{235}U	^{239}Pu	^{233}U	^{235}U
mittlere Brennstoffbelastung $\overline{\langle \text{kW/kg}_{\text{Oxid}} \rangle}$	30	150	1.5*	1.5*
mittlerer Endabbrand $\overline{\langle \text{MWd/t} \rangle}$	30000	80000	120000**	120000**
Aktivitätserzeugungsrate $\overline{\langle \text{Ci/sec 1000 MWe} \rangle}$	^{129}J ^{131}J	$32 \cdot 10^{-9}$ 74	$33 \cdot 10^{-9}$ 85	$53 \cdot 10^{-9}$ 73
Aktivitätsinventar pro kg Oxid $\overline{\langle \text{Ci/kg}_{\text{Oxid}} \rangle}$	^{129}J ^{131}J	$28 \cdot 10^{-6}$ 750	$88 \cdot 10^{-6}$ 5100	$2.3 \cdot 10^{-6} \text{***}$ 44***
				$1.2 \cdot 10^{-6} \text{***}$ 38***

* kW/Kugel
 ** MWd/t Schwermetall
 *** Ci/Kugel

spezifische ^{131}J -Aktivität im schnellen Brutreaktor mit seiner hohen Brennstoffbelastung um etwa den Faktor 7 größer ist als im Leichtwasserreaktor.

4.2 Jodfreisetzung durch Kernreaktoren

Wie aus Abschnitt 4.1 hervorgeht, ist das ^{129}J -Aktivitätsinventar im Reaktor nach einem Jahr Betriebszeit acht Größenordnungen kleiner als das des ^{131}J . Dies bedeutet, daß einer ^{131}J -Abgaberate in die Umgebung von 1 Ci/a eine ^{129}J -Abgaberate von etwa 10 nCi/a entspricht, vorausgesetzt, daß der Abgabevorgang nicht wesentlich länger dauert als eine Halbwertszeit des ^{131}J . Bei der Abgabe von Jodisotopen durch Kernkraftwerke ist deshalb die ^{129}J -Abgabe von untergeordneter Bedeutung.

Im folgenden werden die Erfahrungswerte der Abgaberraten von ^{131}J , dem hier wichtigsten Isotop, für bisher im Betrieb befindliche Reaktoren verschiedener Bauart zusammengestellt. Für Anlagen, von denen keine Meßdaten vorliegen, werden, soweit Abschätzungen vorhanden sind, diese angegeben.

4.2.1 Leichtwasserreaktoren

Jodaktivität im Primärkühlmittel

Von dem im Brennstoffgitter (meist UO_2) vorhandenen Jod aus der Kernspaltung wird während des Reaktorbetriebs durch Diffusion des Jods durch das Gitter in den Spalt zwischen Brennstoff und Hülle und anschließende Leckage durch Haarrisse der Brennstabhülle kontinuierlich ein geringer Anteil in das Primärkühlwasser freigesetzt. Die Jodaktivität im Primärwasser steigt im Verlauf eines Brennelementzyklus über den Anfahrbereich hinaus weiter an. Dies hat verschiedene Gründe [307]:

1. Die Zahl der Hüllendefekte nimmt zu;
2. die Freisetzung aus dem Brennstoffgitter verstärkt sich durch
 - 2.1 die Zerstörung der Kristallstruktur des Urndioxids durch die Kernspaltung; die Speicherqualität der Kristalle verringert sich dadurch;
 - 2.2 die Änderung der Leistung und Leistungsverteilung im Reaktorkern während des Betriebs, die aufgrund von Temperaturspannungen zu Rissen im UO_2 -Gitter führt;
 - 2.3 einen Sauerstoffgehalt, der von dem stöchiometrischen Verhältnis von $\text{U}:\text{O} = 1:2$ abweicht.

Aus der gemessenen Primärwasseraktivität läßt sich mit der Gleichgewichtsbeziehung (15) die Aktivitätsfreisetzungsrates von Spaltprodukten aus den Brennelementen in das Primärwasser berechnen.

$$\dot{A}_F = A_W \cdot m \cdot (\lambda + \frac{\dot{Q}}{m}) \quad (15)$$

\dot{A}_F [$\bar{\text{Ci}}/\text{sec}$] = Freisetzungsrates ins Primärwasser

A_W [$\bar{\text{Ci}}/\bar{t}$] = Primärwasseraktivität

m [\bar{t}] = Kühlmittelmasse

λ [$\bar{\text{sec}}^{-1}$] = Zerfallskonstante des Nuklids

\dot{Q} [\bar{t}/sec] = Durchsatz durch Primärwasserreinigung

Die so errechneten ^{131}J -Aktivitätsfreisetzungsrates \dot{A}_F und das Verhältnis von Freisetzungsrates \dot{A}_F zu Erzeugungsrates \dot{A}

(A aus Gleichung (7), multipliziert mit der Reaktorleistung, errechnet) sind in Tabelle 4.5 für verschiedene Leichtwasserreaktoren angegeben. Der Berechnung liegen für das Kraftwerk KRB Gundremmingen (BWR, 250 MWe) der Wert der Primärwasseraktivität vom Ende des dritten Betriebszyklus (Juni 1971) $\overline{307}$, für Dresden I (BWR, 210 MWe) die Zahlen des Berichts von Kahn $\overline{87}$ und für KWO Obrigheim (PWR, 320 MWe) die Aktivität während des zweiten Betriebszyklus (1971) $\overline{317}$ zugrunde. Beim Beginn des dritten Zyklus wurde eine noch niedrigere Primärwasseraktivität des ^{131}J von $5 \cdot 10^{-4}$ Ci/t gemessen. Dieser Wert erreicht nahezu den Stand nach der Inbetriebnahme 1969 $\overline{317}$. Auch beim KRB zeigte sich über mehrere Brennelementzyklen ein insgesamt abnehmender Verlauf der Jodaktivität im Primärwasser von $5 \cdot 10^{-2}$ Ci/t am Ende des ersten Zyklus, zu $3 \cdot 10^{-2}$ Ci/t am Ende des dritten Zyklus $\overline{307}$. Dies ist auf verbesserte Fertigungskontrollen und weitere Verbesserungen der Brennelemente zurückzuführen $\overline{327}$. Die angegebenen Primärwasseraktivitäten lassen nicht auf einen prinzipiellen Unterschied zwischen Druck- und Siedewasserreaktoren schließen. Die Aktivität hängt wesentlich von der Dichtheit der Brennstäbe und dem Durchsatz durch die Reinigungsanlage ab. Aus der Tabelle 4.5 ist ersichtlich, daß die Jodfreisetzungsrates ins Primärkühlmittel um etwa 5 bis 8 Größenordnungen geringer ist als die Jodaktivitätserzeugungsrate im Brennstoff.

Jodabgabe mit dem Abwasser

Das Reaktorwasser wird ebenso wie die beim Brennelementwechsel und beim Aufheizen der Anlage anfallenden Abwässer laufend im Bypass gereinigt. Dabei werden die radioaktiven Jodisotope weitgehend aus dem Wasser entfernt. Die Abwässer aus Systemleckagen, Labors und Dekontamination werden in Sammelbehälter geleitet und durch Filter, Ionenaustauscher oder Verdampfer gereinigt. Das überschüssige nicht mehr in den Kreislauf eingespeiste aufbereitete Wasser wird mit dem Kondensatorkühlwasser vermischt in den Fluß abgeleitet.

Tabelle 4.5

^{131}J -Aktivitätsfreisetzungsrates \dot{A}_F in das Primärkühlmittel von Leichtwasserreaktoren

Reaktor	$A_W / \overline{Ci/t}$	m / \overline{t}	$\dot{Q} / \overline{t/h}$	$\dot{A}_F / \overline{Ci/sec}$	$\dot{A} / \overline{Ci/sec}$	$\frac{\dot{A}_F}{\dot{A}}$
Gundremmingen (BWR, 250 MWe)	0.03	120	32.5	$274 \cdot 10^{-6}$	18.5	$1.5 \cdot 10^{-5}$
Dresden I (BWR, 210 MWe)	0.002	190	13.6	$8.7 \cdot 10^{-6}$	15.5	$5.6 \cdot 10^{-7}$
Obrigheim (PWR 320 MWe)	0.01	129	12	$0.3 \cdot 10^{-6}$	23.5	$1.4 \cdot 10^{-8}$

$A_W / \overline{Ci/t}$ = Primärwasseraktivität

$\dot{A}_F / \overline{Ci/sec}$ = Freisetzungsrates ins Primärkühlmittel

$\dot{A} / \overline{Ci/sec}$ = Erzeugungsrates im Brennstoff

In Tabelle 4.6 sind Erfahrungswerte der jährlichen ^{131}J -Aktivitätsabgaberaten mit dem Abwasser verschiedener Kernkraftwerke angegeben. Für die meisten Anlagen liegen Zahlen über die Aktivitätsabgaberaten mit dem Abwasser nur für ein Isotopengemisch außer Tritium und für Tritium selbst vor. In [33] sind für das KRB (BWR, 250 MWe) ^{131}J -Abgaberaten angegeben. Von den amerikanischen Anlagen werden für das Jahr 1970 nur Humboldt Bay (BWR, 70 MWe) und Connecticut Yankee (PWR, 600 MWe) genannt, für die Aussagen über die ^{131}J -Abgaberrate gemacht wurden [34]. Für Dresden I (BWR, 210 MWe) wurde die jährliche ^{131}J -Abgaberrate aus dem Wert der Jodkonzentration des Kühlkanalwassers vom 20. August 1968 errechnet [7], [8]. Ebenfalls errechnet wurde der Wert für den Yankee Reaktor (PWR, 600 MWe) aus der Aktivität periodisch gesammelter Proben zwischen Oktober 1968 und Februar 1971 [35]. Ein repräsentativer Wert für die ^{131}J -Abgaberrate mit dem Abwasser folgt aus Tabelle 4.6 nicht. Die Angaben reichen von 0.003 Ci/a bis zu 0.7 Ci/a. Die Abgaberrate hängt sehr von der Güte der Wasserreinigungsanlage und der Art des Verfahrens zur Dekontamination von radioaktivem Abwasser ab. Es ist heute möglich, bei entsprechend größerem technischen Aufwand die Abgabe von Aktivitäten "weitgehend" zu vermindern [36].

Jodabgabe mit der Abluft

Beim Druckwasserreaktor wird das Primärkühlmittel zwischen Reaktor und Dampferzeuger in geschlossenem Kreislauf umgewälzt. Über Entgaser werden die gasförmigen Bestandteile daraus entfernt und in die Abgasanlage gesaugt. In ihr werden die abgesaugten Gase über einen Trägerstrom aus Stickstoff umgewälzt und über Aktivkohleanlagen gereinigt. Bei Normalbetrieb ist eine Gasabgabe aus der Abgasanlage in den Kamin nicht erforderlich, da die Volumina der gasförmigen Spalt- und Aktivierungsprodukte vernachlässigbar im Vergleich zum Volumen der Abgasanlage sind; es besteht

Tabelle 4.6 ^{131}J -Aktivitätsabgaberraten mit dem Abwasser verschiedener Leichtwasserreaktoren

Reaktor	^{131}J -Abgaberrate $[\bar{\text{Ci}}/\bar{\text{a}}]$			
	1967	1968	1969	1970
BWR				
Gundremmingen (250 MWe)	0.7 (0.62) *	0.5 (0.61)	0.7 (0.74)	
Dresden I (210 MWe)		0.026 (0.53)		
Humboldt Bay (70 MWe)				0.09 (0.71)
PWR				
Yankee (185 MWe)			0.003 (0.74)	0.003 (0.77)
Connecticut Yankee (600 MWe)				0.25 (0.7)

* in Klammern jeweils die Lastfaktoren

aber die Möglichkeit, diejenigen Gase, die die Aktivkohleanlage mindestens einmal durchlaufen haben, über den Kamin mit der Abluft abzugeben [10].

Beim Siedewasserreaktor wird im Kern Dampf erzeugt, der über die Turbinen dem Kondensator zugeführt wird. Von der Abgasanlage werden die Einbruchluft und die nicht kondensierten Bestandteile am Kondensator abgezogen und gereinigt.

Nur 0.1% des ins Kühlwasser freigesetzten Jods ist im Wasserdampf enthalten [37]. Nach Durchlaufen der Abgasanlage ist das Gas bis auf einen Anteil von 10^{-5} bis 10^{-8} von Jod gesäubert [37].

Bei beiden Reaktortypen wird durch Leckagen aus dem Primärkreis Aktivität in die Luft der Anlagenräume freigesetzt, die dann mit der Abluft an die Umgebung abgegeben wird.

In Tabelle 4.7 sind die jährlichen ^{131}J -Abgaberaten mit der Abluft verschiedener Leichtwasserreaktoren zusammengestellt. Die in den Jahren 1969 und 1970 relativ hohen Abgaberaten des KRB (BWR, 250 MWe) wurden verursacht durch außerordentliche Leckagen im Primärsystem, die während des Betriebs nicht behoben werden konnten, verbunden mit gleichzeitig aufgetretenen Brennelementschäden [38]. Die Abgaberate von KWO (PWR, 320 MWe) setzt sich 1970 aus 0.028 Ci während des normalen Reaktorbetriebs und 0.017 Ci während des Brennelementwechsels und Instandhaltungsarbeiten zusammen [39].

Für den Dresden I Reaktor (BWR, 210 MWe) wurde die jährliche Abgaberate aus den Aktivitätsmessungen Kahn's ermittelt [7], [8]. Die Abgaberate des Yankee Reaktors (PWR, 600 MWe) wurde aus periodischen Messungen von Kahn [35] gewonnen. Aus den zum Teil recht unterschiedlichen Werten der Tabelle 4.7 lassen sich schwerlich gute Mittelwerte ableiten. Sie können als erste, obere Grenzwerte beschreibende Erfahrungswerte angesehen werden, da auf Grund der technischen Entwicklung (bessere Brennstäbe, bessere Abluftfilter) die Abgaberaten zukünftiger Reaktoren unter den schlechtesten bisherigen Abgabe-

Tabelle 4.7 Jährliche ^{131}J -Abgaberraten mit der Abluft verschiedener Leichtwasser-
reaktoren

Reaktor	^{131}J -Abgaberrate $[\bar{\text{Ci/a}}]$				
	1967	1968	1969	1970	1971
BWR					
Gundremmingen $[\bar{38}]$ (250 MWe)	0.033 (0.62)*	0.037 (0.61)	0.364 (0.74)	0.197 (0.84)	0.341 (0.91)
Dresden I $[\bar{8}]$ (210 MWe)		0.026 (0.53)			
PWR					
Obrigheim $[\bar{40}]$ (320 MWe)			0.063 (0.74)	0.045 (0.84)	0.015 (0.77)
Yankee $[\bar{35}]$ (185 MWe)			<0.0005 (0.74)	<0.0005 (0.77)	

*in Klammern jeweils die Lastfaktoren

raten liegen werden. Unter nicht zu konservativen Annahmen wären dies für den Siedewasserreaktor ca. 0.3 Ci/a und für den Druckwasserreaktor ca. 0.06 Ci/a.

Um den Schluß auf größere Leistungseinheiten zu ermöglichen, sei folgende Überlegung durchgeführt. Gleiche Qualität der Brennstabhüllen vorausgesetzt, ist die gesamte Jodfreisetzungsrate ins Kühlmittel nur noch von der Brennstofftemperatur und der Anzahl der Stäbe abhängig. Da große Leistungseinheiten thermodynamisch wie kleine Leistungseinheiten ausgelegt sind, ist die Jodfreisetzung der Anzahl der Brennstäbe und somit der Leistung direkt proportional. Da andererseits die Kühlmittelmenge und der Durchsatz durch die Kühlmittelreinigungsanlage der Reaktorleistung ebenfalls proportional sind, ergibt sich eine von der Reaktorleistung unabhängige spezifische Kühlmittelaktivität.

Da man beim Jod davon ausgehen kann, daß es in der Abgasanlage quantitativ absorbiert wird [10], rührt die Jod-Abgaberate ausschließlich von Leckagen her. Da die spezifische Kühlmittelaktivität, wie oben ausgeführt, unabhängig von der Reaktorleistung ist und die Größe und Anzahl der Leckstellen in keinem direkten Zusammenhang mit der Reaktorleistung stehen, ergibt sich eine in etwa leistungsunabhängige Jodabgabe durch Kernkraftwerke.

Schmitz und Sütterlin [10] kommen ebenfalls zu dem Schluß, daß kein Siedewasserkernkraftwerk mehr als 0.3 Ci/a und kein Druckwasserkernkraftwerk mehr als 0.06 Ci/a ¹³¹J unabhängig von der Reaktorleistung abzugeben braucht. In diesen Werten sind neben den Abgaberraten bei Normalbetrieb auch diejenigen Abgaben enthalten, die bei Reparaturen, Brennelementwechsel und Instandhaltungsarbeiten auftreten.

Für neuere Druckwasserreaktoren zwischen 600 und 1300 MWe prognostizieren Braun und Traube [39] eine Abgaberrate von

weniger als 0.03 Ci/a. Hermann [41] gibt für die Siedewasserreaktoren Würgassen KKW (612 MWe) und Brunsbüttel KKB (770 MWe) die den Sicherheitsberichten entnommenen ^{131}J -Abgaberaten für den Betrieb mit defekten Brennstäben zu 0.2 Ci/a (KKW) und 0.28 Ci/a (KKB) an. Diese Zukunftswerte müssen vor allem durch langjährige Beobachtung untermauert werden.

4.2.2 Schwerwasserreaktoren

Mit Ausnahme des erhöhten Tritiumgehalts durch Neutroneneinfang sind die Schwerwasserreaktoren in bezug auf die Freisetzung von radioaktiven Stoffen den Druckleichtwasserreaktoren ähnlich. Durch defekte Brennstabhüllen gelangen Spaltprodukte ins Kühlmittel. Da der Brennelementwechsel der Schwerwasserreaktoren unter Last stattfindet, ist es im Prinzip möglich, defekte Elemente auszubauen, falls man diese orten kann, und so die Kühlmittelaktivität niedrig zu halten [42]. Von besonderer Bedeutung für die Schwerwasserreaktoren ist die Forderung, die Schwerwasserverluste aus Wirtschaftlichkeitsgründen auf ein Minimum zu reduzieren.

Jodabgabe mit dem Abwasser

Die radioaktiven Abwässer, die zum Beispiel aus Lecks im Primärsystem oder aus dem Brennelementlagerbecken herrühren können, werden in Abklingbehältern gesammelt, in denen die Isotope mit Halbwertszeiten kleiner als zehn Tage weitgehend zerfallen $\langle 42 \rangle$. Die Abwässer werden dann, mit dem Kondensatorkühlwasser vermischt, kontrolliert abgegeben. Da keine Einzelnuclidbestimmungen durchgeführt werden, liegen keine Zahlenwerte über die Jodabgaberaten mit dem Abwasser von Schwerwasserreaktoren vor.

Jodabgabe mit der Abluft

Die Abgasströme werden, um den Schwerwasserdampf zurückzugewinnen, in geschlossenem Kreislauf geführt. Dabei werden die Abgase auch von Jod gereinigt. Für die beiden kanadischen Anlagen Douglas Point (220 MWe) und Nuclear Power Demonstration Reaktor NPD (25 MWe) sind in Tabelle 4.8 die ^{131}J -Abgaberaten zusammengestellt $\langle 43 \rangle$. Die Abgaberate beim NPD-Reaktor lag unterhalb der Meßgrenze. Auch beim kanadischen Gentilly Reaktor (250 MWe) konnte kein ^{131}J im Abgas festgestellt werden $\langle 42 \rangle$. Für den Mehrzweckforschungsreaktor MZFR (57 MWe) in Karlsruhe liegen keine Zahlen vor, da hier kein Jod gemessen wurde $\langle 44 \rangle$. Die Jodabgaberaten aus Schwerwasserreaktoren sind sehr von der Güte des Kühlsystems abhängig, da Aktivitäten nur durch Lecks in der Anlage nach außen gelangen können.

Tabelle 4.8 Jährliche ^{131}J -Abgaberrate mit der Abluft
von Schwerwasserreaktoren

Reaktor	^{131}J -Abgaberrate $[\bar{\text{Ci/a}}]$		
	1968	1969	1970
NPD (25 MWe)	0.18	0.18	0.18
Douglas Point (220 MWe)	0.07	0.18	0.22

Lastfaktoren unbekannt

4.2.3 Gasgekühlte Reaktoren

Es gibt verschiedene Gruppen von gasgekühlten Reaktoren. Bei den Magnox-Reaktoren (Graphit, U_{nat} -Metall) und den Advanced Gas Cooled Reaktoren AGR (Graphit, UO_2 angereichert) wird CO_2 als Kühlmittel verwendet, während die Hochtemperaturreaktoren (Graphit, UO_2 und UC_2 angereichert) mit Helium gekühlt werden [45].

Magnox und AGR-Reaktoren

Die ersten Magnox -Reaktoren gingen 1956-1959 in Calder Hall (4 x 50 MWe) in Betrieb. Die Anlage Wylfa (2 x 590 MWe), die 1972 den kommerziellen Betrieb aufnahm, war die letzte Magnox -Reaktoranlage. Der erste AGR-Reaktor Dungeness-B (2 x 600 MWe) wird 1974 den Betrieb aufnehmen [46].

Jodabgabe mit dem Abwasser

Quellen für flüssige Abfälle in den Magnox - und AGR-Anlagen sind [47], [48]:

1. das Brennelementlagerbecken
2. das Druckbehälterkühlsystem
3. die Kühlmitteltrocknungsanlage
4. verschiedene Quellen schwachaktiver Flüssigkeiten

Da in den gasgekühlten Reaktoren kein flüssiges Primärkühlmittel oder Moderator vorhanden ist, rühren die flüssigen Abfälle nur von Reaktorkühlssystemen her. Die Abwässer werden in Abklingtanks gesammelt, gereinigt und anschließend mit dem Kondensatorkühlwasser vermischt abgegeben.

Jodabgabe mit der Abluft

Quellen für Aktivitätsabgaben mit der Abluft sind [47], [48]:

1. die Kühlluft des biologischen Schilts
2. der CO₂-Reaktorkühlmittelkreis
3. das Belüftungssystem der Anlagenräume
4. das Druckbehälterkühlsystem

Das Spaltprodukt Jod gelangt aus den Brennelementen in das vorbeiströmende Kühlgas und mit diesem durch Leckagen des Primärkreises in die Luft der Anlagenräume. Es kann also bei den unter 2. und 3. genannten Quellen auftreten. Die Abgase werden gereinigt und über den Abluftkamin abgegeben.

Es liegen keine Meßwerte über die Jodabgaberraten der englischen Magnox - und AGR-Anlagen vor. Einzelnuclidbestimmungen werden nicht durchgeführt.

Hochtemperaturreaktoren (HTGR)

In den heliumgekühlten Hochtemperaturreaktoren wird der Brennstoff in Form von graphitumhüllten Teilchen, den sogenannten "coated particles" eingesetzt. Diese halten die Spaltprodukte sehr gut zurück. Bei den amerikanischen Anlagen Peach Bottom (40 MWe) und Ft. St. Vrain (330 MWe) werden die Teilchen in Graphitstäbe eingebettet. In Deutschland wird die Kugelhaufenreaktorbaulinie verfolgt. Die Brennstoffteilchen befinden sich hier in Graphitkugeln, die kontinuierlich im Reaktor umgewälzt werden.

Die Halogen- und Aerosolabgaberraten für den Peach Bottom-Reaktor sind nach Logsdon [34] in den Jahren 1967 und 1968 vernachlässigbar gering und 1969 und 1970 kleiner als 0.006 Ci/a. Für den ersten deutschen Kugelhaufenreaktor

AVR (15 MWe) in Jülich geben Mattick et al. [49] an, daß die Kühlgasaktivität hauptsächlich von den Edelgasen herührt, andere Spaltprodukte wurden nicht gefunden. Jod kann wegen seiner relativ kleinen Diffusionskonstanten in Graphit nur in sehr geringen Mengen auf direktem Weg in das Kühlgas gelangen; die Jodaktivität im Kühlgas wird zum größten Teil durch den Zerfall des Vorläufers Tellur hervorgerufen [50]. Für die Brennelemente im Core des Thorium-Hochtemperaturreaktors THTR-300 (300 MWe) wurde eine Austrittsrate von ^{131}J von $3.7 \cdot 10^7$ At/sec und von $^{131\text{m}}\text{Te}$ von $8.1 \cdot 10^{12}$ At/sec errechnet [50]. Die Aktivitäten im Kühlgas werden in der Gasreinigungsanlage entfernt. Durch Leckagen kann ein Teil des Jods in die Atmosphäre gelangen. Für den THTR-300 wird in [51] unter Berücksichtigung des Zerfalls von $^{131\text{m}}\text{Te}$ eine ^{131}J -Abgaberate von weniger als 10^{-6} Ci/a angegeben. Bonka und Brüssermann [52] nennen für einen 1000 MWe Hochtemperaturreaktor eine ^{131}J -Abgaberate von $3 \cdot 10^{-3}$ Ci/a.

4.2.4 Schnelle Natriumgekühlte Brutreaktoren (LMFBR)

Wie aus Abschnitt 4.1 ersichtlich, ist das ^{131}J -Aktivitätsinventar in den schnellen Brutreaktoren etwa 40% größer als in den Leichtwasserreaktoren gleicher Leistung. Da bei beiden Reaktortypen $\text{UO}_2 + \text{PuO}_2$ als Brennstoff verwendet wird, kann man bei der Betrachtung der Spaltprodukte davon ausgehen, daß das Jodverhalten in den Brennstäben in erster Näherung gleich ist. Es gelangen Spaltprodukte aus defekten Brennstäben in das Primärkühlmittel, wobei auch bei den schnellen Reaktoren mit 1% defekter Brennstäbe gerechnet werden kann. Im Primärsystem trifft das aus dem Brennstab austretende Jod auf etwa 400 °C heißes Natrium mit dem es zu NaJ reagiert, das auch bei höheren Temperaturen nicht dissoziiert [53]. Dadurch ist die Flüchtigkeit des Jods wesentlich geringer als bei den Leichtwasserreaktoren.

Untersuchungen zeigten, daß das Jod nur als NaJ und nicht als Verbindung mit anderen Spaltprodukten vorliegt und daß dieses NaJ sich zu einem großen Teil an der Phasengrenzfläche Schutzgas-flüssiges Natrium ansammelt [54]. Das nicht als NaJ vorliegende Jod gelangt in den mit Argon gefüllten Schutzgasraum. Aus diesem wird es mit der Schutzgasreinigung entfernt. Das NaJ im Natriumkühlmittel wird mittels Kühlfallen entfernt, so daß es schließlich in den festen Abfall gelangt. Es können keine Aktivitäten ins Kühlwasser gelangen, da der geschlossene Natriumprimärkreis über einen ebenfalls geschlossenen Natriumsekundärkreis an den Dampferzeuger angeschlossen ist. Schikarski und Wild [53] rechnen damit, daß beim natriumgekühlten schnellen Brutreaktor nur vernachlässigbar kleine Mengen von Jod mit der Abluft abgegeben werden, ohne allerdings eine obere Abschätzung der Jodabgaberate anzugeben. Bonka und Brüssermann [52] errechnen eine ^{131}J -Abgaberate für einen 1000 MWe-Reaktor von $1.1 \cdot 10^{-2}$ Ci/a.

5. Jodabgabe durch Wiederaufarbeitungsanlagen

In den aus den Reaktoren entladenen abgebrannten Brennelementen ist neben Uran und Plutonium, das in den Wiederaufarbeitungsanlagen zurückgewonnen wird, ein sehr großes Spaltproduktinventar vorhanden. Bei der Wiederaufarbeitung der Brennelemente wird ein großer Teil dieser Spaltprodukte freigesetzt. Bei dem heute üblichen Lösungsextraktionsverfahren nach dem Purex-Prozeß [55] werden die bestrahlten Brennelemente zunächst in die Einzelstäbe zerlegt und mit einem Chopper in etwa 3 bis 5 cm lange Stücke geschnitten. Diese Stücke werden in ein Säurebad eingebracht, in welchem der Brennstoff aus den Hüllen herausgelöst wird. Mit der entstandenen Uranyl-nitratlösung, welche auch das Plutonium und die Spaltprodukte enthält, beginnt der Extraktionszyklus. Bei diesen drei Prozeßschritten, dem Zerschneiden, der Auflösung und der Extraktion wird zwischen 30 und 95% des gesamten im Brennstoff enthaltenen Jods in das Prozeßabgas freigesetzt [56]. Das gesamte Prozeßabgas durchläuft vor der Abgabe über den Abluftkamin eine Abgasreinigungsanlage, in der das Jod abgetrennt wird. Die Aufarbeitung der Kugeln der Hochtemperaturreaktoren soll nach dem Thorex-Prozeß geschehen [57]. Der erste Prozeßabschnitt, das "Head End" ist die Verbrennung des Graphits in einem Schacht- bzw. Wirbelschichtofen [58]. Der Extraktionsschritt verläuft dann analog dem Purex-Verfahren.

Da die Brennelemente vor der Aufarbeitung längere Zeit gelagert werden, klingt die ^{131}J -Aktivität stark ab, während die ^{129}J -Aktivität praktisch konstant bleibt. Für verschiedenen lange Abklingzeiten τ ist in Tabelle 5.1 die Jodaktivität im Brennstoff angegeben. Der Berechnung wurden die Aktivitätswerte aus Tabelle 4.4 zugrunde gelegt.

Tabelle 5.1 Jodaktivität pro kg Brennstoff nach Entnahme aus dem Reaktor und nach verschieden langer Abklingzeit

Reaktortyp	^{129}J -Aktivität $[\bar{\text{Ci}}/\text{kg}\bar{]}$	^{131}J -Aktivität $[\bar{\text{Ci}}/\text{kg}\bar{]}$ nach Abklingzeit τ					
		= 0 d	= 30 d	= 50 d	= 80 d	= 100 d	= 150 d
LWR [*]	$2,8 \cdot 10^{-5}$	750	57	10	0,77	0,14	0,0019
LMFBR [*]	$8,8 \cdot 10^{-5}$	5100	386	69	5,2	0,93	0,0126
THTR ^{**}	$21,8 \cdot 10^{-5}$	4160	313	54	4,2	0,76	0,0102

*Werte in $[\bar{\text{Ci}}/\text{kg Oxid}\bar{]}$ angegeben

**Werte in $[\bar{\text{Ci}}/\text{kg U-Th}\bar{]}$ angegeben

Jodabgabe mit dem Abwasser

Der größte Teil des im Brennstoff enthaltenen Jods wird in das Prozeßabgas freigesetzt und gelangt in die Abgasanlage. Das bei der Verdampfung zur Konzentrierung des flüssigen Abfalls und zur Säurerückgewinnung anfallende Kondensat ist die Hauptquelle schwachaktiven flüssigen Abfalls [59]. Dieses wird durch Verdampfen weiter gereinigt, bevor es kontrolliert mit dem Abwasser abgegeben wird. Bei der Verdampfung erreicht man Dekontaminationsfaktoren (DF = Verhältnis der eingebrachten zur abgegebenen Aktivität) von 10^6 [60]. Für Jod sind Werte zwischen 10^2 und 10^3 zu erwarten [91].

Jodabgabe mit der Abluft

Die geschätzten jährlichen ^{131}J -Abgaberaten mit der Abluft der belgischen Anlage Eurochemic in Mol [61], [62] und vier amerikanischer Wiederaufarbeitungsanlagen [63], [64] sind in Tabelle 5.2 zusammengestellt. Von der deutschen Wiederaufarbeitungsanlage WAK in Karlsruhe (40 t/a UO_2) [65], den beiden britischen Anlagen Windscale (1500 t/a U_{nat} + 300 t/a UO_2) und Dounreay (Schnellbrüterbrennstoff) [66] sowie den französischen Anlagen Marcoule (300-600 t/a U_{nat} + U-Al) und La Hague (900 t/a UO_2 + 1.5 kg/d Schnellbrüterbrennstoff) [67] liegen keine Zahlen über die Jodabgabe vor.

Die niedrigen Dekontaminationsfaktoren von $\text{DF} = 10^2$ bis 10^3 reichen aus, da in den in der Tabelle 5.2 angegebenen Anlagen nur "lange" gelagerter Brennstoff aufgearbeitet wird.

Tabelle 5.2 Geschätzte jährliche ^{131}J -Abgaberate, verschiedener Wiederaufarbeitungsanlagen

Anlage	Inbetriebnahme	Kapazität $[\bar{t}/\bar{a}]$	DF (\approx einer Rückhalteeffektivität von %)	^{131}J -Aktivitätsabgaberate $[\bar{\text{Ci}}/\bar{a}]$	^{131}J -Abgabe pro Tonne Brennstoff $[\bar{\text{Ci}}/\bar{t}]$
Eurochemic (Belgien)	1966	120	$5 \cdot 10^2$ (99.8)	0.3	$2.5 \cdot 10^{-3}$
NFS (USA)	1966	300*	$2 \cdot 10^2$ (99.5)	3.3**	$1.1 \cdot 10^{-2}$
Midwest (USA)	1971	300	$5 \cdot 10^2$ (99.8)	0.85	$2.8 \cdot 10^{-3}$
Barnwell (USA)	1973	1500	10^2 (99)	21.2	$1.4 \cdot 10^{-2}$
ARCO (USA)	1976	1500	10^3 (99.9)	1.8	$1.2 \cdot 10^{-3}$

* wird auf 900 t/a erweitert

** Genehmigungswert

Bei den zukünftigen Anlagen mit einem Jahresdurchsatz von 1500 t UO_2 und kürzeren Abklingzeiten des Brennstoffs werden höhere DF's erforderlich sein.

Für Wiederaufarbeitungsanlagen mit einem Durchsatz von 1500 t/a Leichtwasserreaktor- oder Schnellbrüterbrennstoff ist in den Abb.5.1 und 5.2 mit der Abklingzeit als Parameter die jährliche Jodaktivitätsabgaberate als Funktion des Dekontaminationsfaktors dargestellt. Die Berechnung beruht auf den Werten der Tabelle 5.1. Beim Schnellbrüterbrennstoff wird von einer gemischten Core/Blanket-Aufarbeitung im Verhältnis 1:2.87 ausgegangen [68], so daß die in Tabelle 5.1 angegebenen Aktivitäten um den Faktor 2.87 verringert werden müssen, um zu den in Abb.5.2 dargestellten Werten zu gelangen. Es wird außerdem von einer hundertprozentigen Freisetzung des im Brennstoff enthaltenen Jods in das Prozeßabgas ausgegangen.

Die Jodabgaberate wird durch die zulässige Schilddrüsenbelastung der Kleinkinder von $\dot{D} = 90$ mrem/a [5] begrenzt. Mit der Abluft von Wiederaufarbeitungsanlagen werden die radioaktiven Jodisotope ^{129}J und ^{131}J in die Umgebung freigesetzt, so daß die Bedingung

$$\dot{D}_{129J} + \dot{D}_{131J} \leq 90 \text{ mrem/a} \quad (3)$$

erfüllt sein muß. Der bei gegebener Abklingzeit τ [d] erforderliche DF, um die Bedingung (3) einzuhalten, ist für die Aufarbeitung von 1500 t/a Leichtwasserreaktorbrennstoff oder Schnellbrüterbrennstoff in den Abb.5.3 und 5.4 dargestellt. Der Rechnung liegt der auch in Kapitel 2 verwendete Ausbreitungsfaktor $J = 5 \cdot 10^{-7} \text{ sec/m}^3$ zugrunde. Bei sehr großen Abklingzeiten ($\tau > 190$ d) stellt das ^{129}J das begrenzendende Isotop dar, während bei kürzeren Abklingzeiten ($\tau < 150$ d) das ^{131}J den entscheidenden Einfluß ausübt. Man erkennt aus Abb.5.4, daß bei der Wiederaufarbeitung von Schnellbrüterbrennstoff nach 150 d Abklingzeit ein DF von

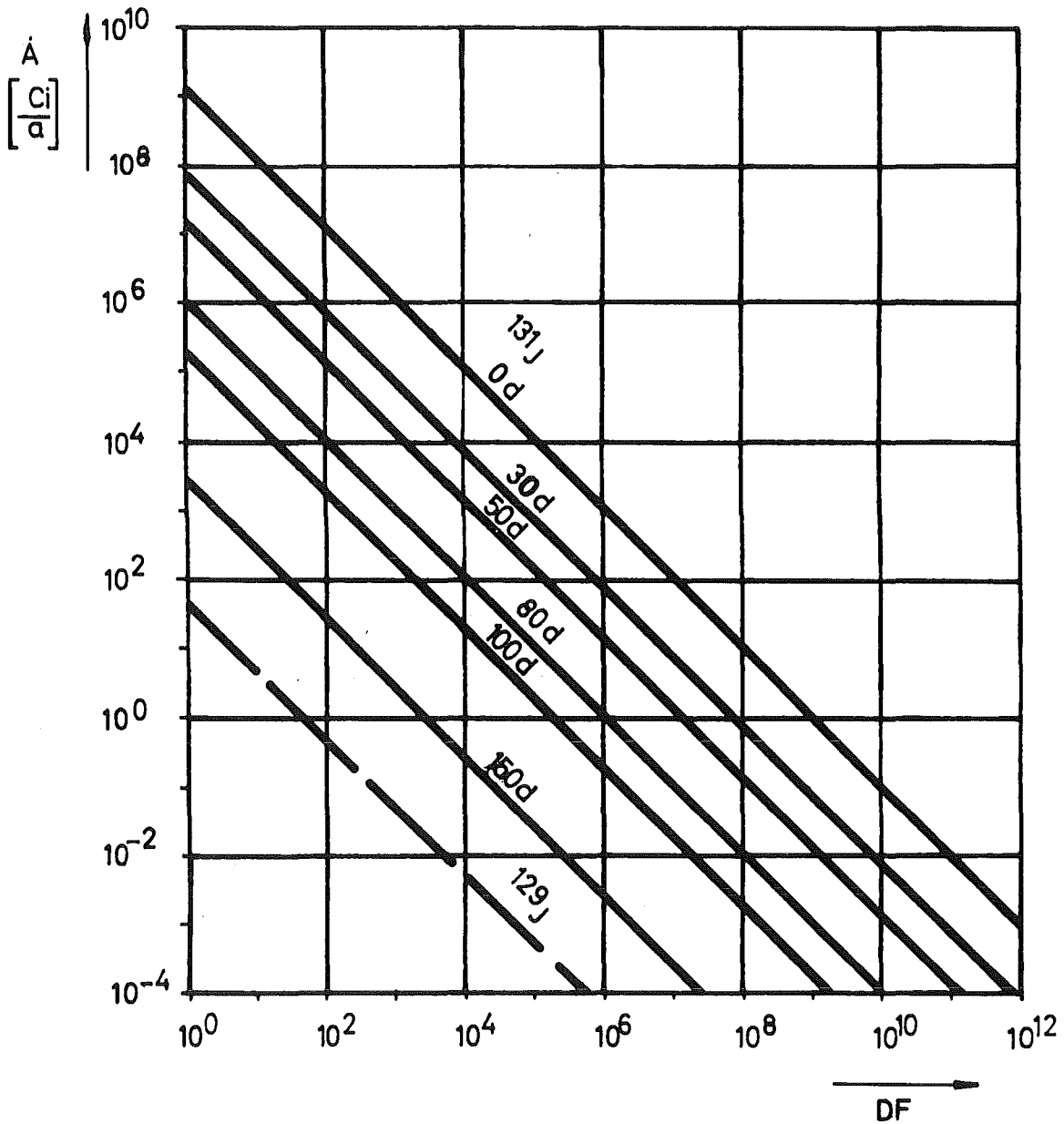


Abb.5.1 Jährliche Jodaktivitätsabgaberate bei Aufarbeitung von 1500 t/a Leichtwasserreaktorbrennstoff mit einem mittleren Endabbrand von 30000 MWd/t bei verschiedenen Dekontaminationsfaktoren DF

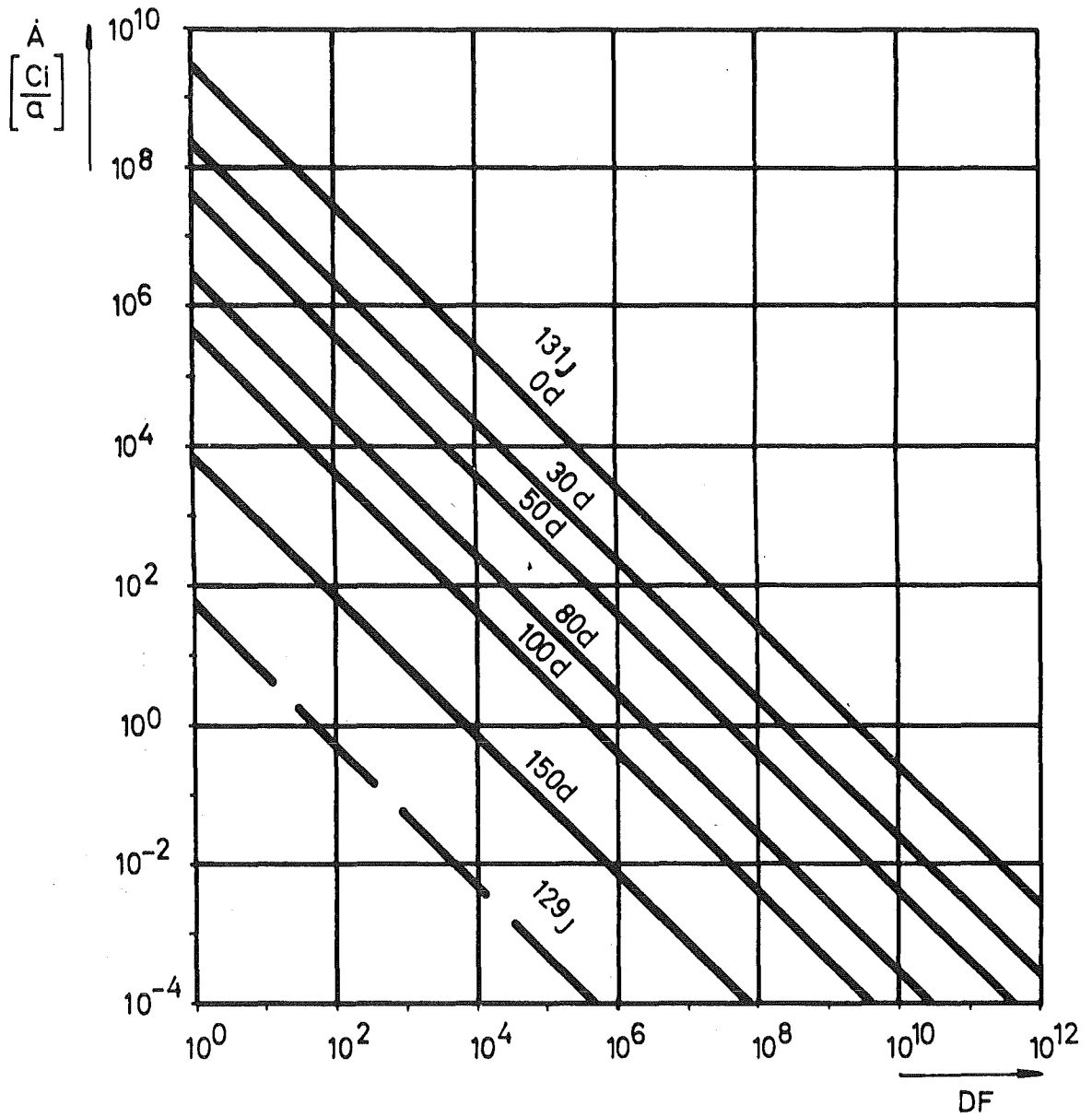


Abb. 5.2 Jährliche Jodaktivitätsabgaberrate bei Aufarbeitung von 1500 t/a Schnellbrüterbrennstoff mit einem mittleren Endabbrand von 80000 MWd/t (Core Blanket-Aufarbeitung) bei verschiedenen Dekontaminationsfaktoren DF

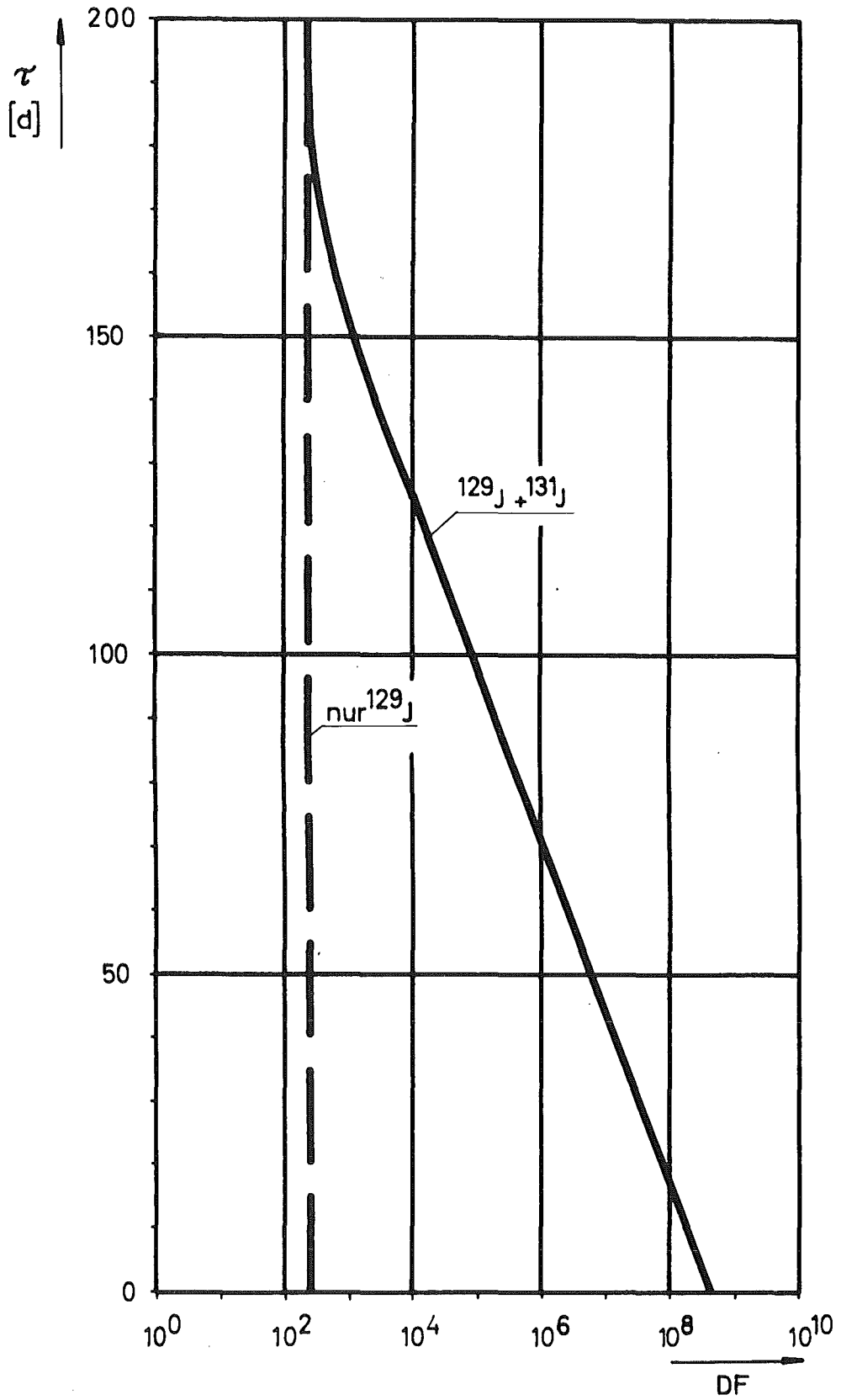


Abb.5.3 Erforderliche Abklingzeiten τ bei Aufarbeitung von 1500 t/a Leichtwasserreaktorbrennstoff bei verschiedenen Dekontaminationsfaktoren DF und einem Ausbreitungsfaktor $J = 5 \cdot 10^{-7} \text{ sec/m}^3$.

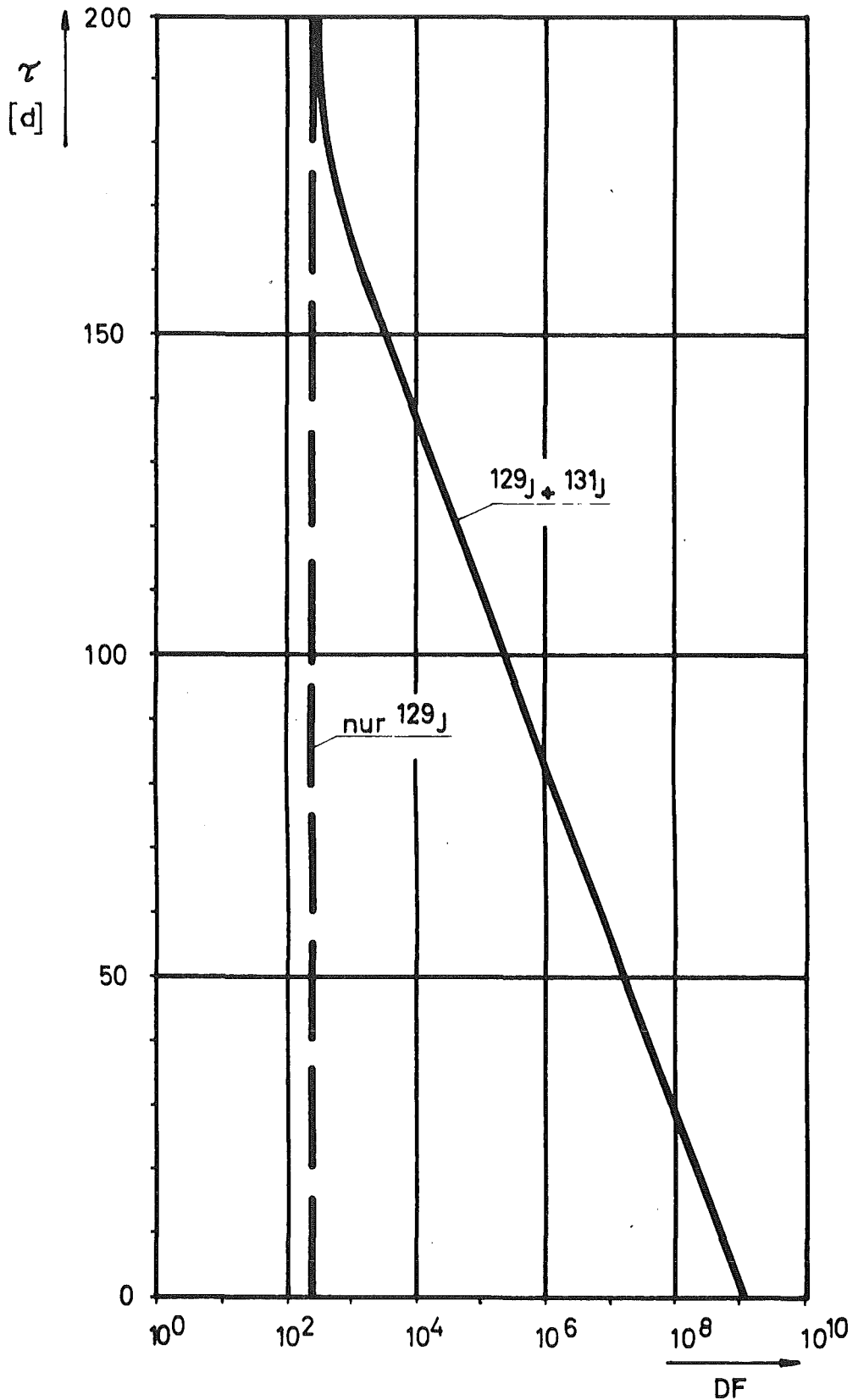


Abb. 5.4 Erforderliche Abklingzeiten τ bei Aufarbeitung von 1500 t/a Schnellbrüterbrennstoff (Core/Blanket-Aufarbeitung) bei verschiedenen Dekontaminationsfaktoren DF und einem Ausbreitungsfaktor $J = 5 \cdot 10^{-7} \text{ sec/m}^3$.

$2 \cdot 10^3$ erforderlich ist. Zur Zeit sind DF's von 10^3 bis $2 \cdot 10^3$ realistisch $\langle \bar{69} \bar{7} \rangle$, bei sorgfältiger Auslegung der Abgasanlage ist auch ein DF von 10^4 erreichbar $\langle \bar{56} \bar{7} \rangle$. Dieser DF gilt nur dann für die gesamte Anlage, wenn er auch für Jod im Abwasser Gültigkeit besitzt. Bei der WAK z.B. gelangt 1% des eingebrachten Jods in das Abwasser, das mit einem DF von 10^2 gereinigt wird, so daß insgesamt ein DF von 10^4 erreicht wird $\langle \bar{91} \bar{7} \rangle$. Bei der Anlage NFS hingegen gelangten 1971 etwa 20% der eingebrachten ^{129}J -Aktivität in den flüssigen Abfall $\langle \bar{92} \bar{7} \rangle$.

Wenn der Schnellbrüterbrennstoff schon nach kürzeren Abklingzeiten, etwa 30 Tagen, wie in den USA in der Diskussion $\langle \bar{70} \bar{7} \rangle$, aufgearbeitet wird, ist ein DF von 10^8 notwendig. In Oak-Ridge wird dafür ein Verfahren entwickelt, bei dem das Jod vor der Auflösung des Brennstoffs durch Erhitzen der Brennstoffstücke abgetrennt wird. Es kann dann durch hintereinandergeschaltete Filter wirksam entfernt werden, da das Abgasvolumen dann wesentlich kleiner ist $\langle \bar{56} \bar{7} \rangle$, $\langle \bar{71} \bar{7} \rangle$.

6. ^{129}J aus oberirdischen Kernwaffenexplosionen

Das langlebige Isotop ^{129}J wird auch bei der Explosion von Spaltbomben erzeugt und freigesetzt. In Tabelle 6.1 ist die Sprengkraft der bis 1962 erfolgten Spaltbombentests in der Atmosphäre zusammengestellt [72]. Es ergibt sich eine akkumulierte Sprengkraft von 193 Mt TNT-Äquivalent. Pro Mt TNT-Äquivalent werden $1.45 \cdot 10^{26}$ Kerne gespalten [73]. Bei einer ^{129}J -Spaltausbeute von 1.26% [74] folgt daraus die Bildung von $1.8 \cdot 10^{24}$ ^{129}J -Kernen bei der Explosion einer Bombe von 1 Mt TNT-Äquivalent. Dies entspricht einer ^{129}J -Aktivität von $6.4 \cdot 10^{-2}$ Ci/Mt TNT-Äquivalent. Durch die bis 1962 erfolgten oberirdischen Kernwaffenexplosionen sind daher rund 12 Ci ^{129}J in die Atmosphäre freigesetzt worden. Die durch die Bombenexplosionen erzeugten Spaltprodukte breiteten sich in der Troposphäre oder der Stratosphäre aus. Die mittlere Verweilzeit in der Troposphäre beträgt etwa einen Monat, während die in die Stratosphäre getragenen Spaltprodukte mehrere Jahre dort verweilen können bis sie in die Troposphäre überwechseln [75]. Die bis 1962 in die Atmosphäre gelangten Spaltprodukte haben sich inzwischen zum größten Teil auf der Erdoberfläche abgelagert.

Tabelle 6.1 Sprengkraft der oberirdischen Spaltbomben-
explosionen in den Jahren 1945-1962

Jahr	Sprengkraft $\overline{M_t}$	
	engl.-amerikanische Explosionen	russische Explosionen
1945-1958	66	26
1961	-	25
1962	16	60
Gesamt	82	111

7. Voraussichtliche radiologische Belastung durch die Abgabe von Jodisotopen aus kerntechnischen Anlagen

Der Abschätzung der zukünftigen lokalen und globalen radiologischen Belastung durch Jod werden die in dieser Arbeit ermittelten Jod-Produktions- und -Freisetzungsraten zugrunde gelegt. Ferner wird die einer Arbeit von Grathwohl [76] entnommene in den Abbildungen 7.1 und 7.2 dargestellte Prognose der installierten Kernkraftwerksleistung und deren Aufteilung auf die verschiedenen Reaktortypen herangezogen.

7.1 Lokale Belastung

Kernkraftwerke

Kernkraftwerke werden wegen des großen Kühlmittelbedarfs zur Zeit vorwiegend an Flüssen mit ausreichender Wasserführung errichtet. Bei steigendem Energiebedarf und damit steigender Zahl von Kernkraftwerken führt diese Standortstrategie zu einer Konzentration von Kernkraftwerksblöcken längs der Flußläufe. So sind am Oberrhein zwischen Fessenheim und Biblis auf einer Strecke von ca. 200 km bis 1985 auf 9 Standorte verteilt etwa 20 Kernkraftwerksblöcke mit einer Gesamtleistung von 17680 MWe vorgesehen [77].

Wie aus Kapitel 4 hervorgeht, stellt der Siedewasserreaktorblock mit einer ^{131}J -Abgaberate von 0.3 Ci/a die größte Quelle dar. Stehen mehrere Kernkraftwerksblöcke mit gleicher Schornsteinhöhe an einem Standort, so können diese in erster Näherung als ein einziger Emittent in der Mitte des Standorts aufgefaßt werden [78]. Bei einer Zahl von maximal 4 Siedewasserreaktorblöcken pro Standort, wie sie etwa für Philippsburg geplant sind [77], ergibt sich dann eine ^{131}J -Abgaberate von 1.2 Ci/a. Dieser Wert erreicht knapp die Hälfte der maximal zulässigen ^{131}J -Abgaberate von 2.5 Ci/a (siehe Tab. 2.4).

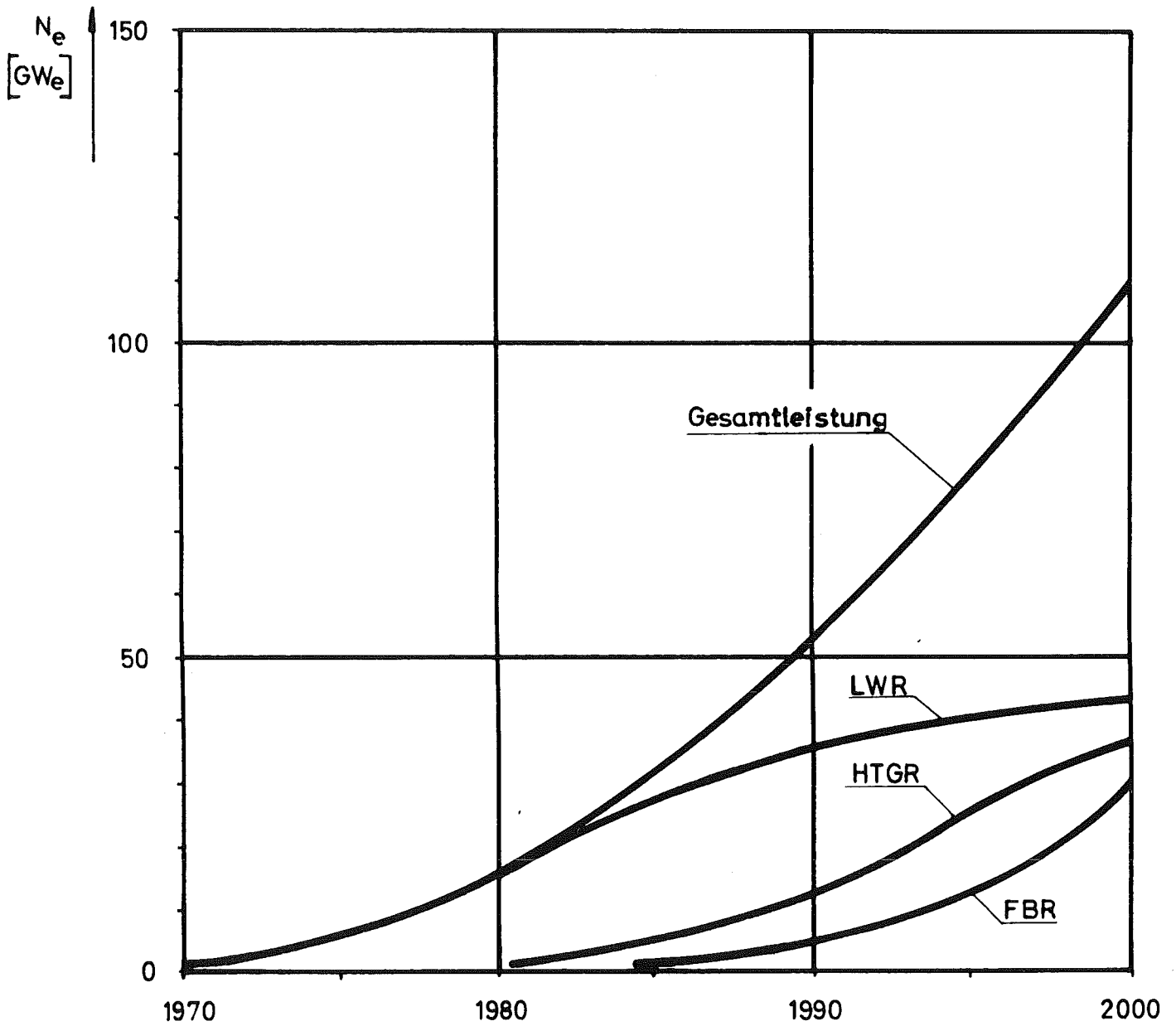


Abb.7.1 Geschätzte Entwicklung des Kernenergiebedarfs der Bundesrepublik [76]

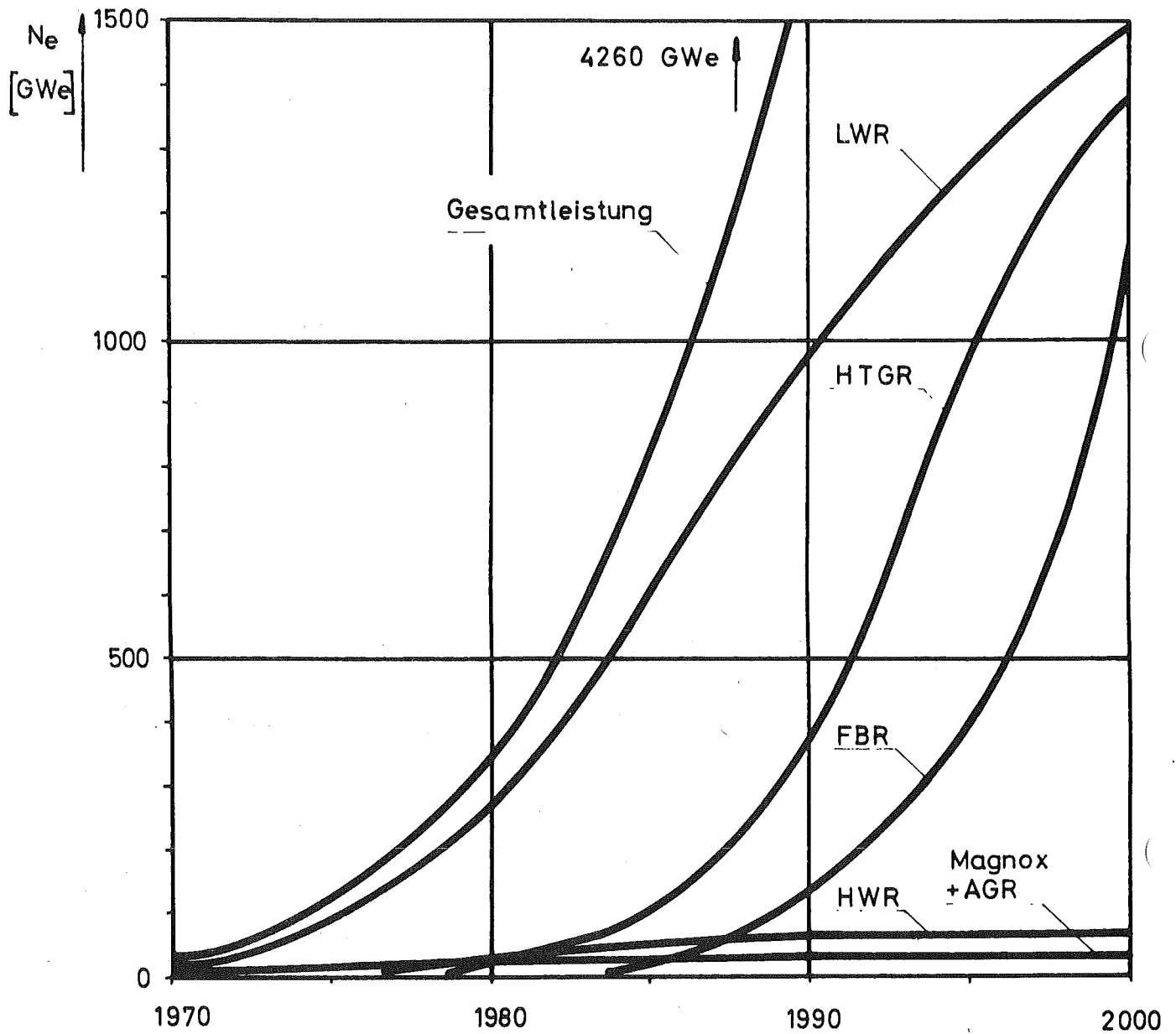


Abb.7.2 Geschätzte Entwicklung des Kernenergiebedarfs der Welt [76/

Bei entsprechendem technischen Aufwand kann das Lüftungssystem so ausgelegt werden, daß grundsätzlich die Abluft der Anlagenräume über Aktivkohlefilter gereinigt wird, so daß die Jodabgabe aus Kernkraftwerken dadurch wesentlich reduziert wird [36].

Wiederaufarbeitungsanlagen

Neben den Kernkraftwerken sind die Wiederaufarbeitungsanlagen Quellen größerer Jodfreisetzung. Der abgebrannte Brennstoff aus der Bundesrepublik wird bis etwa 1980 in England und Frankreich sowie zu einem kleinen Teil (40 t/a) in der WAK in Karlsruhe aufgearbeitet. Erst zu diesem Zeitpunkt, wenn die Kapazität der ausländischen Anlagen ausgelastet sein wird, ist an den Bau einer deutschen Anlage mit 1500 t/a Durchsatz gedacht [79]. Aus den in [29] angegebenen Daten von Abbrandwerten und Brennstoffladungen der verschiedenen Reaktoren läßt sich errechnen, daß pro Jahr und 1000 MWe 35 t Leichtwasserreaktorbrennstoff und 14 t Schnellbrüterbrennstoff aufgearbeitet werden müssen. Mit der in Abb.7.1 angegebenen im Jahr 2000 in der Bundesrepublik installierten Leistung von 45 GW Leichtwasserreaktoren und 30 GW Schnellbrüterreaktoren ergibt sich eine aufzuarbeitende Brennstoffmenge von 2780 t/a (bei Core/Blanket-Aufarbeitung des Schnellbrüterbrennstoffs im Verhältnis 1:2.87 [68]). Es sind daher zwei Anlagen mit je 1500 t Jahresdurchsatz erforderlich, für die man zwei verschiedene Standorte wählen wird. Bei gemischter Leichtwasserreaktor- und Schnellbrüterbrennstoffaufarbeitung, einer Abklingzeit von 150 d und einem DF von 10^4 folgt, daß pro Anlage 0.42 Ci/a ^{131}J und 0.004 Ci/a ^{129}J in die Atmosphäre freigesetzt werden. Diese Werte liegen deutlich unter den in Tabelle 2.4 angegebenen zulässigen Abgaberraten.

Für die Aufarbeitung von Hochtemperaturreaktorbrennstoff lassen sich keine Zahlen angeben, da das Aufarbeitungsverfahren noch nicht festliegt.

7.2 Globale Belastung

Während das Isotop ^{131}J wegen seiner kurzen Halbwertszeit nur für die lokale Belastung Bedeutung besitzt, muß bei dem langlebigen Isotop ^{129}J , das in der Natur akkumuliert wird, die globale Belastung berücksichtigt werden.

Gemäß den Energiebedarfsprognosen nach Abb.7.1 und 7.2 ergeben sich die in den Abbildungen 7.3 und 7.4 für die Bundesrepublik und für die Welt dargestellten jährlichen ^{129}J -Produktions- und Freisetzungsraten sowie die bis zum Jahr 2000 durch die Kernspaltung akkumulierte ^{129}J -Aktivität und die akkumulierte freigesetzte ^{129}J -Aktivität. In Abb.7.4 ist außerdem die durch natürliche ^{129}J -Entstehung und aus Kernwaffenversuchen freigesetzte ^{129}J -Aktivität eingetragen. Die Darstellungen basieren auf einem Lastfaktor von 0.8. Für die ^{129}J -Freisetzung aus Wiederaufarbeitungsanlagen wurde ein DF von 10^4 angenommen. Nach Abb.7.4 werden bis zum Jahr 2000 auf der Welt 35000 Ci ^{129}J durch die Kernspaltung akkumuliert sein. Davon sind entsprechend einem DF von 10^4 3.5 Ci ^{129}J in die Atmosphäre freigesetzt worden. Hinzu kommen 12 Ci ^{129}J aus den Kernwaffentests in der Atmosphäre und 32 Ci ^{129}J durch natürliche Entstehung. In Kapitel 2 ist die zulässige spezifische Aktivität von ^{129}J zu $0.21 \mu\text{Ci } ^{129}\text{J/g}$ stabilem Jod errechnet worden. Um die oben angegebenen 47.5 Ci ^{129}J auf die zulässige spezifische Aktivität zu verdünnen, müssen daher mindestens $2.3 \cdot 10^8$ g an stabilem Jod zur Verfügung stehen.

Wie aus Tabelle 7.1 hervorgeht, ist das stabile Jod sehr ungleichmäßig in der Natur verteilt. Da allgemein angenommen

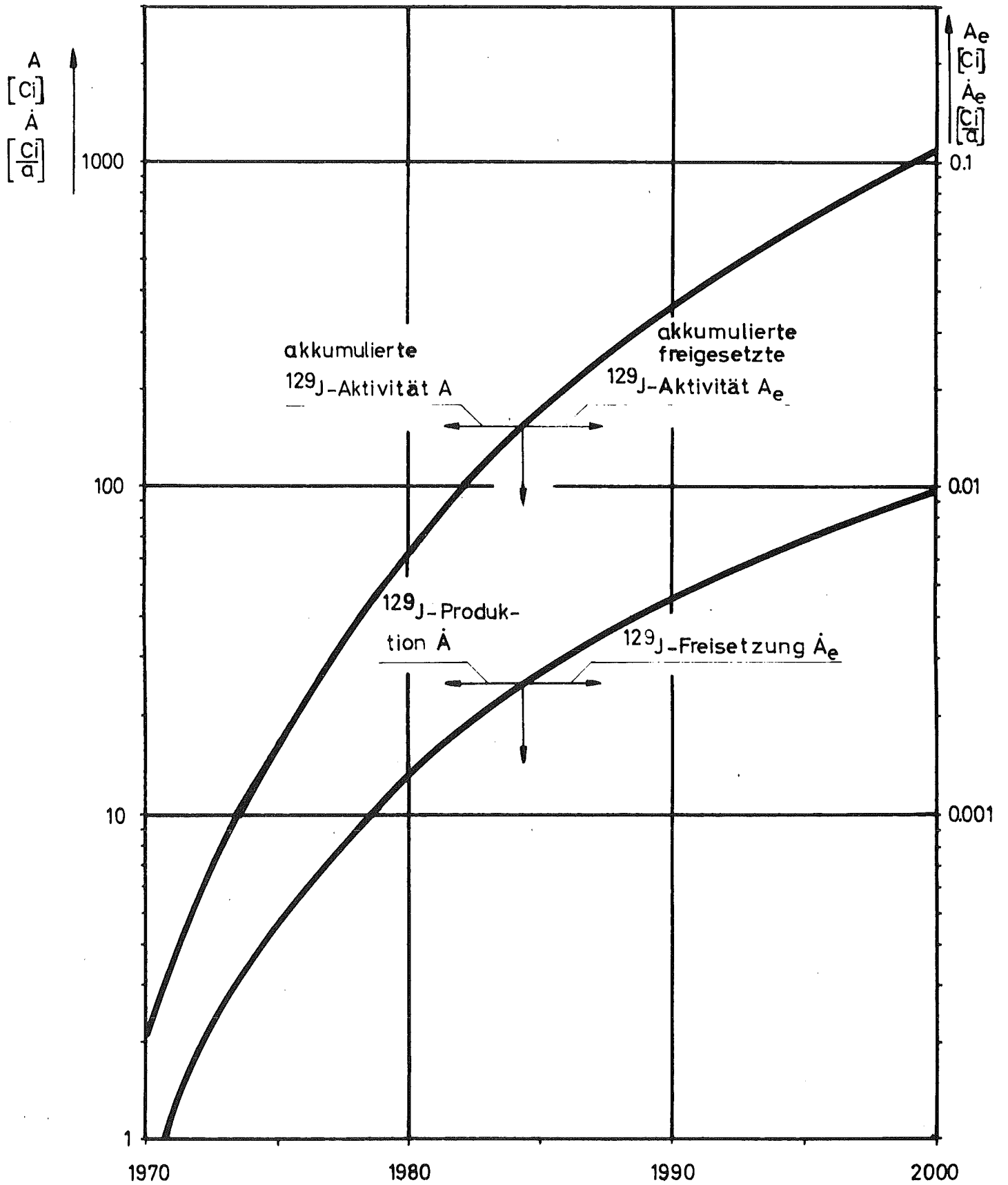


Abb.7.3 ^{129}J -Produktions- und Freisetzungsrates sowie akkumulierte produzierte und freigesetzte ^{129}J -Aktivität in der BRD bei einem Dekontaminationsfaktor DF von 10^4

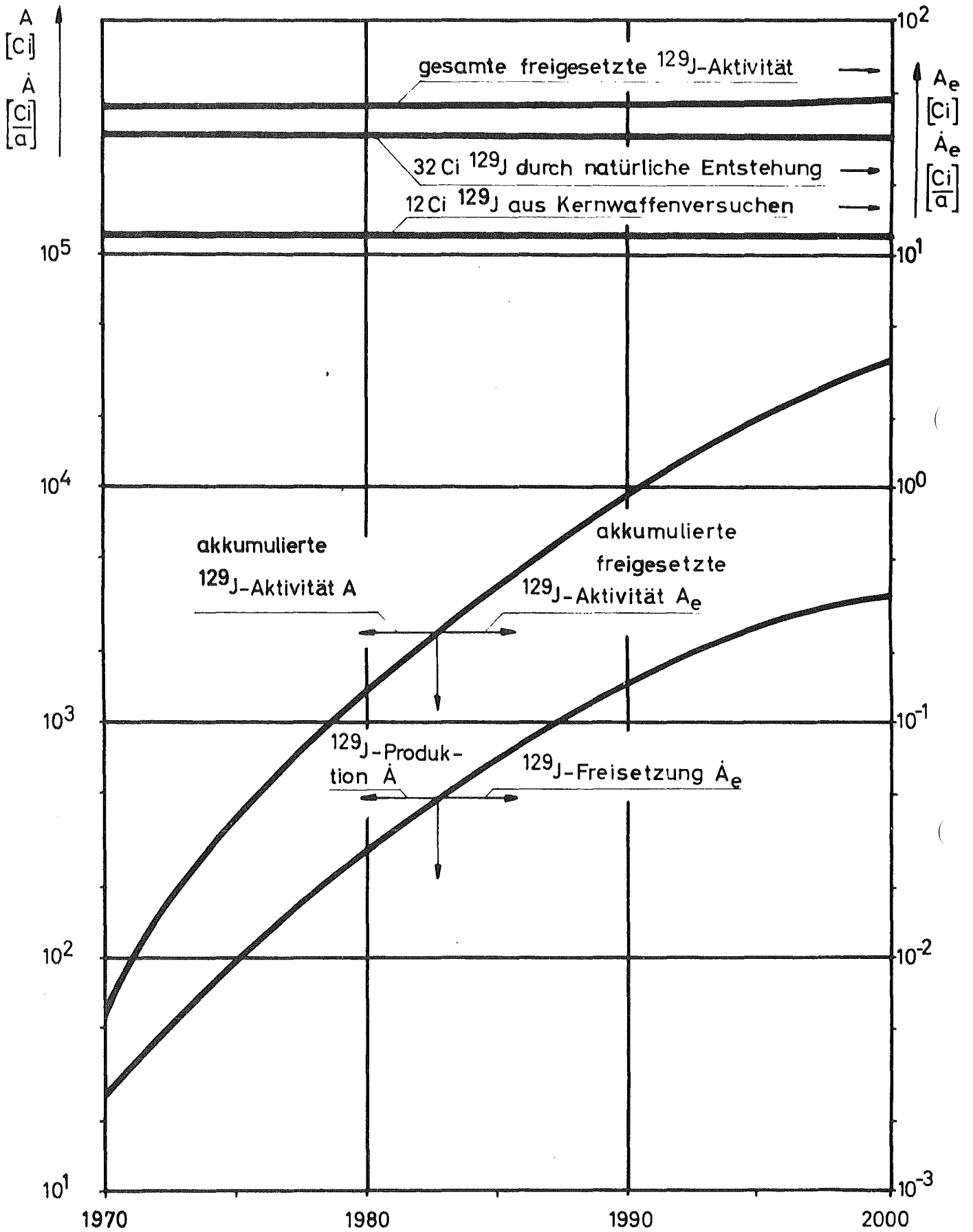


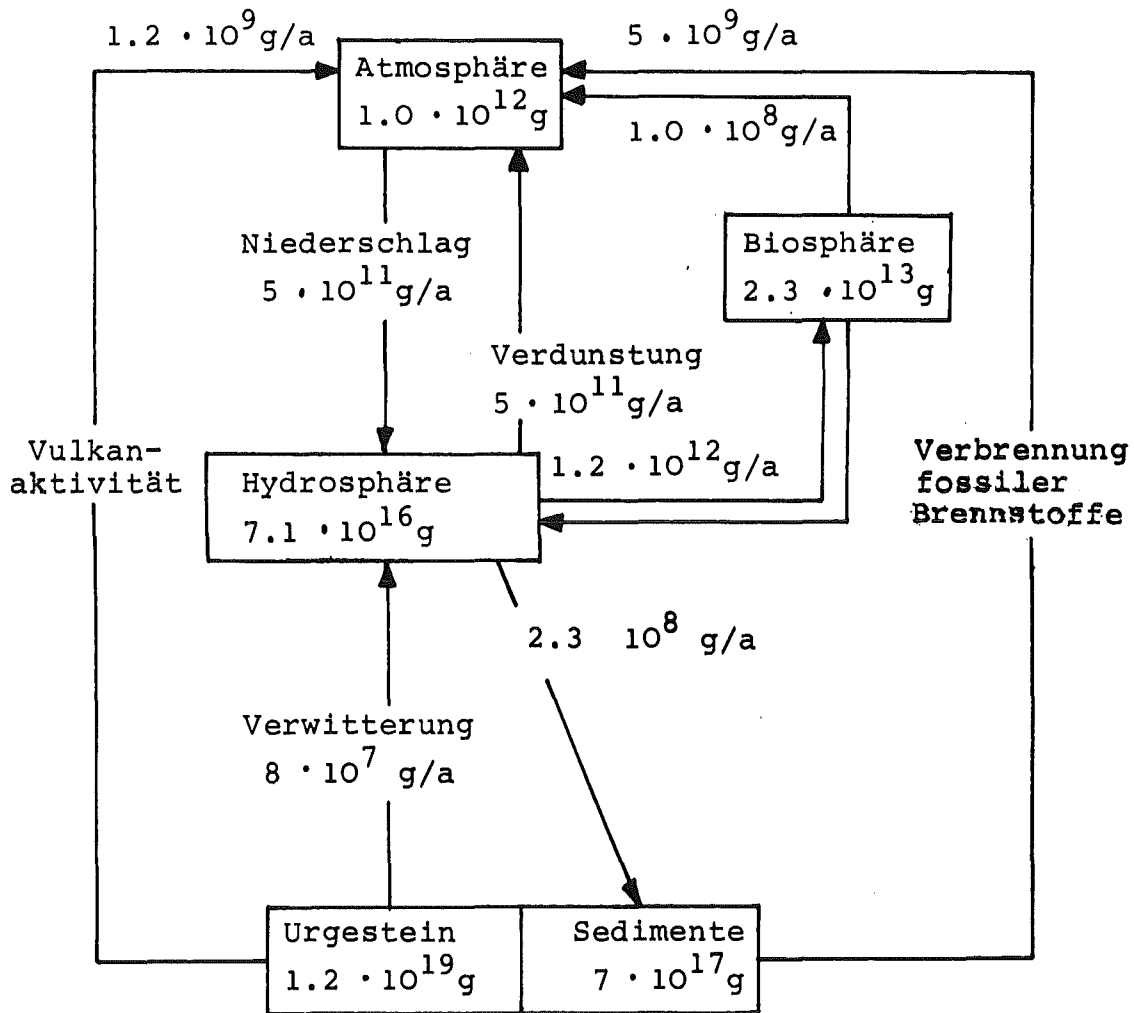
Abb. 7.4 ^{129}J -Produktions- und Freisetzungsrates sowie akkumulierte produzierte und freigesetzte ^{129}J -Aktivität in der Welt bei einem Dekontaminationsfaktor von 10^4

Tabelle 7.1 Gehalt an stabilem Jod in der Umwelt

	Jodgehalt ppm	Ref.
Atmosphäre	0.00001	⟨80⟩
Niederschlag	0.001	⟨81⟩
Flußwasser	0.007	⟨81⟩
Meerwasser	0.064	⟨81⟩
Urgestein	0.3	⟨82⟩
Boden	0.6 → 8 Durchschnitt 2	⟨83⟩
Pflanzen (Trocken- substanz)	0.07 → 1	⟨84⟩
Mensch (Schilddrüse Erwachsener)	400	⟨17⟩

wird, daß das chemische und biologische Verhalten der Radioisotope dem Verhalten der entsprechenden stabilen Elemente ähnlich ist [85], nimmt das Isotop ^{129}J an dem in Abb.7.5 dargestellten Gleichgewichtszyklus [86] des Jods auf der Erde teil. Dabei wird sich in allen Komponenten des Kreislaufs im Gleichgewicht dasselbe Verhältnis zwischen ^{129}J und stabilem Jod einstellen. Den Hauptanteil des Jodaustausches zwischen Hydrosphäre und Atmosphäre liefert die Verdunstung aus dem Meer, der anschließende Transport zum Festland, wo das Jod mit dem Niederschlag in die Flüsse gelangt und das Abfließen mit dem Flußwasser ins Meer. Die in der Atmosphäre vorhandene Wassermenge wird alle 10 Tage umgesetzt [87], so daß ein rascher Austausch des Jods erfolgt. Das Wasser im Meer nimmt nicht vollständig an der Vermischung teil. Nur die oberste wärmere Meeresschicht, in der die Temperatur annähernd konstant bleibt, ist gut vermischt. Darunter, in der sogenannten "Thermocline", fällt die Temperatur monoton mit größer werdender Meerestiefe [81]; diese Wassermengen vermischen sich nur in sehr langen Zeiträumen. In der obersten Meeresschicht bis 75 m Tiefe sind $2.7 \cdot 10^{16} \text{ m}^3$ Wasser vorhanden [88]. Bei einem Jodanteil von 0.064 ppm im Meerwasser (siehe Tab.7.1) ergibt sich daraus eine Menge von $1.7 \cdot 10^{15} \text{ g}$ stabilem Jod im Meerwasser, gegenüber einer zur Verdünnung auf die spezifische ^{129}J -Aktivität erforderliche Jodmenge von $2.3 \cdot 10^8 \text{ g}$. Bei diesem Modell, das auf der gleichmäßigen Durchmischung des ^{129}J im Jodkreislauf beruht, ergibt sich demnach eine ausreichende Vermischungskapazität. Zur Klärung der Frage, nach welchen Gesetzen das aus kerntechnischen Anlagen lokal freigesetzte ^{129}J in den globalen Kreislauf aufgenommen wird, bedarf es noch weiterer Untersuchungen.

Abb.7.5 Gleichgewichtszyklus des Jods auf der Erde. Jodinventar und jährliche Austauschrate [86]



8. Zusammenfassung

In Kernreaktoren entstehen radioaktive Jodisotope, von denen die Isotope ^{129}J ($T_{1/2} = 1.6 \cdot 10^7 \text{ a}$) und ^{131}J ($T_{1/2} = 8.05 \text{ d}$) die für die radiologische Belastung bedeutendsten sind.

In 1000 MWe Leichtwasserreaktoren beträgt das Aktivitätsinventar dieser Nuklide $0.81 \text{ Ci } ^{129}\text{J}$ und $74 \cdot 10^6 \text{ Ci } ^{131}\text{J}$. Die wesentliche Rolle spielt dabei das ^{131}J . Infolge Diffusion durch den Brennstoff und anschließender Leckage aus defekten Brennstabhüllen gelangt ein geringer Anteil der erzeugten Aktivität in das Primärkühlmittel. In der Kühlmittelreinigungsanlage wird im Bypass jeweils ein Teil des Kühlmittels quantitativ von Jod gereinigt. Durch Leckagen aus dem Primärsystem kann das Jod in die Anlagenräume gelangen und schließlich mit der Abluft in die Umgebung freigesetzt werden. Da die Leckrate des Primärkühlmittels in erster Näherung unabhängig von der Reaktorleistung ist, wird auch die Jodfreisetzung in die Umgebung näherungsweise unabhängig von der Reaktorleistung. Mit der Abluft von Druckwasserreaktoren werden max. $0.06 \text{ Ci/a } ^{131}\text{J}$ abgegeben, während die Abgaberate bei den Siedewasserreaktoren max. $0.3 \text{ Ci/a } ^{131}\text{J}$ beträgt. Der Unterschied beruht im wesentlichen auf den verschiedenartigen Kühlmittelkreisläufsystemen. Die ^{131}J -Abgaberate eines einzelnen Kernkraftwerksblocks beider Reaktortypen liegt deutlich unter 2.5 Ci/a , die einer Dosis von etwa 90 mrem/a entspricht. Bei mehreren Blöcken an einem Standort ist gegebenenfalls eine Verringerung der ^{131}J -Abgaberate der einzelnen Blöcke erforderlich.

Die Jodabgaberate gasgekühlter Hochtemperaturreaktoren ist durch die guten Rückhalteeigenschaften der "Coated Particles" gering. Für einen 1000 MWe Hochtemperaturreaktor rechnet man mit einer ^{131}J -Abgaberate von 0.003 Ci/a .

Auch beim natriumgekühlten schnellen Brutreaktor werden nur geringe Jodaktivitäten abgegeben, da das im Natrium als NaJ vorliegende Jod durch Kühlfällen wirksam entfernt werden kann. Als obere Abschätzung kann eine Abgaberate von 0.01 Ci/a ^{131}J gelten.

Von den in die Wiederaufarbeitungsanlagen eingebrachten Jodaktivitäten wird bei der Aufarbeitung des Brennstoffs ein Teil mit der Abluft abgegeben. Bei einem zur Zeit technisch möglich erscheinenden DF von 10^4 und 150 Tagen Abklingzeit wird aus einer Anlage, in der 1500 t/a Schnellbrüterbrennstoff bei gemischter Core/Blanket-Aufarbeitung durchgesetzt werden, eine Abgaberate von 0.005 Ci/a ^{129}J und 0.7 Ci/a ^{131}J erwartet.

Wegen seiner langen Halbwertszeit akkumuliert sich das Isotop ^{129}J in der Natur. Bis zum Jahr 2000 werden auf der Welt ca. 3.5 Ci ^{129}J aus Wiederaufarbeitungsanlagen freigesetzt. Dieser Freisetzung aus kerntechnischen Anlagen stehen gegenüber: 12 Ci ^{129}J , die bereits bis 1962 durch oberirdische Atombombentests freigesetzt wurden sowie 32 Ci ^{129}J , die aus der natürlichen ^{129}J -Entstehung am Jodkreislauf auf der Erde teilnehmen. Um diese rund 48 Ci ^{129}J auf die zulässige spezifische Aktivität von 0.21 $\mu\text{Ci } ^{129}\text{J/g}$ stabilem Jod zu verdünnen, sind zur Verdünnung $2.4 \cdot 10^8$ g an stabilem Jod erforderlich, die ebenfalls am Jodkreislauf teilnehmen müssen. Allein im auf der Erde zirkulierenden Wasser sind $1.7 \cdot 10^{15}$ g stabiles Jod enthalten, so daß rechnerisch eine ausreichend große Vermischungskapazität besteht. Wie schnell das ^{129}J , das aus den kerntechnischen Anlagen kommt, an diesem Kreislauf teilnimmt, ist allerdings noch ungeklärt.

Die in dieser Arbeit angegebenen Werte für Freisetzung, Transport, Ablagerung und radiologische Belastung wurden nach dem jetzigen Stand des Wissens ermittelt. Es zeigte sich dabei, daß eine Reihe von Daten noch nicht ausreichend

gut bekannt sind bzw. bestimmte Angaben, die für eine genauere Berechnung notwendig waren, fehlen. Unter diesen Gesichtspunkten sind die hier erarbeiteten Ergebnisse zu sehen.

Eine genauere Abschätzung der sich durch die Freisetzung von radioaktiven Jodisotopen ergebenden Probleme könnte erreicht werden durch:

1. öftere bis kontinuierliche Messung der verschiedenen Jodisotope in der Abluft kerntechnischer Anlagen, um zu besser abgesicherten Daten zu gelangen;
2. genauere Bestimmung des Anteils der verschiedenen chemischen Formen des freigesetzten Jods. In neuester Zeit sind dazu erste Abschätzungen bekannt geworden [89]. Danach kann Jod existieren als Jodid (J), freies Jod (J_2), Hypojodid (JO), Jodat (JO_3), Perjodat (JO_4), Methyljodid (CH_3J) und Methyljodat (CH_3JO_3). Die vorherrschende Form ist das Jodid-Ion, das in Gegenwart von Licht zu einem gewissen Grad zu J_2 oxidiert. Unter Normalbedingungen existiert J_2 als fester Stoff, sublimiert aber unter bestimmten Voraussetzungen zu Dampf. Es wird angenommen, daß ^{131}J als Jodid existiert, aber es tritt auch Oxidation zu J_2 auf. Man glaubt, daß 50 bis 90% des atmosphärischen ^{131}J in Partikelform vorliegt oder an Kondensationskeime angelagert ist, der Rest ist gasförmig. Untersuchungen im Kernkraftwerk Obrigheim zeigten, daß ein erheblicher Anteil des in der Abluft auftretenden Jods in Verbindungsform vorlag [90]. In der Abluft von Wiederaufarbeitungsanlagen hingegen scheint das Jod zum größten Teil als elementares Jod freigesetzt zu werden [91];
3. Untersuchungen über die Möglichkeit der chemischen Veränderung der Jodverbindungen auf ihren Transport durch die Luft und nach der Ablagerung auf der Grasnarbe und die sich daraus ergebenden verbindungsabhängigen Parameter des "Jodpfades", z.B. die Ablagerungsgeschwindig-

keit auf der Grasnarbe;

4. Erforschung der für die Aufnahme des ^{129}J in den Jodkreislauf und die globale Verteilung gültigen Zeitkonstanten.

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

Literaturverzeichnis

- 17 UNITED STATES ATOMIC ENERGY COMMISSION REGULATIONS
Title 10, Chapter 1 "Code of Federal Regulations",
Part 50, Appendix I "Numerical Guides for Design
Objectives and Limiting Conditions for Operation
to meet the Criterion "As Low as Practicable" for
Radioactive Material in Light-Water-Cooled Nuclear
Power Reactor Effluents" (1971).
- 27 COMAR, C.L.
Panel Discussion, Environmental Contamination by
Radioactive Materials, Proc. FAO, IAEA, WHO Sem.
Vienna 1969
IAEA, Vienna (1969)
- 37 RUSSEL, J.L., HAHN, P.B.
Public Health Aspects of Iodine-129 from the Nuclear
Power Industry.
Proc. Fifth Annual Health Physics Society Midyear
Topical Symposium "Health Physics Aspects of Nuclear
Facility Siting" Ramada Inn-Idaho Falls, Idaho Nov.
3-6, 1970
ebenso in: Radiological Health Data and Reports 12
(1971), 189-194
- 47 BAYER, A.
Die altersabhängigen Ingestions-Dosisfaktoren g_G und
 g_G' von Jod-131.
Bericht KFK 1582 (1972)
- 57 SCHWIBACH, J.
Strahlenschutzrichtwerte für die Genehmigung der Ab-

leitung radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen.

aus: 7. IRS Fachgespräch, Köln 8./9. November 1971
Bericht IRS-T-23 (1972)

⟨67⟩ KÖNIG, L.A.

Umweltaspekte von ^{129}J .

Bericht KFK 1543 (1972)

⟨77⟩ STIGALL, G.E., FOWLER, T.W., KRIEGER, H.L.

^{131}I Discharges from an Operating Boiling Water Reactor
Nuclear Power Station.

Health Physics 20 (1971), 593-599

⟨87⟩ KAHN, B., e.a.

Radiological Surveillance Studies at a Boiling Water
Nuclear Power Reactor.

U.S. Public Health Service, Bureau of Radiological
Health, Division of Environmental Radiation
BRH/DER 70-1 (1970)

⟨97⟩ MEEK, M.E., RIDER, B.F.

Summary of Fission Product Yields for U^{235} , U^{238} ,
 Pu^{239} and Pu^{241} at Thermal, Fission Spectrum and
14 MeV Neutron Energies.

General Electric, Pleasanton, California APED-5398-A
(1968)

⟨107⟩ SCHMITZ, G., SÜTTERLIN, L.

Erfahrungs- und Erwartungswerte für die Ableitung
radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen.

aus: 7. IRS-Fachgespräch, Köln 8./9. November 1971
Bericht IRS-T-23 (1972)

⟨117⟩ FLYNN, K.F., GLENDENIN, L.E.

Yields of Fission Products for Several Fissionable Nuclides at Various Incident Neutron Energies.

Report ANL 7749 (1970)

⟨127⟩ COMPER, W.

Berechnung der Dosisfaktoren radiologisch wichtiger Nuklide.

Bericht KFK 1615 (1972)

⟨137⟩ BAYER, A.

Die ortsabhängige spezifische Dosis d von J^{131} .

Bericht KFK 1661 (1972)

⟨147⟩ BAYER, A.

Der altersabhängige Inhalations-Dosisfaktor g von J^{131} .

Bericht KFK 1073 (1969)

⟨157⟩ UNITED STATES ATOMIC ENERGY COMMISSION

The Potential Radiological Implications of Nuclear Facilities in a Large Region in the U.S. in the Year 2000, "The Year 2000 Study".

WASH 1209 (1973) Report

⟨167⟩ BAYER, A.

Risk Considerations for the Release of ^{131}I for Reactor Siting.

Proc. Symposium on Principles and Standards of Reactor Safety, IAEA, Vienna (1973)

- ∠177 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 (1960)
- ∠187 KOHMAN, T.P.
Chronology of Nucleosynthesis and Extinct Natural Radioactivity.
Journal of Chemical Education 38 (1961), 73-81
- ∠197 KOHMAN, T.P., EDWARDS, R.R.
Iodine-129 as a Geochemical and Ecological Tracer.
USAEC Report No. NYO-3624-1 (1966)
- ∠207 UNITED STATES ATOMIC ENERGY COMMISSION
Reactor Physics Constants.
Report ANL-5800, Second Edition (1963)
- ∠217 EDWARDS, R.R.
Iodine-129: Its Occurrence in Nature and Its Utility as a Tracer.
Science 137 (1962), 851-853
- ∠227 PURKAYASTHA, B.C., MARTIN, G.R.
The Yields of ^{129}I in Natural and in Neutron-Induced Fission of Uranium.
Canadian Journal of Chemistry 34 (1956) 293-300
- ∠237 WETHERILL, G.W.
Spontaneous Fission Yields from Uranium and Thorium.
Physical Review 92 (1953), 907-912

- ∕247 YOUNG, B.G., THODE, H.G.
Absolute Yields of the Xenon and Krypton Isotopes
in U²³⁸ Spontaneous Fission.
Canadian Journal of Physics 38 (1960) 1-9
- ∕257 DIETRICH, G., SCHWARZ, H., VOSS, A.
Uran, Vorräte und Bedarf, Analysen und Prognosen.
Bericht Jül-755-PA-RG (1971)
- ∕267 HECK, H.D.
Lexikon der Technik
Goverts, Frankfurt (1972)
- ∕277 KALININ, G.P.
Global Hydrology
Gidrometeorologicheskoe Izdatel'stvo, Leningrad (1968).
Übersetzt aus dem Russischen:
Israel Program for Scientific Translations,
Jerusalem (1971).
- ∕287 COTTRELL, W.B., SAVOLAINEN, A.W., (Ed's)
A Compilation of Current Practice in Analysis, Design,
Construction, Test and Operation.
Report ORNL-NSIC-5 (1965)
- ∕297 HEINZEL, V.
Unterlagen und Daten von neueren Leistungsreaktoren.
Unveröffentlichter Bericht (1970)
- ∕307 EIGENWILLIG, G.G.
Grundlagen für die Berechnung der Edelgas- und Jod-
freisetzung aus defekten Brennelementen eines SWR.
Bericht AEG-E3-2283 (1972)

- ∟31∟ DEUTSCHES ATOMFORUM
Betriebserfahrungen mit Kernkraftanlagen in der BRD,
Jahresbericht 1971 des ABE-Ausschusses im Arbeitskreis I
"Technik und Industrie".
Atom und Strom 18 (1972) 73-88
- ∟32∟ ENGEL, H.
Betriebserfahrungen mit Brennelementen und Aktivitäten
in SWR-Kernkraftwerken.
Atomwirtschaft 15 (1970) 523-527
- ∟33∟ AURAND, K., RUF, M., SCHIKARSKI, W., SCHWIBACH, J.
Environmental Exposure due to Radionuclides in Gaseous
and Liquid Effluents from Nuclear Power Plants in the
Federal Republic of Germany.
Fourth United Nations International Conference on the
Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva (1971)
P.399 Vol.11
- ∟34∟ LOGSDON, J.E.
Radioactive Waste Discharges to the Environment from
Nuclear Power Facilities.
Radiation Data and Reports 13 (1972) 117-129
- ∟35∟ KAHN, B., KRIEGER, H.L., KOLDE, H.E.
Radionuclide Release at a PWR Nuclear Power Station.
Trans. Am. Nuclear Society 14, 1 (1971) 326-327
- ∟36∟ HEITMANN, H.G.
Maßnahmen zur Begrenzung von Ableitungen aus der Sicht
der Industrie.
aus: 7. IRS-Fachgespräch, Köln 8./9. November 1971
Bericht IRS-T-23 (1972)

- ∕37∕ KRAFTWERK UNION
864 MWe-Kernkraftwerksblock mit Siedewasserreaktor im
Kernkraftwerk Nord (Philippsburg)
Sicherheitsbericht, Februar 1970 (unveröffentlicht)
- ∕38∕ BÖDEGE, R., EICKELPASCH, N., GRAU, A., STEPHAN, W.
Activity Release and Control at the Nuclear Power
Stations at Kahl, Gundremmingen, Lingen and Obrigheim.
Fourth United Nations International Conference on the
Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva (1971)
P.396, Vol.11
- ∕39∕ BRAUN, W., TRAUBE, K.
Safety of Light-Water Reactors Designed in the Federal
Republic of Germany.
Fourth United Nations International Conference on the
Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva (1971)
P.365, Vol.3
- ∕40∕ WECKESSER, A., EICKELPASCH, N.
Construction and Operating Experience of LWR's in
Germany.
Trans. Am. Nuclear Society 15, 2 (1972) 842-843
- ∕41∕ HERMANN, G.
Abgabe radioaktiver Stoffe bei Normalbetrieb aus
Leichtwasserreaktoren in der BRD.
Bericht IRS-W-1 (1972)
- ∕42∕ BARRY, P.J., MARKO, A.M.
Release of Radionuclides to the Environment from
CANDU-Type Reactors - A Summary of Canadian Ex-
perience.
Report AECL-4156 (1972)

- ∟43∟ MARKO, A.M., BARRY, P.J., WILSON, R., WONG, K.,
PERRON, P.O., WEEKS, J.L.
Nuclear Power and the Environment.
Fourth United Nations International Conference on the
Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva (1971)
P.160, Vol.11
- ∟44∟ RITZ, H.
Private Mitteilung (1973)
Kernkraftwerk-Betriebsgesellschaft Leopoldshafen
- ∟45∟ SMIDT, D.
Reaktortechnik, Band 2
G. Braun, Karlsruhe (1971)
- ∟46∟ KEMPEN, M.
Verzeichnis der Kernkraftwerke der Welt.
Atomwirtschaft 17 (1972), 512-517
- ∟47∟ DOUGALL, I.
The Management of Radioactive Wastes from Commercial
Nuclear Power Stations in the United Kingdom.
in: Management of Radioactive Wastes at Nuclear Power
Plants, IAEA Safety Series No.28, IAEA Vienna (1968) 95.
- ∟48∟ WORLD HEALTH ORGANIZATION
Public Health Implications of Radioactive Waste
Releases.
Fourth United Nations International Conference on
the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva (1971)
P.652, Vol.11

- ∕49∕ MATTICK, W., MÜLLER, H.W., KRÄMER, H., SCHULTEN, R.
Technical Status and Potential of the High-Temperature
Reactor.
Fourth United Nations International Conference on the
Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva (1971)
P.370, Vol.5
- ∕50∕ KONSORTIUM THTR
Sicherheitsbericht: 300 MWe THTR, Prototyp-Kernkraft-
werk (August 1969) (unveröffentlicht)
- ∕51∕ KONSORTIUM THTR
Sicherheitsbericht: 300 MWe THTR, Prototyp Kernkraft-
werk (2. Nachtrag vom 1.1.1971) (unveröffentlicht)
- ∕52∕ BONKA, H., BRÜSSERMANN, K.
Abschätzung der zukünftigen Umweltbelastung in der
BRD durch radioaktives Jod.
Reaktortagung Karlsruhe 10.-13.4.1973
- ∕53∕ SCHIKARSKI, W., WILD, H.
Zur Umweltbelastung durch ein natriumgekühltes Schnell-
brüter-Kraftwerk.
Reaktortagung Bonn 30.3.-2.4.1971
- ∕54∕ CASTLEMAN, A.W., Jr.
LMFBR Safety, I. Fission-Product Behaviour in Sodium.
Nuclear Safety 11 (1970), 379-390
- ∕55∕ EITZ, A.W., RAMDOHR, H., SCHÜLLER, W.
Die Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe.
Atomwirtschaft 15 (1970) 74-76

- ∕56∕ ROTH, B.F.
Probleme der Jod-Abtrennung aus dem Prozeßabgas von Wiederaufarbeitungsanlagen.
Bericht KFK 1025 (1969)
- ∕57∕ SCHÄFER, L., WOJTECH, B., KAISER, G., MERZ, E., SCKUHR, P.
Development of Reprocessing Methods for HTGR-Fuels.
Additional Paper to the Fourth United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva (1971)
Report AED-CONF-71-100-22 (1971)
- ∕58∕ BÖHNERT, R., KAISER, G.
Die Wirbelschichtverbrennung des Graphits von HTGR-Brennelementen.
Reaktortagung Hamburg 11.-14.4.1972
- ∕59∕ LOGSDON, J.E., HICKEY, J.W.N.
Radioactive Waste Discharges to the Environment from a Nuclear Fuel Reprocessing Plant.
Radiological Health Data and Reports 12 (1971) 305-312
- ∕60∕ KRAUSE, H.
Behandlung und Endlagerung radioaktiver Rückstände.
Atomwirtschaft 16 (1971) 461-467
- ∕61∕ ALDERHOUT, J.J., FRANKE, T., HUNZIGER, W.
The Population Dose as Criterion for an Environmental Monitoring Program.
Proc. Sem. Environmental Contamination by Radioactive Materials, IAEA, Vienna (1969)

∟62∟ JOSEPH, C.J., DETILLEUX, E., CENTENO, J., ESCHRICH, H.,
SCHNEIDER, E., van GEEL, J.

Operating Experience and Planned Improvement in the
Eurochemic Reprocessing Plant.

Fourth United Nations International Conference on the
Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva (1971)
P.028, Vol.8

∟63∟ SINCLAIR, E.E., LARSON, H.J., LEWIS, W.H., MOODY, L.S.,
OSBORN, K.R., RATHVON, H.C.

Existing and Projected Plants and Processes for Thermal
Reactor Fuel Recovery.

Fourth United Nations International Conference on the
Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva (1971)
P.065, Vol.8

∟64∟ RUSSEL, J.L., GALPIN, F.L.

A Review of Measured and Estimated Offsite Doses at
Fuel Reprocessing Plants.

Paper presented at the Symposium on the Management of
Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing, Paris
27. Nov.-1.Dec. 1972

∟65∟ SCHÜLLER, W., BAUMGÄRTNER, F., KRAUSE, H., DYROFF, H.

Start-up Experience with the Karlsruhe Reprocessing
Plant and Long-Range Fuel Reprocessing Development
Objectives in the Federal Republic of Germany.

Fourth United Nations International Conference on the
Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva (1971)
P.381, Vol.8

∟66∟ HUGHES, T.G., WARNER, B.F., CATLIN, J.R., DAVIDSON,
A.S., CORNS, H.

Development, Design and Operation of the Oxide Fuel
Reprocessing Plant at the Windscale Works of British

Nuclear Fuels Ltd.

Fourth United Nations International Conference on the
Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva (1971)

P.491, Vol.8

⟨677⟩ N.N.

Die Brennstoffkreislaufindustrie in der Europäischen
Gemeinschaft.

Atomwirtschaft 17 (1972) 172-174

⟨687⟩ OCHSENFELD, W.

Wiederaufarbeitung der Brennelemente schneller Brut-
reaktoren.

Atomwirtschaft 13 (1968) 422-425

⟨697⟩ WILHELM, J.

Private Mitteilung (1973)

Kernforschungszentrum Karlsruhe, ASS

⟨707⟩ Siting of Fuel Reprocessing Plants and Waste Management
Facilities.

Report ORNL-4451 (1970)

⟨717⟩ FERGUSON et al.

Annual Progress Report Chemical Technology Division.

Report ORNL-4272 (1968) 41

⟨727⟩ ROULIN, J.

Contamination par le Tritium à partir de l'atmosphère.

Seminaire sur la protection contre les dangers du
Tritium, le Vesinet, Avril 16-18, 1964

- ⟨73⟩ STEAD, F.W.
Distribution in Groundwater of Radionuclides from
Underground Nuclear Explosions.
Proc. of the Third Plowshare Symposium, Livermore,
1964, Report TID-7695 (1964), 127-138
- ⟨74⟩ HALLDEN, N.A., FISENNE, I.M., ONG, L.D.Y., HARLEY, J.H.
Radioactive Decay of Weapons Debris.
Fallout Program, Quarterly Summary Report Dec. 30, 1961
USAEC-HASL-117 (1961), 194-199
- ⟨75⟩ EISENBUD, M.
Environmental Radioactivity
McGraw-Hill, New York (1963)
- ⟨76⟩ GRATHWOHL, G.
Erzeugung und Freisetzung von Tritium durch Reaktoren
und Wiederaufbereitungsanlagen und die voraussichtliche
Belastung der Hydrosphäre bis zum Jahr 2000.
Bericht KFK-Extern 4/73-36
- ⟨77⟩ LÄNDERARBEITSGEMEINSCHAFT WASSER
Grundlagen für die Beurteilung der Wärmebelastung von
Gewässern.
Wiesbaden (1971)
- ⟨78⟩ HANDGE, P., SCHWARZER, W.
Probleme der Konzentrierung von Kernkraftwerken auf
engem Raum - Grundlagen für Belastungspläne.
7. IRS Fachgespräch, Köln 8./9. November 1971
Bericht IRS-T-23 (1972)

- ⟨79̄⟩ ZÜHLKE, P.
Europäische Zusammenarbeit bei der Wiederaufarbeitung
bestrahlter Kernbrennstoffe.
Atom und Strom 18 (1972) 128-131
- ⟨80̄⟩ EGGLETON, A.E.J., ATKINS, D.H., COUSINS, L.B.
Chemical and Physical Nature of Fallout I¹³¹ and
Carrier-Free I¹³¹ Released in Air - An Abstract
Health Physics 9 (1963) 1111
- ⟨81̄⟩ TUREKIAN, K.K.
The Oceans, Streams, and Atmosphere.
in: K.H. Wedepohl (Ed.)- Handbook of Geochemistry
Springer, Berlin-Heidelberg-New York (1969)
- ⟨82̄⟩ HANSON, W.C.
Iodine in the Environment.
Proc. First National Symposium on Radioecology
Rep. HW-SA-2271 (1961)
- ⟨83̄⟩ SCHEFFER, F., SCHACHTSCHABEL, P.
Lehrbuch der Bodenkunde.
F. Enke, Stuttgart (1966)
- ⟨84̄⟩ MENGEL, K.
Ernährung und Stoffwechsel der Pflanze.
G. Fischer, Stuttgart (1968)
- ⟨85̄⟩ TADMOR, J.
Consideration of Stable Iodine in the Environment
in the Evaluation of Maximum Permissible Concentrations
for Iodine-129.
Radiological Health Data and Reports 12 (1971), 611-614

- ∟86∟ MIYAKE, Y., TSUNOGAI, S.
Evaporation of Iodine from the Ocean.
Journal of Geophysical Research 68 (1963) 3989-3993
- ∟87∟ KELLER, R.
Gewässer und Wasserhaushalt des Festlands.
Haude & Spener, Berlin (1961)
- ∟88∟ JACOBS, D.G.
Sources of Tritium and its Behaviour upon Release
to the Environment.
Report TID-24635 (1968)
- ∟89∟ INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY
Inhalation Risks from Radioactive Contaminants
Technical Reports Series No. 142, IAEA Vienna, 1973
- ∟90∟ WILHELM, J.
Diskussionsbeitrag
7. IRS Fachgespräch, Köln 8./9. November 1971
Bericht IRS-T-23 (1972), 114
- ∟91∟ SCHÜTTELKOPF, H.
Private Mitteilung (1973)
Kernforschungszentrum Karlsruhe, ASS
- ∟92∟ MARTIN, J.A., 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