

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

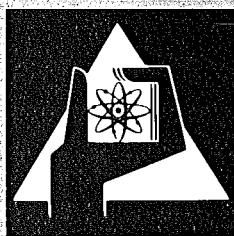
Juni 1977

KFK 2453

Abteilung für Angewandte Systemanalyse
Projekt Schneller Brüter

**Brennstoffmengen, Aktivitätsinventare und
radioaktive Freisetzungen bei der
Energieerzeugung auf der Basis von
Leichtwasserreaktoren und Schnellen
Natriumbrütern**

R. Papp



**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

KFK 2453

Abteilung für Angewandte Systemanalyse
Projekt Schneller Brüter

Brennstoffmengen, Aktivitätsinventare und radioaktive
Freisetzungen bei der Energieerzeugung auf der Basis
von Leichtwasserreaktoren und Schnellen Natriumbrütern

Reiner Papp

Zusammenfassung

Brennstoffmengen, Aktivitätsinventare und radioaktive Freisetzungen bei der Energieerzeugung auf der Basis von Leichtwasserreaktoren und Schnellen Natriumbrütern.

Es wird hier ein Überblick über die Massenströme und Nuklidinventare in den Brennstoffzyklen von Leichtwasser- und Brutreaktoren gegeben. Außerdem werden Angaben für typische Mengen an radioaktivem Abfall gemacht. Hauptsächlich erfolgt jedoch eine Gegenüberstellung der bei der Energieerzeugung auf der Basis dieser Reaktorsysteme freigesetzten radioaktiven Schadstoffe an die Umwelt. Trotz der den Daten anhaftenden Unsicherheit kann gesagt werden, daß der Schnelle Brutreaktor auf der Grundlage der hier behandelten umweltrelevanten Größen im Vergleich zum thermischen Reaktor keine eigene Klasse an Umweltbelastung darstellt.

Abstract

Fuel Mass Flow, Radioactive Inventory and Releases of Light Water Reactors and Sodium Cooled Fast Breeders.

A review is presented on the flow of masses and nuclides in the fuel cycles of Light Water Reactors and Fast Breeders respectively and typical amounts of radioactive wastes arising from energy generation are mentioned. The main concern of this report consists in a comparison of amounts of radioactivity released to the environment from the different fuel cycles. Although the uncertainty connected with data is relatively large, breeder reactors and their fuel cycle cannot be considered as representing a new category of environmental impact.

Inhaltsverzeichnis

	Seite
Einleitung	1
I. Brennstoffmengenflüsse im nuklearen Brennstoffzyklus	3
I.1 Der Leichtwasserreaktor	3
I.2 Massenbilanzen beim Schnellen Brüter	6
II. Nuklidinventare	10
II.1 Nuklidgehalt im Brennstoff von LWR und SBR	10
II.2 Radioaktive Abfälle	16
II.2.1 Hochaktive Abfälle	16
II.2.2 Radioaktive Abfälle aus dem gesamten Brennstoffzyklus	19
III. Freisetzung von Radioaktivität an die Umwelt	22
III.1 Gesamtdarstellung der Freisetzungen aus dem Kernkraftwerk	33
III.2 Freisetzungen bei der Wiederaufarbeitung	34
III.3 Freisetzungen bei der Brennstofffabrikation	40
III.3.1 Plutoniumfreisetzungen	40
III.3.2 Uranfreisetzungen	42
III.3.3 Americiumfreisetzungen	44
Anhang: Bemerkungen zum Hochtemperaturreaktor (HTR)	48
Literaturhinweise	50

Nach etwa dreißig Jahren friedlicher Nutzung der Kernenergie ist die Energiegewinnung auf der Basis des Leichtwasserreaktors (LWR) etablierte Technik und damit die Bereitstellung von Elektrizität zu verhältnismäßig niedrigen Kosten möglich geworden. Dies gilt nicht nur im Vergleich zur Elektrizitätserzeugung auf der Basis fossiler Primärenergieträger, wie Öl und Kohle, bei denen die Vorteile relativ niedriger Investitionskosten durch hohe Brennstoffkosten verloren gehen, sondern auch für fortschrittliche Reaktorsysteme, deren kompliziertes, technisches Konzept einen so hohen Kapitalbedarf zur Folge hat, daß die dadurch bedingten Stromerzeugungskosten eine Einführung dieser Reaktorsysteme nach marktwirtschaftlichen Gesichtspunkten - zumindest zum jetzigen Zeitpunkt - nicht erlauben.

Trotzdem wird schon heute auch von der Seite, deren Entscheidungen von marktwirtschaftlichen Überlegungen geprägt sind - nämlich den Elektrizitätsversorgungsunternehmen /1/ - die Forderung nach Reaktorsystemen mit verbesserter Brennstoffökonomie gestellt. Diese Forderung findet ihre Berechtigung darin, daß z.B. nach den Schätzungen der OECD die "wahrscheinlich sicheren" Uran-Reserven der westlichen Welt mit Gewinnungskosten bis 15 \$ pro lb U_3O_8 bis zum Jahr 1990 zu ca. 80% verbraucht sein werden. Diese relativ schmale Basis an gesicherten, billigen Uranreserven sowie Entscheidungen, wie etwa die der USAEC (der ehemaligen amerikanischen Atomenergiebehörde), die neuen Verträge für die Lieferung angereicherten Urans aufzuheben /2/, machen die Notwendigkeit deutlich, Schritte in Richtung auf Reaktorsysteme mit besserer Brennstoffverwertung, als dies beim LWR der Fall ist, zu unternehmen. Das bekannte Phänomen einer sich über Jahrzehnte erstreckenden Einführungsdauer neuer Energiesysteme auf dem Markt /3/ macht es darüber hinaus erforderlich, daß nicht nur von staatlicher Seite Mittel für die Forschung und Entwicklung auf dem Gebiet neuer Reaktorsysteme bereitgestellt werden, sondern auch die Privatwirtschaft deren Förderwürdigkeit erkennen und Entscheidungen zugunsten deren Markteinführung treffen muß.

Entscheidungen auf dem Gebiet von Reaktorsystemen, insbesondere dem der Schnellen Brutreaktoren (SBR), können nun nicht nur auf der Basis ökonomischer Kriterien gefällt werden. Das bedeutet, daß beim SBR nicht nur die im Vergleich zum LWR hohen Anlagekosten der auf den Bruteigenschaften

beruhenden Erzunabhängigkeit gegenübergestellt werden darf, sondern es muß dieser Vergleich auf die Betrachtung umweltrelevanter Größen ausgedehnt werden. Sicherlich ist die Frage nach der Wichtung der verschiedenen Einflußgrößen, die diese Entscheidung bestimmen, nicht eindeutig beantwortbar, sondern sie unterliegt Wertvorstellungen. Tatsache ist jedoch - und kann geradezu als Gemeinplatz gelten - daß die Einschätzung des Umweltaspekts in den letzten Jahren eine starke Wandlung erfahren hat.

In erster Näherung kann ein Vergleich der Umweltbeeinflussung verschiedener Reaktorsysteme durch die Gegenüberstellung von Inventaren an Radioaktivität in den wichtigsten Anlagen des nuklearen Brennstoffzyklus erfolgen. Über die beschränkte Aussagekraft von Inventarvergleichen auf der Basis einer bloßen Gegenüberstellung von Aktivitäten (in Curie pro Einheit erzeugter Energie) besteht kein Zweifel, doch lassen sich mit den durch maximal zulässige Konzentrationen an Radionukliden in Luft bzw. Wasser (MZK) gewichteten Aktivitäten - den sogenannten Toxizitäts- oder Hazard Indices - vernünftiger Vergleiche anstellen /4, 5/.

Hier sollen nun sowohl die an verschiedenen Stellen des Brennstoffzyklus von Leichtwasserreaktor bzw. Schnellem Brüter auftretenden Aktivitätsinventare einander gegenübergestellt werden, als auch ein Vergleich der bei Normalbetrieb der Brennstoffzyklusanlagen an die Umwelt freigesetzten Aktivitätsmengen erfolgen. Vollständig kann dieser Vergleich natürlich nur dann sein, wenn die aus der Aktivitätsfreisetzung resultierende Dosisbelastung der Bevölkerung ermittelt, eine Wichtung der Dosen der verschiedenen Organe vorgenommen, oder letztlich eine Ermittlung der biologischen Effekte durchgeführt werden würde. Jedoch können die in diesem Bericht erwähnten Freisetzungsmengen, die auf die Einheit an erzeugter elektrischer Energie bezogen sind, unmittelbar als Basis für die Berechnung von Strahlungsdosen herangezogen werden.

I. Brennstoffmengenflüsse im nuklearen Brennstoffzyklus

Die Massenbilanzen für den Leichtwasserreaktor sollen hier nur in kurzer Form dargestellt werden. Eine eingehendere Darstellung der Verhältnisse soll beim Schnellen Brüter durchgeführt werden, indem auch die in Brennstofffabrikations- und Wiederaufarbeitungsanlagen durchgesetzten Mengen, einschließlich der dort anfallenden Verluste, näher betrachtet werden.

I.1 Der Leichtwasserreaktor

Der Betrachtung wird ein LWR zugrunde gelegt, dessen für die Ermittlung der Aktivitätsinventare verwendeten Eingangsdaten in der folgenden Tabelle zusammengestellt sind:

Entladeabbrand:	34000 MWd/t _{SM} ⁺
spezif. Brennstoffbelastung:	30 MW/t
Standzeit (Vollast-Tage):	1150
Anlagenwirkungsgrad:	33 %
Lastfaktor:	0,7

Daraus lassen sich folgende Mengen an jährlicher Ladung pro 1000 MW_e-Reaktor ermitteln:

entladen:	22,8 t/GW _e ·a
beladen:	23,5 t/GW _e ·a

Die nachzuladende Menge an Schwermetall ergibt sich aus der entladenen Menge zuzüglich der durch Spaltung verbrauchten Schwermetallmenge (das sind 1,01 kg (U+Pu) pro GW_{th}·d).

Was den Plutonium rezyklierenden Leichtwasserreaktor (LWR_{rez.}) anbelangt, wird hier der Fall betrachtet, daß Plutonium im Ausmaß der Eigenerzeugung

+) t_{SM} : Tonne Schwermetall

des LWR rückgeführt wird; geht man von einem LWR mit 3,3% Anfangsanreicherung an U-235 aus, so bedeutet dies, daß knapp 20% dieses U-235 durch selbsterzeugtes, spaltbares Plutonium (Pu_{fiss}) ersetzt werden kann. Im übrigen gelten für den LWR_{rez} dieselben Abbrandwerte und spezifischen Brennstoffbelastungen wie oben angeführt.

An dieser Stelle sollen einige Werte genannt werden, die für die Spaltstoffbilanz im Leichtwasserreaktor als typisch angesehen werden können: Entsprechend der oben genannten Anfangsanreicherung von 3,3% und einem Restgehalt von 0,8% U-235, werden ~ 25 kg/t ursprünglichen Spaltstoffs verbraucht. Gleichzeitig wird durch Neutroneneinfänge im reichlich vorhandenen U-238 Plutonium aufgebaut und sofort wieder teilweise verbraucht; die verbrauchte Menge an Pu_{fiss} beläuft sich auf ca. 16 kg pro $t_{SM} / 6/$. In der Literatur werden folgende Anteile der verschiedenen Isotope an der Gesamtzahl der Spaltungen und damit der Energiegewinnung im LWR genannt:

U-235 : 65 %; Pu : 35 % /7/
bzw.

U-235 : 55 %; U-238 : 4 %; Pu-239 : 41 % /8/.

Durch die Spaltung von Plutonium wird somit mehr als 1/3 der Energie des LWR geliefert. Zum Vergleich seien hier noch die Zahlen von LWR_{rez} und SBR angegeben:

LWR_{rez} Uran : 25 % ; Plutonium : 75 % /7/

SBR U-238 : 13 %; Pu_{fiss} : 87 % /9/.

Zur weiteren Verdeutlichung der Pu-Verhältnisse beim LWR seien folgende mit dem ORIGEN-Rechenprogramm /10/ ermittelten Pu-Mengen für den Uran-Gleichgewichtsfall und den LWR_{rez} (nach 2 Zyklen) einander gegenübergestellt. Diese Werte beziehen sich auf eine Tonne Schwermetall und einen Zeitpunkt von 150 Tagen nach Entladung aus dem Reaktor:

		Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242	Pu _{gesamt}
LWR	kg	0,16	5,22	2,38	1,19	0,52	9,47
	Ci	2800	320	540	118000	2	3662(α)
LWR _{rez}	kg	0,36	7,34	3,83	2,50	1,50	15,53
	Ci	6100	450	870	250000	6	7426(α)

Tab. I.1: Pu-Gehalt von LWR- und LWR_{rez}-Brennstoff pro t_{SM}

Diese Werte stimmen gut mit den in der Literatur genannten überein /11/, /8/, /12/. In Tabelle I.2 ist die Zusammensetzung des Plutoniums in Gewichtsprozenten für die in Tabelle I.1 genannten Fälle angegeben, erweitert um die Werte für Pu-236 und die Zusammensetzung des Pu nach mehrmaligem Rezyklieren /13/, /14/:

	Pu-236	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242
LWR	7×10^{-6}	1,6	55	25	12,6	5,5
LWR _{rez}	6×10^{-6}	2,3	47	25	15	10
mehrmal. Rezykl.	6×10^{-6}	3,6	44	26	15	12

Tab. I.2: Pu-Zusammensetzung (Gew. %) von Leichtwasserreaktor-Brennstoff

Tabelle I.2 zeigt die typischen Veränderungen des Plutoniumvektors durch wiederholtes Rezyklieren des Plutoniums an: während Pu-236 und Pu-240 etwa konstant bleiben, fällt der Anteil des Pu-239, wogegen der des Pu-238, Pu-241 und insbesondere Pu-242 steigt. Der Anteil des spaltbaren Pu-(239, 241) geht auf einen Wert unter 60% zurück.

Die auf die Einheit der elektrischen Energie bezogenen Mengen anfallenden Plutoniums sehen bei den Leichtwasserreaktoren wie folgt aus:

$$0,216 \text{ t Pu/GW}_e \cdot \text{a (LWR)}$$

bzw.

$$0,354 \text{ t Pu/GW}_e \cdot \text{a (LWR}_{\text{rez}}).$$

Zu Vergleichszwecken sollen an dieser Stelle Pu-Zusammensetzungen beim SBR wie sie in der Literatur anzutreffen sind, aufgeführt werden /8, 12, 15/, um so den unmittelbaren Vergleich mit den in den Tabellen I.1 und I.2 genannten Leichtwasserreaktorwerten zu erleichtern.

	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242	Pu _{gesamt}
kg	0,75	58,7	19,4	5,2	2,6	86,7
Gew. %	0,9	68	22	6	3	100
Ci	13000	3600	4400	520000	11	21011(α)

Tab. I.3: Pu-Gehalt von Schnellbrüterbrennstoff pro t_{SM} 150 Tage nach Entladung aus dem Reaktor (Core und Blanketmaterial gemischt).

Im Vergleich zu LWR und LWR_{rez} weist Schnellbrüter-Plutonium somit den höchsten Gehalt an spaltbaren Isotopen auf; insbesondere in den Blankets ergibt sich ein hoher Spaltstoffgehalt: 95-99% Pu-239 und nur etwa 1-5% Pu-240 /13/, /15/.

I.2 Massenbilanzen beim Schnellen Brüter

Die vollständige Massenbilanz im Brennstoffzyklus eines Schnellen Brütters soll am Beispiel des projektierten SNR-2 demonstriert werden. Der Berechnung liegen Daten des Jahres 1974 zugrunde; obwohl sich seit diesem Zeit-

punkt die Kernauslegungsdaten für diesen Großbrüter in mancherlei Hinsicht geändert haben - beispielsweise herrscht die Tendenz vor, sich von der ursprünglich beabsichtigten Leistung von 2000 MW_e auf die jetzt bei LWR übliche von 1300 MW_e zurückzuziehen -, wird diese genannte Auslegung hier als Rechengrundlage beibehalten. Wichtige Kenngrößen, die Voraussetzung für die Berechnung der Massenflüsse sind, werden in Tabelle I.4 zusammengestellt:

	Core	axiales Blanket	radiales Blanket
Abbrand (MWd/t)	87000	6200	9500
Inventare (t _{SM})	34,5	28,9	24,2
Standzeit(Vollast-T.)	666	666	1333
Brutrate	0,82	0,26	0,13
Pu-Endgehalt (%)	12	2,7	3,3

Tab. I.4: SNR-2 Kernauslegungsdaten (Stand 1974)

Die Ergebnisse der Massenbilanzierung sind in Abb. I. graphisch dargestellt. Die Art der Darstellung lehnt sich an die in /15/ gewählte an. Als Pu- und U-Verluste im Brennstoffzyklus werden 1,5% sowohl bei der Brennstoffwiederaufarbeitung als auch bei der Brennelementfertigung angenommen. Als wichtigste Größen des Massenflusses können die Brennstoffbewegungen im Reaktor angesehen werden; die auf 1 Jahr und 2 GW_e bezogenen Mengen sehen wie folgt aus:

in den Reaktor: 28,93 t gesamt (1,64 t Pu; 27,29 t U)
 aus dem Reaktor: 27,65 t gesamt (2,04 t Pu; 25,61 t U).

Die auf die Einheit an erzeugter elektrischer Energie bezogene Ladung Brennstoffs beträgt somit ca. 14 t (U+Pu) / GW_e-a. Dieser relativ niedrige Wert kann durch die hohen Abbrände, wie sie in Tab. I.4 genannt sind, erklärt werden. Die in den nächsten Kapiteln behandelten nuklidspezifischen

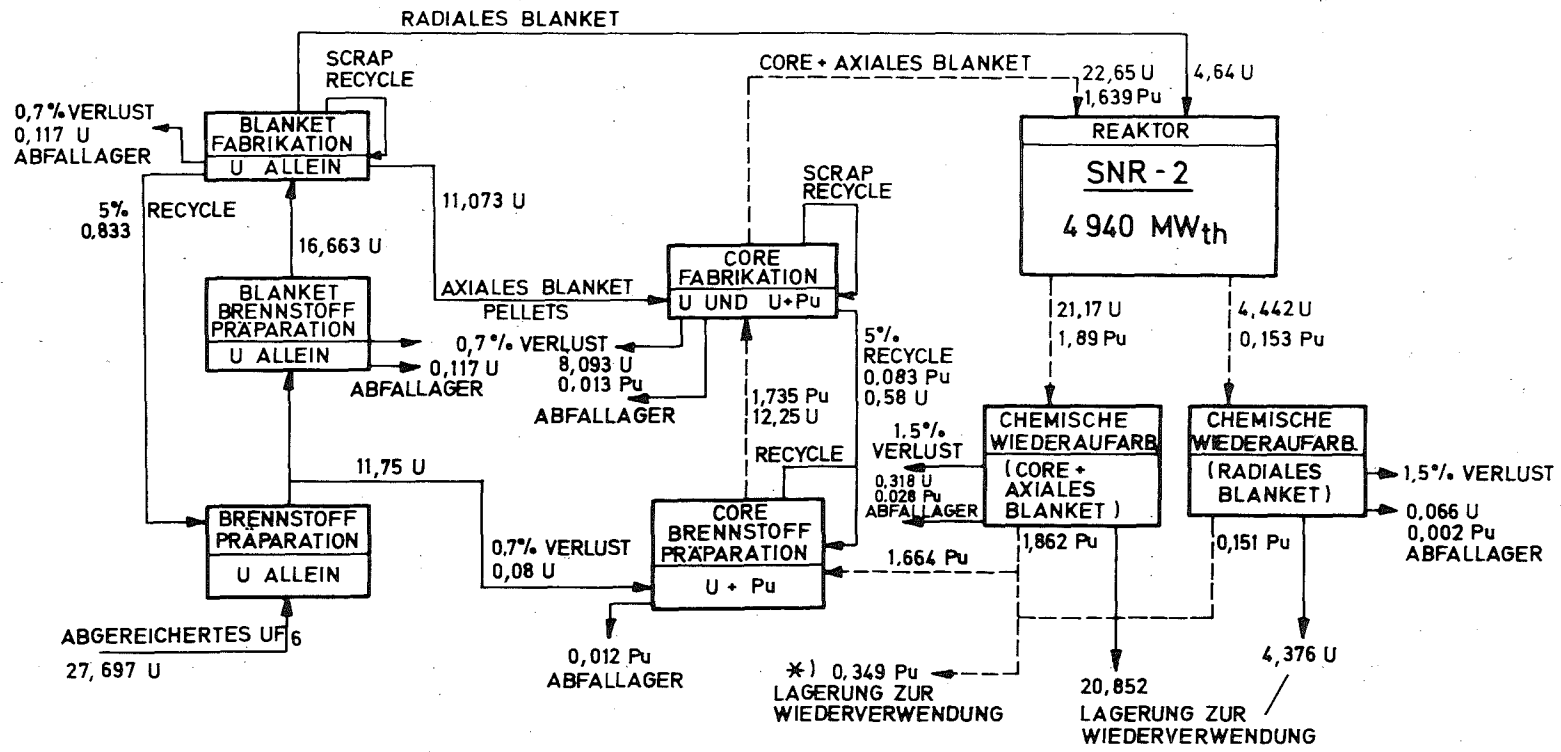


ABB. 1 MASSENFLUSS (TONNEN / JAHR) EINES 2000 MW_e - BRÜTERS

Angaben für Brüter beruhen auf etwas höheren Jahresdurchsätzen, da für die mit ORIGEN durchgeführte Berechnung des Aufbaus und Zerfalls von Isotopen im Brüterbrennstoff /16/ neuere Angaben über den SNR-2 verwendet wurden, die als wesentliches Datum ein wenig niedrigeren Abbrand, als oben erwähnt, auswiesen.

II. Nuklidinventare

II.1 Nuklidgehalt im Brennstoff von Leichtwasserreaktor und Brüter.

Für die Ermittlung der Isotopenzusammensetzung von Brennstoff und hochaktivem Abfall werden für den Leichtwasserreaktor die Spezifikationen aus Kap. I.1 zugrunde gelegt. Insbesondere heißt dies, daß Reaktorbrennstoff mit 30 MW/t spezifischer Brennstoffbelastung und 34000 MWd/t Entladeabbrand sowie eine jährlich zu ladende Menge von ca. 23 t Schwermetall pro 1000 MW_e betrachtet wird.

Dagegen sollen beim Brüter Kernauslegungsdaten verwendet werden, die von den in Kap. I.2 abweichen /16/. In Tabelle II.1 sind einige Kenngrößen dieses SBR zusammengestellt:

	Core	axiales Blanket	radiales Blanket
Therm. Leistung (MW _{th})	4900	138	98
Abbrand (MWd/t)	77200	3290	4670
Leistungsdichte (MW/t)	94,3	4,02	2,85
Standzeit (Vollasttage)	819	819	1638

Tab. II.1: Kernauslegung des Referenzbrüters.

Aus Tabelle II.1 kann ein über die verschiedenen Zonen gemittelter Entladeabbrand von ca. 40800 MWd/t bestimmt werden. Daraus ergeben sich unter Berücksichtigung eines thermischen Wirkungsgrades von 40% und eines Lastfaktors von 70% bzw. einer pro GW_e·d durch Spaltung verbrauchten Schwermetallmenge von 1,01 kg und einer thermischen Leistung von 5,136 GW_{th} folgende Mengen an jährlicher Ladung Schwermetalls:

entladen:	15,7 t/GW _e · a
beladen:	16,3 t/GW _e · a

Für LWR und SBR sollen nun in den Tabellen II.2 und II.3 die mit ORIGEN ermittelten Isotopeninventare pro Tonne Schwermetall einander gegenübergestellt werden. Für den LWR_{rez} werden nur jene Nuklide in die Tabelle aufgenommen, deren Konzentration sich deutlich von der in LWR-Brennstoff unterscheidet (Actiniden). Außerdem enthalten diese Tabellen nur die Summen der Spaltprodukt- und Actinidenaktivitäten nebst einiger radiologisch bedeutsamer Nuklide wie Strontium, Cäsium und Jod. Beim SBR sind die angegebenen Werte die über Core und Blanketzone gebildeten Mittelwerte.

Hinzuweisen ist auf die beim Vergleich der Tabellen II.2 und II.3 sichtbar werdende höchste α -Aktivität von LWR_{rez}-Brennstoff; diese beruht auf der Curium-Aktivität, die im thermischen Neutronenspektrum bei Zuladung von Plutonium besonders leicht aufgebaut wird.

LWR:

Kühlzeit(Tage) Isotope	Entladung	150	200	365
Sr-90(β)	$7,91 \times 10^4$	$7,83 \times 10^4$	$7,80 \times 10^4$	$7,72 \times 10^4$
Cs-137(γ)	$1,11 \times 10^5$	$1,10 \times 10^5$	$1,09 \times 10^5$	$1,08 \times 10^5$
I-129	$3,83 \times 10^{-2}$	$3,86 \times 10^{-2}$	$3,86 \times 10^{-2}$	$3,86 \times 10^{-2}$
\sum Sp.Pr.	$1,35 \times 10^8$	$4,38 \times 10^6$	$3,50 \times 10^6$	$2,24 \times 10^6$
Pu(α)	$3,74 \times 10^3$	$3,80 \times 10^3$	$3,80 \times 10^3$	$3,83 \times 10^3$
Am(α)	$1,11 \times 10^2$	$1,82 \times 10^2$	$2,05 \times 10^2$	$2,80 \times 10^2$
Cm(α)	$3,90 \times 10^4$	$2,20 \times 10^4$	$1,80 \times 10^4$	$1,04 \times 10^4$
$\sum \alpha$	$4,29 \times 10^4$	$2,60 \times 10^4$	$2,21 \times 10^4$	$1,46 \times 10^4$
Np-239	$1,83 \times 10^7$	$2,02 \times 10^1$	$2,02 \times 10^1$	$2,02 \times 10^1$
Pu-241	$1,20 \times 10^5$	$1,18 \times 10^5$	$1,15 \times 10^5$	$1,10 \times 10^5$
$\sum \beta$	$1,93 \times 10^7$	$1,18 \times 10^5$	$1,15 \times 10^5$	$1,10 \times 10^5$
\sum Actiniden	$1,94 \times 10^7$	$1,44 \times 10^5$	$1,37 \times 10^5$	$1,25 \times 10^5$
\sum Actin.+Spaltpr.	$1,54 \times 10^8$	$4,52 \times 10^6$	$3,64 \times 10^6$	$2,36 \times 10^6$

LWR_{rez}:

Kühlzeit	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu (α)	Pu (β)	Am-241	Am-243	Cm-242	Cm-244	$\sum \alpha$ ($\times 10^5$)
150	$6,10 \times 10^3$	$4,50 \times 10^2$	$8,70 \times 10^2$	$7,42 \times 10^3$	$2,50 \times 10^5$	$5,30 \times 10^2$	$2,10 \times 10^2$	$1,44 \times 10^5$	$5,10 \times 10^4$	2,03
200	$6,24 \times 10^3$	$4,50 \times 10^2$	$8,70 \times 10^2$	$7,56 \times 10^3$	$2,48 \times 10^5$	$5,98 \times 10^2$	$2,10 \times 10^2$	$1,16 \times 10^5$	$5,07 \times 10^4$	1,75
365	$6,51 \times 10^3$	$4,50 \times 10^2$	$8,70 \times 10^2$	$7,83 \times 10^3$	$2,43 \times 10^5$	$7,69 \times 10^2$	$2,10 \times 10^2$	$5,73 \times 10^4$	$4,99 \times 10^4$	1,16

Tab. II.2: Aktivitätsinventar entladenen Brennstoffs (Ci/t_{SM})

S. B. R. :

Kühlzeit (Tage)		Entladung	150	200	365
Spaltprodukte	Sr-90	$5,27 \times 10^4$	$5,22 \times 10^4$	$5,20 \times 10^4$	$5,15 \times 10^4$
	Cs-137	$1,41 \times 10^5$	$1,40 \times 10^5$	$1,40 \times 10^5$	$1,38 \times 10^5$
	I-129	$4,31 \times 10^{-2}$	$4,35 \times 10^{-2}$	$4,35 \times 10^{-2}$	$4,35 \times 10^{-2}$
	∑ Sp.Pr.	$1,96 \times 10^8$	$7,02 \times 10^6$	$5,13 \times 10^6$	$3,50 \times 10^6$
Actiniden	Pu (α)	$1,82 \times 10^4$	$1,84 \times 10^4$	$1,84 \times 10^4$	$1,85 \times 10^4$
	Am (α)	$2,36 \times 10^3$	$2,74 \times 10^3$	$2,87 \times 10^3$	$3,28 \times 10^3$
	Cm (α)	$1,01 \times 10^5$	$5,60 \times 10^4$	$4,03 \times 10^4$	$2,36 \times 10^4$
	∑ α	$1,22 \times 10^5$	$7,72 \times 10^4$	$6,16 \times 10^4$	$4,85 \times 10^4$
	Np-239	$3,91 \times 10^7$	$6,35 \times 10^1$	$6,35 \times 10^1$	$6,35 \times 10^1$
	Pu-241	$5,85 \times 10^5$	$5,75 \times 10^5$	$5,69 \times 10^5$	$5,60 \times 10^5$
	∑ β	$8,00 \times 10^7$	$5,80 \times 10^5$	$5,74 \times 10^5$	$5,60 \times 10^5$
∑ Actiniden	$8,01 \times 10^7$	$6,57 \times 10^5$	$6,36 \times 10^5$	$6,09 \times 10^5$	
∑ Actin.+Sp.Pr.		$2,76 \times 10^8$	$7,68 \times 10^6$	$5,77 \times 10^6$	$4,11 \times 10^6$

Tab. II.3: Aktivitätsinventar entladenen Brennstoff (Ci/t SM)

Diese Aktivitätsgehalte pro Tonne sind eine zweckmäßige Basis für die weitere Berechnung von Inventaren, wie etwa pro Einheit an erzeugter Energie oder pro Wiederaufarbeitungsanlage (WA). Für die Dauer der Kühlzeit des abgebrannten Brennstoffs nach Entnahme aus dem Reaktor, aufgeteilt in Lagerzeit am Reaktorstandort, Transport zur WA und Lagerung in Kühlbecken am Standort der WA, existiert keine einheitliche Regelung. Diese Zeitdauer ergibt sich als Kompromiß einer aus wirtschaftlichen Gründen erstrebenswert kurzen Excorezeit des Brennstoffs (vor allem für

Brüter von Bedeutung, um die sog. Verdopplungszeit klein zu halten) und der aus Strahlenschutz- und Zerfallswärmegründen langen Kühlzeit. Kühlzeiten bis zu einem Jahr sind für hochabgebrannten Brennstoff wegen der zuletzt genannten Gründe nicht unrealistisch. Hier wird jedoch eine Kühlzeit bis zum Zeitpunkt der WA von 200 Tagen angenommen, während der Transport der abgebrannten Brennelemente vom Reaktor zur WA nach 150 Tagen stattfinden soll /17/.

Somit läßt sich der auf die erzeugte Mengen von $1000 \text{ MW}_e \cdot \text{a}^*)$ an elektrischer Energie bezogene Aktivitätsgehalt des Brennstoffs unter Berücksichtigung der Abkühlzeit und der chemischen Abtrennung aller Spaltprodukte und aller Actiniden (inklusive 1,5 % U/Pu) vom Brennstoff in der Wiederaufarbeitungsanlage wie in Tab. II.4 und Tab. II.5 darstellen. Zu diesem Zweck müssen die in den Tabellen II.2 und II.3 genannten Inventare pro Tonne mit den jährlichen Ladungen von etwa $\sim 24 \text{ t}$ beim LWR, bzw. $\sim 16 \text{ t}$ beim SBR multipliziert werden.

Tab. II.4: Aktivitätsinventar entladenen Brennstoffs ($\text{Ci}/\text{GW}_e \cdot \text{a}$)

L W R :

Tag nach Entladung Isotope	150 (Transport)	200 (Wiederaufarbeitung)		365
		vor Abtrennung	nach Abtrennung	
\sum Spalt.Prod.	$1,03 \times 10^8$	$8,23 \times 10^7$	-	-
Pu (α)	$9,00 \times 10^4$	$9,00 \times 10^4$	$8,86 \times 10^4$	$8,86 \times 10^4$
Am (α)	$4,28 \times 10^3$	$4,82 \times 10^3$	-	$1,80 \times 10^3$
Cm (α)	$5,17 \times 10^5$	$4,23 \times 10^5$	-	-
$\sum \alpha$	$6,11 \times 10^5$	$5,19 \times 10^5$	$8,86 \times 10^4$	$9,05 \times 10^4$
Pu (β)	$2,49 \times 10^6$	$2,47 \times 10^6$	$2,43 \times 10^6$	$2,38 \times 10^6$
\sum Actiniden	$3,10 \times 10^6$	$2,98 \times 10^6$	$2,52 \times 10^6$	$2,47 \times 10^6$
\sum Sp.Pr.+Actiniden	$1,06 \times 10^8$	$8,53 \times 10^7$	$2,52 \times 10^6$	$2,47 \times 10^6$

*) in der Zeitdauer 1 Jahr ist der Lastfaktor 0,7 berücksichtigt

LWR_{rez}:
=====

Tage nach Entladung Isotope	150	200		365
		vor Abtrenn.	nach Abtrenn.	
Pu (α)	1,74x10 ⁵	1,78x10 ⁵	1,75x10 ⁵	1,74x10 ⁵
Am (α)	1,74x10 ⁴	1,90x10 ⁴	-	4,10x10 ³
Cm (α)	4,58x10 ⁶	3,92x10 ⁶	-	-
∑ α	4,77x10 ⁶	4,11x10 ⁶	1,75x10 ⁵	1,78x10 ⁵
Pu (β)	5,88x10 ⁶	5,83x10 ⁶	5,74x10 ⁶	5,62x10 ⁶
∑ Actiniden	1,06x10 ⁷	9,94x10 ⁶	5,92x10 ⁶	5,80x10 ⁶

1,5 % Pu gehen bei der WA zum hochaktiven Abfall

Tab. II. 5: Aktivitätsinventar entladenen SBR-Brennstoffs (Ci/GW_e a)

Tage nach Entladung Isotope	150	200		365
		vor Abtrenn.	nach Abtrenn.	
∑ Spalt.Prod.	1,14x10 ⁸	8,36x10 ⁷	-	-
Pu (α)	3,00x10 ⁵	3,00x10 ⁵	2,95x10 ⁵	2,94x10 ⁵
Am (α)	4,45x10 ⁴	4,68x10 ⁴	-	6,50x10 ³
Cm (α)	9,60x10 ⁵	6,57x10 ⁵	-	-
∑ α	1,30x10 ⁶	1,00x10 ⁶	2,95x10 ⁵	3,01x10 ⁵
Pu (β)	9,37x10 ⁶	9,27x10 ⁶	9,14x10 ⁶	8,95x10 ⁶
∑ Actiniden	1,07x10 ⁷	1,03x10 ⁷	9,44x10 ⁶	9,25x10 ⁶
∑ Spalt.Pro.+Actiniden	1,25x10 ⁸	9,39x10 ⁷	9,44x10 ⁶	9,25x10 ⁶

II. 2 Radioaktive Abfälle

II. 2.1 Hochaktive Abfälle

Beim Vergleich unterschiedlicher Reaktorsysteme, wie etwa von Leichtwasser- und Brutreaktoren, kann man nicht auf die Gegenüberstellung des radioaktiven Abfalls, der bei der Energiegewinnung entsteht, verzichten. Neben den Mengen an Abfällen - wie sie im nächsten Kapitel angegeben werden - eignet sich gerade der hochaktive Abfall (high active waste, HAW) in Hinblick auf seinen Aktivitätsgehalt zur Charakterisierung von Reaktorsystemen. Dabei ist die bloße Angabe von Aktivitäten in diesem beim Abtrennprozeß in der WA entstehenden Abfall keine sehr gute Vergleichsbasis. Über diese Darstellungsart hinaus, nämlich Aktivitäten in Abhängigkeit von Kühlzeiten anzugeben, kann man mit Hilfe einer Wichtung durch maximal zulässige Konzentrationen (MZK) zu einer verbesserten Darstellungsart kommen. Die Wichtung der Aktivitäten der einzelnen Isotope mit Hilfe der in Luft bzw. in Wasser maximal zulässigen Konzentrationen - MZK_{Luft} bzw. MZK_{Wasser} - führt unter der Voraussetzung, daß im HAW alle Spaltprodukte und Actiniden, nicht jedoch 98,5 % des U/Pu (d.h. 1,5 % des Urans und Plutoniums werden als zum HAW gehend angenommen) enthalten sind, zu einem von der Zeit abhängigen Verlauf, wie er in Abb. 2 dargestellt ist. Dabei ist darauf hinzuweisen, daß die Kurvenverläufe im Falle des Mediums Luft zu einem überragenden Teil durch die Actiniden bestimmt werden. Für das Wasser - und der Toxizitätsindex dafür ist vor allem vom Standpunkt der HAW Endlagerung und der Freisetzung durch Auslaugung bedeutsam - wird der Verlauf während der ersten ~ 700 Jahre durch die Spaltprodukte und dann erst durch die Actiniden bestimmt. Die eingezeichneten Kurven sind Summen aus Actiniden und Spaltprodukten. Diese Art der Darstellung geht auf Gera und Jacobs /18/ zurück; im Laufe der Jahre wurden viele unterschiedliche Bezeichnungen für diesen "Index" gesucht - wie etwa Hazard Index, Gefährdungspotential oder Toxizitätsindex - wobei als Ursache für diese Suche weniger eine Verbesserung der Methodik als vielmehr eine gewisse Unsicherheit über die sich einstellende Reaktion der Öffentlichkeit genannt werden muß. Vielleicht hätte dieser

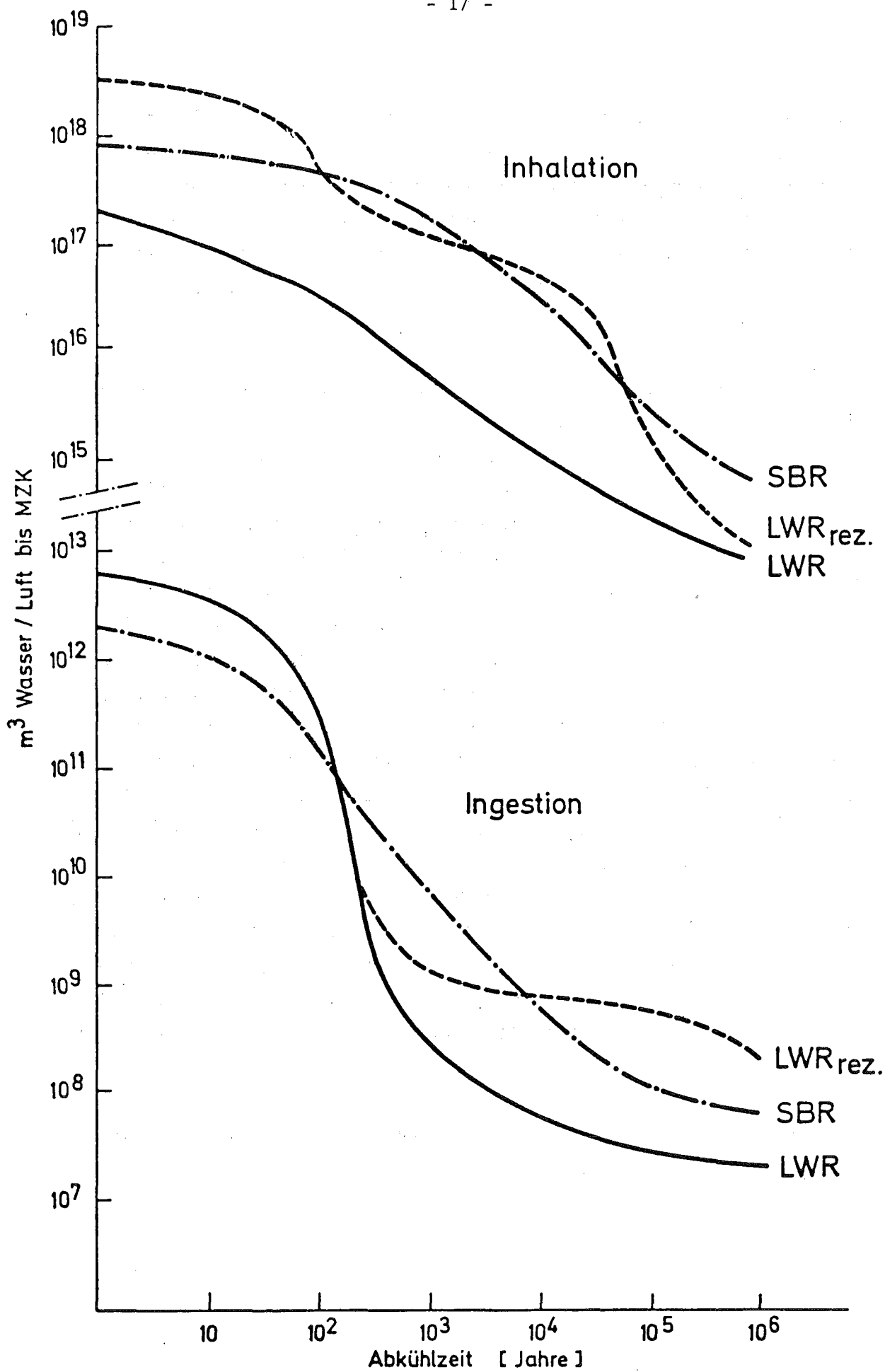


Abb. 2 Toxizitätsindex für HAW pro GW_e · a

Aufwand vermieden werden können, wenn bei der jeweiligen Zitierung des Index deutlich unterstrichen worden wäre, daß es sich dabei nur um eine Rechengröße handele, die keinerlei Schlüsse auf etwaige (End-) Lagerformen zuließe. Das heißt, daß die Dimension dieses Index (m^3 Wasser bzw. m^3 Luft) natürlich den Schluß nicht zulassen kann, daß eines dieser Medien als Lagerungs- oder Verdünnungsmedium herangezogen werden würde.

Dieser Index sollte in keinem Falle in Hinblick auf seine Aussagekraft überinterpretiert werden; dieser Versuchung erliegen jedoch auch viele Autoren, beispielsweise dann, wenn sie in ein Schaubild, das den Verlauf dieses Index in Abhängigkeit von der Zeit angibt, die entsprechende Linie für die Menge Uranerz eintragen, aus der der Brennstoff und daraus die betrachtete Abfallmenge beim Spaltungs- und Wiederaufarbeitungsprozeß entsteht: der Index für das Erz liegt nach hinreichend langer Abklingungszeit oberhalb dem des HAW. Wird nun der Schluß gezogen, daß durch die Energiegewinnung aus Kernspaltung die Langfrist-Toxizität des Erzes in eine Kurzfrist(~ 700 Jahre)-Toxizität der Spaltprodukte übergeführt wird, so wird der Fehler gemacht, daß dieses Konzept des Toxizitätsindex in seiner Aussagekraft einer vollständigen Risikoanalyse gleichgesetzt wird. In Wahrheit entsteht bei der Energiegewinnung aus Kernspaltung neben der Toxizität des Erzes zusätzlich die der Spaltprodukte und gebildeten Actiniden, wobei durch die Gewinnung des Erzes die ursprünglich immobilen Isotope (nämlich die der vierzehn Übergänge in der Kette, die bei U-238 beginnt und als wesentliche Komponente Ra-226 enthält) in eine beweglichere Form übergeführt werden. Dies und viele andere Effekte kann das nulldimensionale Konzept des Toxizitätsindex natürlich nicht erfassen.

In Abb. 2 sind die Vorläufe für LWR, LWR_{rez} und SBR, normiert auf $1 \text{ GW}_e \cdot \text{a}$, einander gegenübergestellt.

II. 2.2 Radioaktive Abfälle aus dem gesamten Brennstoffzyklus

Neben der Angabe von Aktivitäten ist auch die von Waste-Mengen zur vollständigen Beschreibung des Abfallproblems vonnöten. Es soll in Tab. II. 6 eine Zusammenstellung der pro Tonne Schwermetall anfallenden Volumina (m^3) erfolgen, wobei auf eine Unterscheidung zwischen den Mengen, aus verschiedenen Reaktorsystemen stammend, verzichtet wurde, da insbesondere beim SBR die Datenbasis sehr schmal ist. Ein auf die Energieeinheit von $1 GW_{ea}$ bezogener Vergleich der Wastemengen kann in erster Näherung durch Multiplikation der Zahlenwerte von Tab. II. 6 mit den t/GW_{ea} ($\sim 24 t$ für den LWR bzw. $16 t$ für den SBR) erreicht werden.

In Tab. II. 7 soll eine Gegenüberstellung von Abfallmengen pro GW_{ea} , wie sie Richter /19/ angegeben hat, erfolgen.

Auf Details der Abfallkonditionierung soll hier nicht eingegangen, sondern nur auf die der Tab. II. 6 zugrundeliegende Literatur verwiesen werden /20, 21/.

Tab. II. 6: Abfall-Volumina (m³/t_{SM})

Anlage	Abfallkategorie	Abfallvolumen	(m ³ /t _{SM})
Wiederaufarbeitung	- Hochaktiv flüssig	0,6	
	dies kann konzentriert und durch einen Verglasungsprozeß verfestigt werden, was führt zu		0,08
	- Hochaktiv fest (BE-Hüllen)		0,3
	- Mittelaktiv flüssig	10	
	konzentriert zu	3	
	und führt nach weiterer Konzentrierung und Bituminierung zu		0,5
	- Mittelaktiv flüssig (organisch)	2	
	nach Konzentration		1
	- Mittelaktiv fest		3
	- Niederaktiv flüssig		35
	- Niederaktiv fest		10
Brennstofffabrikation	Niederaktiv fest		10
Reaktor	Mittel- und niederaktiv fest		1,5

Wastearten		Druckw. Reaktor	Schneller Brüter	Wiederaufarbeitung (Purex)
Zusammensetzung	Aktivität *)	$\frac{m^3}{GW_e a}$ Radioisotope	$\frac{m^3}{GW_e a}$ Radioisotope	$\frac{m^3}{GW_e a}$ Radioisotope
Fester Abfall (Ionenaustauscher-Harze, Apparateteile, Papier, Plastik)	niederaktiv	80 ^{60}Co , ^{55}Fe , ^{59}Fe , ^{54}Mn	100 ^{22}Na , ^{60}Co , ^{51}Cr , ^{55}Fe , ^{59}Fe	80 bis zu 1 % des Sp.Pr.-Inventars des Brennstoffs
	mittelaktiv	20 Sp.P. (^{137}Cs , $^{95}Zr/Nb$)	50 Sp.P., Transurane	120
Flüssige Konzentrate (Konzentrate der Abfallwasserbehandlung, Dekontamination usw.)	niederaktiv	160 wie oben!	70 wie oben!	150
	mittelaktiv	40 wie oben!	30 wie oben!	100
Verfestigter/ Verglaster Abfall in Stahlzylindern	hochaktiv	-	-	1-5 99% der Sp.Pr. 0,5-1 % des Pu, 100% des Am und Cm

- *) niederaktiv: 10^{-8} - 10^{-5} Ci/l oder Ci/kg
mittelaktiv: 10^{-4} - 10 Ci/l oder Ci/kg
hochaktiv : < 10 Ci/l oder Ci/kg

III. Freisetzung von Radioaktivität an die Umwelt

1. T R I T I U M : Tritium entsteht im Brennstoff im wesentlichen durch ternäre Spaltung. Durch Verwendung von Zirkaloy als Brennstabhüllmaterial beim LWR können die Austrittsraten unter 1 % gehalten werden /22/. Außerdem werden zur Reaktivitätslangzeitregelung des LWR abbrennbare Gifte, beispielsweise Bor in Form von borhaltigen Glasrohren oder Borsäure (beim Druckwasserreaktor) beigegeben, wodurch es über B-10 (n, α) Reaktionen zur Tritiumbildung kommt. Die an sechs deutschen LWR gemessenen jährlichen Tritiumabgaberraten an das Abwasser /23/, hochgerechnet auf 1000 MW_e, belaufen sich auf ca. 400 Ci. Zusammen mit einer Abgabe von etwa 100 Ci an die Abluft /24, 25/ beträgt die Tritiumabgabe aus dem Leichtwasserreaktor etwa 500 Ci/GW_ea. Für die LWR-Wiederaufarbeitungsanlage wurde eine durchgesetzte Tritiumaktivität von rund 16000 Ci/GW_e·a ermittelt. Drei Ströme erweisen sich bei der Betrachtung des Tritiumaktivitätsflusses in der WA als am wichtigsten: erstens gelangt bei der mechanischen Zerkleinerung der Brennelemente ein gewisser Bruchteil des Tritiums in die Abgase und wird über den Schornstein freigesetzt - Werte zwischen 5 und 25 % werden in der Literatur genannt /11, 26/. Zweitens enthält das gereinigte Kondensat nach der Konzentration und Abtrennung der hochradioaktiven Abfalllösung (HAW) einen Großteil (65-95 % /27/) des Tritiums. Nach Abtrennung der Salpetersäure wird dieses Wasser zusammen mit dem Tritium an den Vorfluter abgegeben. In Zukunft werden gerade diese beiden Mengenströme des Tritiums - an die Abluft und das Abwasser - begrenzt werden müssen, wenn bei großen Anlagen die Grenzwerte nicht überschritten werden sollen. Dafür befinden sich Methoden der Tritiumisolierung, wie z.B. durch Rezyklierung oder Voloxidation, in Entwicklung /28/.

Drittens bleiben ca. 10 % des Tritiums im HAW, der später verfestigt wird, zurück.

Hier soll die Aufteilung des Tritiuminventars einer WA auf Luftpfad, Wasserpfad und HAW im Verhältnis von 25 % : 65 % : 10 % erfolgen.

Demnach beläuft sich die Abgabe von Tritium an die Atmosphäre auf 4000 Ci/GW_e·a und die in das Abwasser auf 10 000 Ci/GW_e·a; im HAW bleiben etwa 2000 Ci/GW_e·a.

Prinzipiell anders lautende Aussagen über das Verbleiben des Tritiums sollen hier wegen ihrer möglichen weiteren Konsequenzen für das Tritiumproblem erwähnt, jedoch noch nicht verallgemeinert werden: Nach Broothaerts /29/ und auch Dillon /30/ bleiben 30-60 % des Tritiums chemisch an das Kühlrohrmaterial (Zircaloy) gebunden und werden auch durch die Salpetersäure beim Auflöseprozeß nicht gelöst.

Beim Schnellen Natriumgekühlten Brutreaktor stammt das Tritium vor allem aus zwei Quellen: der ternären Spaltung des Brennstoffs (wobei die Spaltausbeute des Pu größer ist als die des Urans) und der Neutronenaktivierung des Bors in den Kontrollstäben. Als weitere wichtige Quellen gelten die Reaktionen von Neutronen mit Verunreinigungen des Kühlmittels, des Brennstoffs und des Strukturmaterials - vor allem ist hier Bor und Beryllium, in erster Linie aber Li-6 zu nennen. Diese Beiträge aus den verschiedenen Quellen hängen im wesentlichen von den Annahmen ab, etwa der Kontrollstabkonfiguration oder dem Gehalt an Verunreinigungen.

- a) Ternäre Spaltung: ziemlich gleichlautende Ergebnisse werden bei der Abschätzung der Tritiumbildung durch ternäre Spaltung erzielt. Nach Auskunft der Firma INTERATOM belaufen sich die Leistungsanteile im Core des SNR-300 zu 80 % auf Pu-239, 5 % Pu-240, 5 % Pu-241, 2 % U-235 und 8 % U-238; die mittlere Tritiumspaltausbeute ergibt sich damit zu $2,4 \cdot 10^{-4}$ T-Kerne/Spaltung. Wild /31/ leitet daraus eine jährliche Produktionsrate in einem 1000 MWe-Brüter von ca. 20000 Ci Tritium ab, was in Übereinstimmung mit /8/ steht.
- b) Reaktion $B-10(n, 2\alpha) T$ und $B-10(n, \alpha) Li-7(n, n\alpha) T$ in Kontrollstäben: Die Beiträge dieser Reaktionen hängen in starkem Ausmaß von der Auslegung der Kontrollstäbe ab. Während bei /8/ dafür ca. 10000 Ci errechnet werden, schätzt Wild für die Regeltrimm- und Zweitabschaltstäbe eines Brütters vom Typ SNR unter Berücksichtigung der jeweiligen Standzeiten ein Tritiuminventar von ca. $5,10^4$ Ci ab.

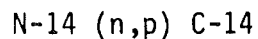
- c) Reaktionen mit Li-Verunreinigungen im Kühlmittel und Brennstoff:
unter der Annahme von 5 ppm Li im Natrium wird von /31/ eine Menge von ca. 800 Ci Tritium errechnet (bei /8/ nur 100 Ci); mit 20 ppm Li im Brennstoff werden dort 4000 Ci Tritium erzeugt /8/.

Zusammenfassend kann gesagt werden, daß ca. 25 % des Gesamttritiums durch ternäre Spaltung (vor allem des Pu-239) entstehen, ca. 65 % in den Kontrollstäben durch Borreaktionen und etwa 10 % durch Reaktionen der Neutronen mit Verunreinigungen (vor allem Li-6).

Bezüglich der Freisetzung von Tritium beim SBR gilt: im Gegensatz zur geringen Durchlässigkeit der Zirkaloyhüllen beim LWR tritt durch die Stahlhüllen der SBR-Brennelemente ein sehr großer Bruchteil des im Brennstoff gebildeten Tritiums aus. Es werden hierzu in der Literatur 50 % /32/, 70 % /33/ und 90 % /15/ erwähnt. Einigkeit herrscht bezüglich der Neigung des Tritiums, im Natrium ein Hydrid zu bilden, das fast vollständig in Kühlfallen ausgefroren werden kann. Entsprechend dem US Brüter-Umwelt Bericht /15/ gelangen ca. 0,5 % des Gesamttritiums in die Luft bzw. das Wasser der Umgebung. Wird angenommen, daß ein durchschnittlicher Tritiumgehalt von ungefähr 70000 Ci in einem 1000 MWe-Brüter vorliegt und daß aus den Kontrollstäben wegen ihrer niedrigen Temperatur ein geringerer Teil des Tritiums austritt als aus den Brennstäben, so dürfte man mit der Annahme einer Abgabe von 350 Ci ins Abwasser und 350 Ci an die Luft aus einem Brutreaktor auf der sicheren Seite liegen (siehe Tab. III. 3).

Nach ORIGEN /10, 16/ beläuft sich der Tritiumgehalt einer Tonne Brüterbrennstoff im Jahr nach der Entladung aus dem Reaktor auf ca. 1140 Ci, das sind 18600 Ci/GW_e·a. 70 % davon sind allerdings schon im Reaktor in das Natrium entwichen; von den restlichen 30 % gehen - unter der Annahme, daß die bei der LWR-WA erwähnte Aufteilung auch für die Brüter-WA gilt - bei der SBR-Wiederaufarbeitung 25 % in die Abluft (1400 Ci/GW_e·a), 65 % ins Abwasser (3600 Ci/GW_e·a). Der Rest von ca. 600 Ci/GW_e·a bleibt beim HAW (siehe Tab. III. 6).

2. K O H L E N S T O F F - 14: Dieses Isotop ist gegenwärtig Gegenstand vieler Analysen des Brennstoffzyklus; die Langlebigkeit dieses Isotops ($T_{1/2} = 5730$ a) und die Möglichkeit, es in der Form von CO_2 zu inkorporieren, sodaß es einen Beitrag zur Ganzkörperdosis leistet, haben das Augenmerk auf dieses Nuklid gelenkt. Das Ergebnis einer Schnellbrüterstudie der U.S.-Umweltbehörde EPA weist auf die potentielle Möglichkeit "signifikanter" C-14-Freisetzungen an die Umgebung hin /34/. Die Reaktionen im Reaktor, die zur Bildung von C-14 führen, bestehen in einer Aktivierung von Kohlenstoff, Stickstoff und Sauerstoff, wobei die Reaktion



beispielsweise in einem Schnellen Brüter etwa 96 % der C-14-Aktivität des Brennstoffs liefert /15/.

Kunz et al. /35/ stellten bei Messungen an amerikanischen Druckwasserreaktoren C-14 vor allem in Form von Kohlewasserstoffverbindungen und weniger als CO_2 oder CO fest; praktisch nur in der Form von CO_2 oder CO wird es von Pflanzen aufgenommen und kann somit in die Nahrungskette gelangen. Die Menge des freigesetzten C-14, die vor allem aus Leckagen stammt, wird von Kunz für einen $1000MW_e$ -Reaktor auf 6 Ci/Jahr hochgerechnet. Die Messungen, auf denen diese Abschätzung beruht, wurden an den beiden Kernkraftwerken Ginna und Indian Point 2 durchgeführt.

Magno /36/ schätzte die Produktion von C-14 in den Brennstäben eines $1000 MW_e$ -Druckwasserreaktors auf 30-40 Curie pro Jahr und auf 12 Ci im Kühlmittel. Insofern erscheint die erwähnte Freisetzung von 6 Ci schon am Ort des KKW, d.h. von mehr als 10 % des Inventars, als relativ hoch. Daneben trägt das freigesetzte C-14 wahrscheinlich nicht im vollen Umfang zu Umgebungsbelastung bei, da es, wie oben erwähnt, nicht ausschließlich als Kohlesauerstoffverbindung vorliegt.

Kohlenstofffreisetzung beim SBR: Schröder /37/ führte eine die Spezifikationen des SNR-300 berücksichtigende Korrektur der Angaben des US.-Brüter Statements /15/ durch, indem die für die Erzeugung des C-14 grundlegenden Stickstoffkonzentrationen im Brennstoff und Hüllmaterial um einen Faktor 3-5 angehoben wurden: 100 ppm N₂ im Brennstoff, 150 ppm N₂ im Hüllmaterial beim SNR-300. Dementsprechend ergibt sich ein Kohlenstoffinventar von ca. 45 Ci C-14/GW_ea, das in etwa dem des vorhin erwähnten Druckwasserreaktors entspricht. Demzufolge kann auch hier eine Freisetzung von C-14 an die Atmosphäre derselben Größenordnung wie beim LWR angesetzt werden - wobei allerdings beim Brüter der Mangel an durch Messung untermauerten Werten noch vollkommener ist. Das im Brüterbrennstoff enthaltene C-14 Inventar beläuft sich auf etwa 25 Ci/GW_ea (der oben genannten Gesamtmenge von 45 Ci); dies entspricht größenordnungsmäßig $\sim 1 \text{ Ci/t}_{\text{SM}}$. Daraus lassen sich die Freisetzungen bei der Wiederaufarbeitung ableiten: nach Aussagen in /34/ und /38/ kann die Kohlenstoff- (bzw. CO₂-) Rückhaltung mit den für Krypton in Entwicklung befindlichen Tieftemperaturmethoden bewerkstelligt werden. In neueren Untersuchungen von Till et al. /39/ über die Produktion von C-14 in oxydischen und karbidischen Brüterbrennstoffen sowie dessen Emission beim WA-Prozeß, wird von noch höheren N-14 Gehalten ausgegangen (bis zu 1000 ppm in karbidischem Brennstoff). Der Dosisberechnung wird in /39/ eine 99 %ige Rückhaltung (Freisetzungsfaktor 10^{-2}) zugrunde gelegt.

3. E D E L G A S E : Bei Temperaturen von 2200⁰C treten etwa 10 % der erzeugten Edelgase aus dem Brennstoff aus, bleiben aber noch innerhalb der Brennstabhülle. Bei einem oberen Wert von 1 % defekten Brennelementhüllen ließe sich somit für die Freisetzungsrates ins Kühlmittel eine Größenordnung von 0,1 % abschätzen.

Bei Druck- und Siedewasserreaktoren wird die Edelgasfreisetzung an die Umgebung durch einander ähnelnde Mechanismen bestimmt: Leckagen und Primärwasserreinigung. Während die durch Leckagen freiwerdenden Spaltdelgase unverzögert zum Kamin gelangen, werden die aus der Kühlmittel-

reinigung in die Abgasanlage kommenden Edelgase über Aktivkohle geschickt und dadurch verzögert (Kr 2, Xe 40 Tage). Dadurch enthalten letztere keine kurzlebigen Edelgasisotope mehr. Somit kann die Leckage den bedeutsamsten Beitrag zur Edelgasabgabe liefern. Aus gemessenen Edelgasabgaberraten von Siede- und Druckwasserreaktoren wurde ein mittlerer Wert für die Edelgasbelastung pro Jahr und GW_e ermittelt /40/:

~ 1300 Ci Kr-85, ~ 3000 Ci Xe-133.

Als wichtige Komponente gasförmiger Freisetzungen aus Kernkraftwerken können relativ kurzlebige Edelgase auftreten. Ihr Anteil an der gesamten Spalteredelgasfreisetzung hängt stark vom Betriebszustand des KKW ab; bei bestimmten Betriebsvorgängen oder Betriebsunregelmäßigkeiten (z.B. erhöhten Leckagen) kann zusätzlich Aktivität unter Umgehung der Aktivkohle-Abgasverzögerungsanlage direkt zum Kamin gelangen; dies kann zu einer beträchtlichen Erhöhung der γ -Dosis (gleichbedeutend mit Ganzkörper- und genetisch wirksamer Dosisbelastung) durch das freigesetzte Spalteredelgasgemisch führen. Dies wird in Abb. 3

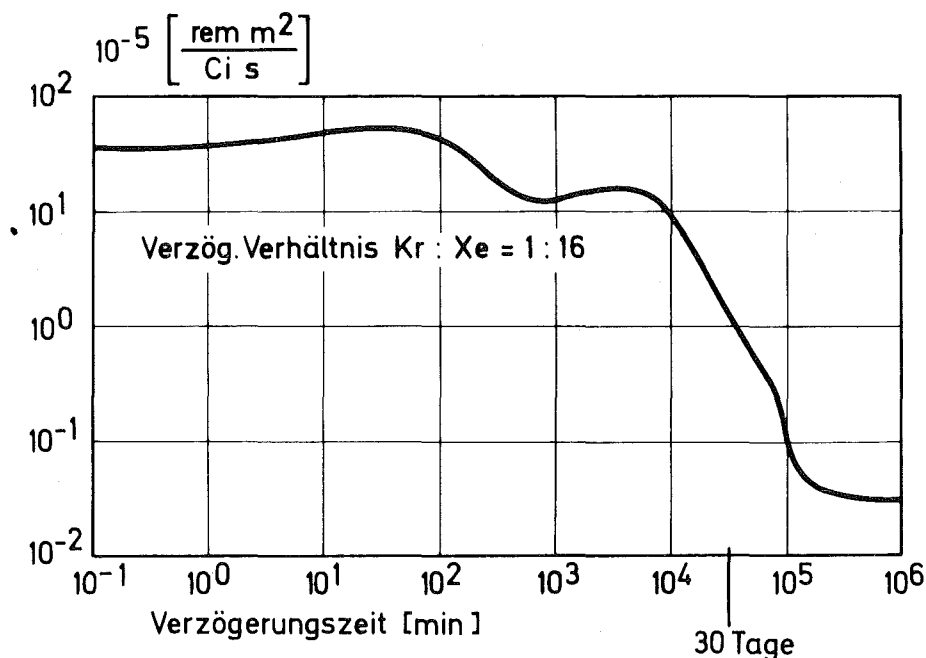


Abb. 3 γ -Dosis Faktor g_γ

durch den Verlauf des Dosisfaktors g_Y dargestellt /41/, der als Summe über das Edelgasgemisch zu verstehen ist und mit dessen Hilfe die ortsabhängige Nuklidkonzentration in Dosisleistungen (rem/Zeit) umgerechnet werden kann. Diese Summen- γ -Dosiskonstante kann also Veränderungen um \sim drei Größenordnungen erfahren /41, 42/, während die zugehörige Änderung der β -Dosiskonstanten geringfügig ist. Einige typische Werte für die Emissionsraten kurzlebiger Edelgase (das sind die mit kürzerer HWZ als Kr-85, Xe-131m und Xe-133) werden in Tab. III. 1 aufgenommen.

Beim SBR treten in der Literatur Diskrepanzen zwischen den genannten Größen der Kr-85-Freisetzung auf: in /40/ wird die geschätzte Edelgasgesamtfreisetzung von etwa 5000 Ci/GW_e·a in 4200 Ci Xe-133 und 350 Ci Kr-85 aufgeteilt. Im US-Environ. Impact Statement /15/ dagegen werden gar nur 0,4 Ci Kr-85 pro GW_e·a genannt. Es soll hier der Argumentation von /40/ gefolgt werden, erweitert um die Annahme der Freisetzung des radiologisch bedeutsamen Nuklids Kr-88 in derselben Höhe wie beim LWR (siehe Tab. III. 3).

Bezüglich der Edelgasrückhaltung bei der Wiederaufarbeitung sei vor allem auf die Entwicklungsarbeiten des Projekts Nukleare Sicherheit im Kernforschungszentrum Karlsruhe verwiesen, die sich auf die Methode der Tieftemperaturrektifikation konzentrieren, worüber beispielsweise in /43/ berichtet wird. In /44/ werden zukünftig notwendige Anforderungen an die Rückhaltung von Kr-85 diskutiert, wobei 99 % angegeben wird. Hier wird von 90 %iger Rückhaltung ausgegangen (d.h. Freisetzungsfaktor 10^{-1}), wie dies häufig bei der Diskussion der "Großen Wiederaufarbeitungsanlage" der KEWA /45/ genannt wird.

4. J O D : Die Primärwasseraktivitäten beim LWR werden durch die Schäden an Brennelementhüllen (Auslegungsrichtwert 1 %) bestimmt. Der Hauptteil der Jodfreisetzung an die Umgebung erfolgt aus Leckagen. Durch die Primärwasserreinigung wird Jod in die Abgasanlage

gesaugt und über Aktivkohle geschickt, wodurch eine Jodabgabe nach außen über diesen Weg praktisch unterbleibt /46/. Die aus gemessenen Werten auf 1000 MWe·a bezogenen Freisetzungen von J-131 aus LWR an die Umgebungsluft belaufen sich auf $\sim 0,3$ Ci. Bezüglich der Jodfreisetzung in Abwasser (0,4 Ci) soll auf die Erläuterungen im Abschnitt über Aktivitätsgehalt im Wasser verwiesen werden (Seite 31/32).

Wesentlich ist es, an dieser Stelle auf die Bedeutung der Jodproblematik im Rahmen des atomrechtlichen Genehmigungsverfahrens hinzuweisen. Gerade die rechnerische Beweisführung der Unterschreitung der nach der Deutschen Strahlenschutzverordnung (die ab 1.4.1977 das 30/90 mrem-Konzept zwingend vorschreibt) gültigen Höchstgrenze von 90 mrem/a an Jod-Schilddrüsenbelastung für das Kleinkind, hat bei einigen Standorten, wie etwa dem des KKW-Isar, zu Schwierigkeiten geführt. Der Grund dafür liegt hauptsächlich darin, daß der Dosisfaktor für die Ingestion von J-131 über den Luft-Weide-Kuh-Milch-Pfad im Lauf der Jahre deutlich erhöht worden war: während er 1972 noch auf $260\ 000 \frac{\text{rem m}^3}{\text{Ci s}}$ festgelegt war /47/, wurde er 1975 auf 630 000 erhöht (Hoffmann /48/). 1976 erfolgte schließlich die Erhöhung auf 880 000 rem/s je Ci/m³ für J-131 und auf 2×10^6 rem/s je Ci/m³ für J-129 /49/. Ein Argument für diese Erhöhung des Dosisfaktors ist die bestehende Unsicherheit über die chemische Form des emittierten Jods. Wie beim C-14, so auch beim Jod, ist die radiologische Wirkung des in organischer Verbindung vorliegenden Nuklids (z.B. Methyljodid) deutlich geringfügiger als die des elementaren Jods. Die Einigung auf eine Aufteilung im Verhältnis 50 : 50 auf diese beiden Formen wurde durch eine Erhöhung des Dosisfaktors kompensiert /50/.

Beim Natriumbrüter reagiert das durch die Hüllrohre durchtretende Spaltjod mit dem Kühlmittel zu Natriumjodid und kann in Kühlfallen abgetrennt werden, oder es gelangt in den Schutzgasraum, von wo es

in die Schutzgasreinigung kommt. Trotz höherer Jodausbeute bei der Spaltung von Plutonium im Brütterspektrum als von Uran im LWR kann somit die Abgabe an die Umgebung deutlich unter der aus dem LWR gehalten werden: Abgaberraten von 0,01 Ci J-131/GW_{ea} werden bei /51/ genannt; die im US-Brüter Statement /15/ angeführten Werte liegen - wie immer - noch deutlich darunter (0,001 Ci).

Jod ist auch beim WA-Prozeß von Bedeutung; hier wird aber, vor allem bei hinreichend langen Kühlzeiten, das Augenmerk auf das langlebige J-129 gelenkt. Nach ungefähr 200 Tagen Kühlzeit - was hier als Zeitpunkt der WA angenommen wurde - stimmen sowohl im Brennstoff des LWR als auch dem des SBR die Aktivitäten des kurzlebigen J-131 ($T_{1/2} \sim 8$ d) ungefähr mit denen des J-129 überein ($\sim 0,04$ Ci/t_{SM}). Auf die besondere Problematik des J-129, vom radiologischen Standpunkt betrachtet, wurde beispielsweise von Soldat /52/ und Schüttelkopf /53/ sowie während der Warschauer IAEA-Konferenz /54/ hingewiesen. An dieser Stelle soll aber vor allem der Stand der Rückhaltetechnik angegeben werden; dies ist am prägnantesten durch Nennung der Rückhaltefaktoren möglich. Bei /44/ werden zur Zeit erforderliche Rückhaltefaktoren von 20-200 genannt (deren Reziprokwert, der Freisetzungsfaktor, somit zwischen 5×10^{-3} und 5×10^{-2} liegt) während 2000 - 20 000 (Freis. Faktor 5×10^{-5} - 5×10^{-4}) als "zukünftig notwendig" angegeben wird. Rückhaltefaktoren von 10^4 werden heute tatsächlich schon erreicht /55,56/. Hier soll ein Wert von 1000 (Freisetzungsfaktor 10^{-3}) gelten; siehe Tab. III. 4.

5. SR, RU, CS und KORROSIONSPRODUKTE: Strontium, Ruthenium und Cäsium werden aus dem LWR vor allem ans Abwasser abgegeben; die mit der Abluft abgegebenen Aktivitäten dieser Nuklide sind dagegen deutlich geringer: Meßwerte hierfür liegen nur in geringem Ausmaß vor, sowohl bei Bonka /57/ als auch bei Schiesser /58/ werden Werte von den Reaktoren Yankee und Dresden I erwähnt, und es wird Bezug auf die "Jahr-2000-Studie" /59/ genommen. Messungen von Sr-90 in der Abluft eines KKW wurden von Schüttelkopf durchgeführt /49/.

Abgaben aus Abwasser:

Neben den bei der Abgabe in die Abluft zu betrachtenden Nukliden wie Tritium, Edelgase, Jod, Kohlenstoff, Sr, Ru und Cs (wobei es sich beim Cs-134 um ein Aktivierungsprodukt des stabilen Cs-133 und nicht um ein Zerfalls- oder Spaltprodukt handelt), sind für die Abgaben ins Abwasser außerdem die Korrosionsprodukte von Bedeutung, die jedoch auch an den Oberflächen des Systems abgelagert werden und dadurch einen hohen Strahlenpegel zur Folge haben, wodurch Wartungs- und Reparaturarbeiten erschwert werden. Diese Korrosionsprodukte haben ihren Ursprung in den Materialien der Primärkühlmittel führenden Systemteile, wie der Ni-Cr-Fe-Legierung des Dampferzeugers (beim Druckwasserreaktor), dem Zircaloy der Brennstabhüllen und dem austenitischen Stahl des Reaktordruckgefäßes. Als charakterisierend für das Oberflächenverhältnis von Dampferzeuger, Brennstabhüllen und Reaktordruckgefäß kann 75:20:5 genannt werden /60/. Die Korrosionsprodukte - Aktivität setzt sich aus der des Cr-51, Mn-54, Fe-59, Co-58 und Co-60*) zusammen, wobei die beiden Co-Isotope gewöhnlich den größten Beitrag zum Strahlenpegel im Primärkreis liefern. (Dies trifft vor allem für den Brüter zu; liegt Co als Verunreinigung im Stahl vor, so kommt es durch (n, γ)-Prozesse zur Aktivierung. Eine Verunreinigung von 0,05 % Co im Stahl wurde für den SNR-300 genannt /61/).

Als Grundlage für die Ermittlung normierter, d.h. auf 1 GW_e·a bezogener Aktivitätsfreisetzungen oben genannter Nuklide, dienen Messungen an deutschen KKW in den Jahren 1972-1974, wie sie von Wolter /62/ und auch im Bundesgesundheitsblatt /63/ veröffentlicht wurden; außerdem liegen Meßwerte für den Siedewasser-Reaktor Gundremmingen für die Jahre 1967-1973 vor (Hermann et al./64/). Auch bei Bonka /57/, Schiesser /53/ und Aurand /65/ werden diese Nuklidgruppen erwähnt. Witherspoon /66/ bezieht sie in die Berechnung der Dosisbelastung von Lebewesen im Wasser mit ein.

*) Bildung dieser Korrosionsprodukte:

Cr-50 (n, γ) Cr-51	Fe-59 (n, γ) Fe-59	Ni-60 (n,p) Co-60
Fe-54 (n,p) Mn-54	Ni-58 (n,p) Co-58	

In Tabelle III.2 sind die Abgaben ins Abwasser zusammengestellt. Während die Freisetzung von Tritium, Spaltedelgasen und Spaltjod aus dem SBR relativ gut abgeschätzt werden kann, liegt für die Ermittlung der Freisetzung weiterer Spalt- und Korrosionsprodukte nur geringe Erfahrung vor. Sowohl bei Ullmann /67/ als auch bei Erdman /8/ wird die Verteilung von Spalt- und Korrosionsprodukten im Primärsystem natriumgekühlter Schneller Reaktoren (im Kühlmittel, Schutzgas und in Kühlfallen) erwähnt. Angaben über diese Verteilung enthält auch der Sicherheitsbericht des SNR-300. Dagegen ist die Basis auf dem Gebiet der Freisetzung von Radionukliden an die Umwelt sehr schmal. In der "Jahr-2000-Studie" /59/ wird auch von Strontium-, Ruthenium- und Cäsiumabgaben an die Abluft berichtet; diese Werte, zusammengestellt von Schiesser /58/, werden in Tabelle III.3 aufgenommen (allerdings sollen die Ruthenium- und Cäsiumfreisetzungswerte ein wenig reduziert werden. Ru-106 wird zwar beim Brüter in stärkerem Ausmaß gebildet als beim LWR, doch ist Ru von geringer Flüchtigkeit. Cäsium ist flüchtig, die Produktion von Cs-137 ist aber in beiden Reaktortypen etwa gleich groß /58/). Darüber hinaus finden sich in der Literatur keine Angaben über Abgaben ans Wasser (ausgenommen Tritium): es wird das Konzept der Nullabgabe von radioaktiven Abwässern aus Brütern vertreten.

Die in Kapitel III genannten Freisetzungen aus dem Kernkraftwerk sollen in den folgenden Tabellen zusammengestellt werden. Anschließend wird in Zusammenhang mit der tabellarischen Angabe der Freisetzungen aus Wiederaufarbeitungs- und Brennstofffabrikationsanlagen auf α -Strahler eingegangen werden; diese spielen bei der Freisetzung aus dem KKW eine vernachlässigbare Rolle - obwohl im Reaktorwasser Np-239 als Vorläufer des Plutoniums nachgewiesen werden konnte (10^{-1} Ci/m³, /68/) - insbesondere wenn sie mit den in den übrigen Anlagen des Brennstoffzyklus freigesetzten Mengen verglichen werden /69/.

III.1 Gesamtdarstellung der Freisetzung aus dem Kernkraftwerk

Tab. III.1: Freisetzung aus LWR an die Atmosphäre bezogen auf 1 GWe·a

Kr-85:	1300 Ci	J-131:	0,3 Ci	Sr-89:	10 mCi
Xe-133:	3000 Ci	J-129:	-	Sr-90:	1 mCi
Kr-85m:	100 Ci	C-14:	6 Ci	Ru-103:	2 mCi
Kr-88:	10 Ci	H-3:	100 Ci	Ru-106:	1 mCi
Xe-131m:	100 Ci			Cs-134:	4 mCi
Xe-133m:	20 Ci			Cs-137:	7 mCi
Xe-135:	300 Ci				

Tab. III.2: Freisetzungen aus LWR ins Wasser bezogen auf 1 GWe·a

Nuklid	Halbwertszeit	freigesetzte Aktivität (m Ci)
Cr-51	27,8 d	30
Mn-54	314 d	80
Co-58	71,3 d	880
Co-60	5,27 a	275
Zn-65	244 d	0,3
Zr-95	65,5 d	3
Nb-95	35 d	7
Sr-89	50,5 d	30
Sr-90	28 a	5
Ru-103	40 d	10
Ru-106	368 d	10
J-131	8,05 d	400
Cs-134	2,05 a	600
Cs-137	30 a	1000
Ce-141	32,5 d	30
Ce-144	284 d	100
H-3	12,3 a	400 Ci

Tab. III.3: Freisetzung aus SBR pro GWe·a

<u>Atmosphäre:</u>		
Kr-85: 350 Ci	J-131: 0,01 Ci	Sr-89: 6 mCi
Xe-133: 4200 Ci	C-14: (6 Ci)	Sr-90: 0,1 mCi
Kr-88: 10 Ci	H-3: 350 Ci	Ru-103: 20 mCi
Xe-131m: 200 Ci		Ru-106: 10 mCi
Xe-135: 250 Ci		Cs-134: 100 mCi
		Cs-137: 200 mCi
<u>Abwasser:</u> 350 Ci Tritium		

III.2 Freisetzungen bei der Wiederaufarbeitung

Als Referenzsystem gilt hier eine Anlage, die nach den für oxidische Brennstoffe üblichen Verfahren arbeitet: Schneiden der Brennelemente und Auflösen des Brennstoffs im "Head-End" nach dem sogenannten Chop- and -Leach Verfahren; Durchlaufen von drei TBP^{+) -}Extraktionszyklen zur Trennung von U/Pu von den Spaltprodukten und übrigen Actiniden sowie zur Trennung von U und Pu voneinander. Detaillierte Angaben über die Arbeitsweise von Wiederaufarbeitungsanlagen finden sich beispielsweise bei Huppert /17/, in /70/ und /71/. Wie etwa auch im US-Brüter Statement /15/ wird auch hier die Ansicht vertreten, daß bei künftigen großen Wiederaufarbeitungsanlagen höchstens Tritium ins Abwasser gelangt. In der dieser Betrachtung zugrundeliegenden WA werden die flüssigen Prozeßströme von Chemikalien und Spaltprodukten - ausgenommen Tritium - gereinigt; anschließend erfolgt Verdampfen und eine Ableitung über den Kamin. Bei dieser Verdampfung erfolgt die Abtrennung aller Spaltprodukte - ausgenommen Tritium - aus den flüssigen Prozeßströmen /15/. Zur Verringerung der Tritiumfreisetzung aus der WA werden in Zukunft u.U. Rückhalteverfahren wie die Rezyklierung oder Voloxidation zum Einsatz kommen.

+) TBP : Tributylphosphat

In Tabelle III.4 sind Rückhaltefaktoren (= Verhältnis aus durchgesetzter Nuklidmenge in Anlage und freigesetzter Nuklidmenge aus Anlage) zusammengestellt, wie sie in der Literatur Verwendung finden. Die letzte Spalte enthält die Faktoren, die als Grundlage aller weiteren Berechnungen dienen sollen, wobei bei der Festlegung dieser Faktoren gewissermaßen ein Kompromiß geschlossen wurde: einerseits fand die Tatsache Berücksichtigung, daß die Genehmigung von Wiederaufarbeitungsanlagen nicht ohne die Einhaltung gewisser Mindestwerte der Rückhaltung erreichbar sein wird (hierher gehört der Wert 10 für Edelgase (Kr-85), wie er im Zusammenhang mit der Errichtung der KEWA-Anlage häufig zitiert wird). Andererseits wurden allzu optimistisch klingende Werte, wie z.B. 20000 für Jod ($\hat{=}$ 99,995 %-ige Rückhaltung), oder die Werte für Ru, Sr, Cs und Ce aus /15/ abgerundet.

Für C-14 wurde auf Aussagen in /34/ und /38/ zurückgegriffen, wonach die Kohlenstoff- (bzw. CO₂-) Rückhaltung mit den für Krypton entwickelten Techniken bewältigt werden könnte.

Wie bereits erwähnt, wird bei der Betrachtung von radioaktiven Freisetzungen aus Wiederaufarbeitungsanlagen vor allem den Abgaben an die Atmosphäre Bedeutung beigemessen. So wurden etwa in /72/ drei amerikanische WA analysiert, von denen zwei im Routinebetrieb keine Radioaktivität über den Wasserpfad abgaben. Bei /73/ werden die Freisetzungen ins Abwasser bei neueren Anlagen als vernachlässigbar bezeichnet; es werden nur geringfügige Freisetzungen von Ru-106 und Tritium angeführt. Witherspoon /66/ erwähnt, daß die seinen Analysen zugrundegelegte WA keine flüssigen, radioaktiven Freisetzungen aufweist und daß es zu Auswirkungen auf Lebewesen und Pflanzen im Wasser nur durch solche Radionuklide kommen könnte, die aus der Abgaswolke ins Wasser gelangten. In WASH-1535 /15/ werden Freisetzungen ins Wasser erst gar nicht behandelt.

Gemessene Werte der Emission von α -Strahlern variieren über einen relativ weiten Bereich /74/: So schwanken die Anteile freigesetzter α -Strahler bei der amerikanischen NFS-Anlage zwischen 10^{-10} und 10^{-11} /75/, bei der WAK-

Karlsruhe zwischen 3×10^{-11} und 5×10^{-9} /76/. Für die Barnwell-Anlage wird ein Wert von 10^{-8} abgeschätzt /11/; an anderer Stelle /77/ wird für Barnwell eine anteilmäßige Freisetzung von 10^{-9} für Pu, Am und Cm errechnet. In /7/ wird ein Wert von 1×10^{-10} für den eigentlichen WA-Prozeß, d.h. Auflösung und Extraktion, angegeben; für die Umwandlung des Plutoniumnitrats in PuO_2 wird ein zusätzlicher Wert von $0,5 \cdot 10^{-10}$ und schließlich für die Wasteverfestigung ein weiterer von $1 \cdot 10^{-10}$ abgeschätzt.

Tab. III.4: Rückhaltefaktoren ($\frac{\text{durchgesetzte Ci}}{\text{freigesetzte Ci}}$) gasförmiger Aktivitäten aus WA

Isotop	/58/	ERDA-1535 /15/	IEAE /44/		Wilhelm /55/, /56/	Grundlage weiterer Rechnungen
			z.Z. erforderlich	zukünftig notwendig		
C-14						10
Edelgase		10^2	1	10^2		10
Jod		10^4	20-200	2000-20000	10^4	10^3
H-3		1	1	10^2		4
Ru	$4 \cdot 10^7$	10^9				$5 \cdot 10^8$
Sr	$4 \cdot 10^8$	$5 \cdot 10^9$				10^9
Cs	$4 \cdot 10^8$	$5 \cdot 10^9$				10^9
Ce	$4 \cdot 10^8$	$5 \cdot 10^9$				10^9
Actiniden		$2 \cdot 10^9$				10^9

Neuere Arbeiten /78/ beziehen sich häufig auf das US-Brüterumwelt Statement /15/ und geben unter Zugrundelegung das dort verwendeten Freisetzungsfaktors von $5 \cdot 10^{-10}$ für Plutonium bzw. $2 \cdot 10^{-10}$ für Americium und Curium eine freigesetzte Transurane- α -Aktivität von $360 \mu\text{Ci}/\text{GWe} \cdot \text{a}$ beim Schnellbrüter-WA-Prozeß an. In früheren Arbeiten /79/ beläuft sich diese Aktivität auf $2000 \mu\text{Ci}/\text{GWe} \cdot \text{a}$. Für weitere Betrachtungen wird, wie in Tabelle III.4 angegeben, ein Wert von 10^{-9} für die Freisetzung von Uran- Plutonium- und Transplutoniumelementen an die Atmosphäre beim WA-Prozeß angenommen.

Sicherlich kann diese Zahl nur eine Rechengrundlage sein. Einerseits wird es durch Weiterentwicklungen auf dem Gebiet der Filtertechnik, insbesondere dem der HEPA-Filter ⁺⁾ , zu einer weiter verbesserten Rückhaltung kommen. So ist der dem US-Brüter Statement /15/ entnommene Wert von $2 \cdot 10^9$ (Freisetzungsfaktor $5 \cdot 10^{-10}$) in Tabelle III.4 im Zusammenhang mit der Bestrebung der US-Umweltbehörde EPA zu sehen, die Emission von α -Strahlern aus dem gesamten Brennstoffzyklus auf 0,5 mCi pro GWe·a zu begrenzen /80/ (die EPA-Standards für weitere Nuklide belaufen sich auf 50 000 Ci Kr-85 und 5 mCi J-129). Andererseits werden an bestehenden Anlagen Emissionen von α -Strahlern gemessen bzw. genehmigt, deren Höhe durch einen Freisetzungsfaktor 10^{-6} gekennzeichnet werden kann /49/.

⁺⁾ High Efficiency Particulate Air Filter

Nuklid	Aktivit. Gehalt ($\frac{Ci}{t_{SM}}$) z. Zeitpkt. d. WA (200 T.)		Freisetzungsfaktor	Freisetzung von Aktivität an die Abluft aus Wiederaufarbeitung			
	L W R	L W R _{rez}		L W R		L W R _{rez}	
				pro t_{SM}	pro GWe·a	pro t_{SM}	pro GWe·a
H-3	706		0,25	175 Ci	4000 Ci		
C-14	1		10^{-1}	0,1 Ci	2 Ci		
Kr-85	11000		10^{-1}	1100 Ci	26000 Ci		
J-129	0,04		10^{-3}	40 μ Ci	900 μ Ci		
J-131	0,03		10^{-3}	29 μ Ci	670 μ Ci		
Ru-103	36300		$2 \cdot 10^{-9}$	73 μ Ci	1,7 mCi		
Ru-106	380400		$2 \cdot 10^{-9}$	760 μ Ci	18 mCi		
Sr-89	47200			47 μ Ci	1,1 mCi		
Sr-90	78200			78 μ Ci	1,8 mCi		
Cs-134	214000			210 μ Ci	5 mCi		
Cs-135	0,3		10^{-9}	-	-		
Cs-137	110000			110 μ Ci	2,5 mCi		
Ce-141	18900			19 μ Ci	440 μ Ci		
Ce-144	672000			700 μ Ci	16 mCi		
Pu-238	2850	6240		3 μ Ci	70 μ Ci	6 μ Ci	150 μ Ci
Pu-239	320	450		-	7 μ Ci	-	11 μ Ci
Pu-240	540	870		-	12 μ Ci	1 μ Ci	20 μ Ci
Pu-241	115000	248000	10^{-9}	120 μ Ci	2,7 mCi	250 μ Ci	5,8 mCi
Pu-242	2			-	-		
Am-241	195	598		-	4 μ Ci	1 μ Ci	14 μ Ci
Am-243	10	210		-	-	-	5 μ Ci
Cm-242	16000	116000		20 μ Ci	380 μ Ci	120 μ Ci	2,7 mCi
Cm-244	2000	50700		2 μ Ci	50 μ Ci	50 μ Ci	1,2 mCi
Aktivität ins Abwasser: Tritium			0,65	460 Ci	10000 Ci		

beim LWR_{rez} wurden Zahlenangaben nur dort gemacht, wo sich deutliche Unterschiede zum LWR ergeben.

Tab. III.5: Radioaktive Freisetzungen bei der Wiederaufarbeitung von LWR-Brennstoff

Die Tabellen III.5 und III.6 geben die Ci/t_{SM} zum Zeitpunkt der WA an (200 Tage nach Entladung aus dem Reaktor). Beim Brüter ist für Tritium der Effekt des Durchtritts durch die Brennstabhüllen beim Reaktorbetrieb (nur 30 % bleiben beim Brennstoff) deutlich gemacht.

Tab. III.6: Radioaktive Freisetzungen bei der SBR-Wiederaufarbeitung

Nuklid	Aktivitätsgehalt, (Ci/t_{SM}) z. Zeitpunkt der WA (200 Tage)	Freisetzungsfaktor	Freisetzung	
			pro t_{SM}	pro GWe·a
H-3	1145 x 0,3 = 340	0,25	85 Ci	1400 Ci
C-14	1	10^{-1}	0,1 Ci	2 Ci
Kr-85	9320	10^{-1}	93 Ci	15200 Ci
J-129	0,044	10^{-3}	44 μ Ci	720 μ Ci
J-131	0,047	10^{-3}	47 μ Ci	760 μ Ci
Ru-103	74940	$2 \cdot 10^{-9}$	150 μ Ci	2,4 mCi
Ru-106	990900	$2 \cdot 10^{-9}$	2 mCi	32 mCi
Sr-89	57000	10^{-9}	57 μ Ci	930 μ Ci
Sr-90	52300		50 μ Ci	880 μ Ci
Cs-134	31650		30 μ Ci	500 μ Ci
Cs-135	1,4		-	-
Cs-137	140000		140 μ Ci	2,3 mCi
Ce-141	25600		26 μ Ci	420 μ Ci
Ce-144	80900		800 μ Ci	13 mCi
Pu-238	9985		10^{-9}	10 μ Ci
Pu-239	3600	4 μ Ci		60 μ Ci
Pu-240	4900	5 μ Ci		80 μ Ci
Pu-241	569000	570 μ Ci		9,3 mCi
Pu-242	15	-		-
Am-241	2810	3 μ Ci		46 μ Ci
Am-243	60	-		1 μ Ci
Cm-242	38300	38 μ Ci		620 μ Ci
Cm-244	2000	2 μ Ci		33 μ Ci
Aktivität ins Abwasser:Tritium		0,65		220 Ci

III.3 Freisetzungen bei der Brennstofffabrikation

III.3.1 Plutoniumfreisetzungen

Für die Freisetzung von Plutonium aus Pu-Brennstofffabrikationsanlagen liegen Meßwerte von einigen amerikanischen Pilotanlagen vor /7/. Daraus wird für den Prototyp einer 300 jato Pu/U-Mischoxidfabrikationsanlage ($\sim 5\% \text{ PuO}_2$) eine Freisetzung von $280 \mu\text{Ci Pu}(\alpha)$ ($380 \mu\text{g}$) an die Atmosphäre hergeleitet.

Bezüglich der Pu-Freisetzung über das Abwasser werden in "GESMO" /7/ Ergebnisse genannt, die als typisch für die oben genannte 300 jato-Prototypanlage angesehen werden können: $420 \mu\text{Ci Pu}(\mu)$ ($600 \mu\text{g}$). Bezogen auf eine 1500 jato-Anlage würden sich demnach die Freisetzungen an Pu- α -Aktivität über den Luft- bzw. Wasserpfad auf $1400 \mu\text{Ci}$ ($1900 \mu\text{g}$) bzw. $2100 \mu\text{Ci}$ ($3000 \mu\text{g}$) belaufen. An die Atmosphäre wird somit ein Anteil von etwa $2,5 \cdot 10^{-11}$ der Plutoniummenge abgegeben ($1900 \mu\text{g}$ bezogen auf den Pu-Anteil ($\sim 5\%$) am Gesamtjahresdurchsatz von 1500 t).

Auf der Grundlage dieses Wertes läßt sich ein Vergleich mit an anderer Stelle in der Literatur genannter Plutoniumfreisetzung ziehen: In /15/ und /69/ werden auf Ettinger /81/ zurückgehende Betrachtungen angestellt; demnach gelangt bei der Brennstoff-Fertigung ein Bruchteil von $0,1\%$ der durchgesetzten Materialmenge über den Luftstrom an die HEPA-Filter. Für diese wird angenommen, daß ein Wert von 10^{-9} für die Transmission auch für Pu-Teilchen des in Hinblick auf Filterwirksamkeit ungünstigsten Partikeldurchmessers von $0,3 \mu\text{m}$ als konservativ bezeichnet werden kann. Damit würde ein Bruchteil von 10^{-12} des durchgesetzten Pu über den Luftweg an die Außenwelt gelangen. Für den in /15/ und /69/ betrachteten Schnellbrüter-Brennstoff mit ungefähr 10% Pu-Gehalt und eine 1500 jato-Anlage ergibt sich somit eine Freisetzung von $150 \mu\text{g}/\text{Jahr}$ an die Atmosphäre. Als Freisetzung an Plutonium pro Jahr über das Abwasser werden dort $12500 \mu\text{g}$ genannt.

Von anderen Autoren /66/ wird unter Verwendung eines Freisetzungsfaktors von $7,5 \cdot 10^{-12}$ für den Luftpfad ein Wert von $400 \mu\text{g}$ Plutonium ($290 \mu\text{Ci Pu}(\alpha)$) als Freisetzung aus einer LWR-Mischoxid-Anlage angegeben. Die genannten Werte werden in folgender Tabelle (Tab. III.7) zu Vergleichszwecken einander gegenübergestellt:

	<u>Luft</u>	<u>Wasser</u>
Mischoxid-Anlage nach Gesmo /17/	1900 μg (1400 μCi) [$2,5 \cdot 10^{-11}$]	3000 μg (2100 μCi)
Mischoxid-Anlage nach Witherspoon /66/	400 (290) [$7,5 \cdot 10^{-12}$]	
Schnellbrüter-Anlage nach WASH-1535 /15/	150 (43) [10^{-12}]	12500 (3520)

Tab. III.7: Pu-Freisetzung aus 1500 jato Brennstoff-Fabrikationsanlage in μg Pu/Jahr (μCi Pu (α)/Jahr). Die Zahlen in eckiger Klammer geben das freigesetzte Pu als Bruchteil des insgesamt durchgesetzten an.

Pu-Freisetzung an die Atmosphäre:

Da der Wert für die Pu-Freisetzung nach /7/ aus Meßwerten an Pilotanlagen ermittelt wurde und eine Verbesserung der Pu-Rückhalteeinrichtungen bis zum Zeitpunkt der Brütereinführung als wahrscheinlich angesehen werden kann, wird ein Pu-Freisetzungsfaktor für den Luftpfad von 10^{-12} wie in /15/ angesetzt.

Pu-Freisetzung ins Abwasser:

Die Abgabe von Plutonium mit dem Abwasser wird im US-Schnellbrüterumwelt-State-ment /15/ folgendermaßen abgeschätzt: Die Summe der Aktivitäten der einzelnen Isotope (A_i), bezogen auf ihre höchstzulässige Aktivität im Wasser ($\text{MPC}_{i,w}$), darf den Wert 1 nicht überschreiten:

$$\sum \frac{A_i}{\text{MPC}_{i,w}} = 1.$$

Damit ergibt sich eine jährliche Pu-Freisetzung von $1,25 \cdot 10^4 \mu\text{g}$, wie dies schon in Tabelle III.7 vermerkt worden war. Wird dieser Wert auf die jähr-

lich verarbeitete Pu-Menge von rund 150 Tonnen pro 1500 jato-Brüterbrennstofffabrikationsanlage bezogen, so ergibt sich ein Freisetzungsfaktor von $8 \cdot 10^{-11}$.

Dagegen stützt sich der im Umweltbericht über Pu-Rezyklierung im LWR /7/ genannte Wert auf Vergleiche mit den weiter oben genannten Pilotanlagen; dieser Wert wird in /7/ als typisch für Brennstoffzyklusanlagen angesehen und ist in Tabelle III.7 mit $3000 \mu\text{g}$ angegeben. Ins Verhältnis gesetzt zur jährlich durchgesetzten Pu-Menge von rund 75 Tonnen, ergibt sich hier $4 \cdot 10^{-11}$. In Anlehnung an die bei der Freisetzung an die Atmosphäre gemachte Überlegung wird für zukünftige Anlagen eine Verbesserung der Rückhaltung erwartet und der Freisetzungsfaktor als nahe beim besseren der beiden Werte liegend angenommen: $5 \cdot 10^{-11}$.

Um die Freisetzungen von Plutonium aus einer Fabrikationsanlage ins Abwasser und an die Atmosphäre ins richtige Licht zu setzen, soll hier kurz auf folgenden Aspekt hingewiesen werden: die Dosisbelastung. Obwohl die Freisetzung ins Wasser deutlich höher liegt als die an die Atmosphäre (hier um einen Faktor 50), ist die Organbelastung des Menschen über diese beiden Pfade durchaus vergleichbar. So liegen etwa nach /15/ die Organbelastungen durch Pu aus der Atmosphäre am ungünstigsten Aufpunkt pro Individuum merklich über denen der über das Abwasser freigesetzten Pu-Isotope; in "Gesmo" sind die 50 Jahr-"Commitment-Dosen" durch atmosphärische Belastung sogar bedeutend höher. Sind die Ergebnisse derartiger Betrachtungen auch sehr stark von den gewählten Standortcharakteristiken abhängig, so zeigen sie zumindest doch, daß der bloße Vergleich von freigesetzten Aktivitätsmengen nur eine ziemlich oberflächliche Beurteilung von Umweltbelastungen ermöglicht.

III. 3.2 Uranfreisetzungen

Die Zusammensetzung des Urans nach Entladung aus den Reaktoren unterschiedlichen Typs ist in Tabelle III.8 zusammengestellt:

Nuklid (HWZ)	L W R	L W R _{rez}	S B R
U-234 (2,4·10 ⁵ a)	0,74	0,66	0,092
U-235 (7,0·10 ⁸ a)	0,02	0,01	0,003
U-236 (2,3·10 ⁷ a)	0,29	0,23	0,01
U-238 (4,5·10 ⁹ a)	0,31	0,31	0,29

Tab. III.8: Uranaktivität (Ci/Tonne) zum Zeitpunkt der Refabrikation (365 Tage nach Entladung)

Die Tabelle zeigt, daß der größte Beitrag bei den Wasserreaktoren vom U-234 stammt. Die Änderung des U-234-Gehalts vom Zeitpunkt der Entladung bis zur Wiederaufarbeitung bzw. Refabrikation ist dann nicht zu vernachlässigen, wenn der Gehalt an Plutonium (insbesondere an Pu-238) beträchtlich ist. Beim SBR steigt der U-234-Anteil durch Zerfall von Pu-238 vom Zeitpunkt der Entladung bis zur Refabrikation um mehr als 50 % an. Für diesen letztgenannten Zeitpunkt gilt die Isotopenzusammensetzung in obiger Tabelle.

Für die Freisetzung an die Atmosphäre läßt sich aus /15/ der Faktor $2 \cdot 10^{-6}$ ableiten. Als Vergleich kann hier /82/ herangezogen werden; die Angaben darin beziehen sich auf die Fabrikation niedrig angereicherten Uranbrennstoffs, die bei einem Gesamtjahresdurchsatz von 600 Tonnen mit einer Gesamtaktivitätsabgabe kleiner $7,2 \cdot 10^{-3}$ Ci Uran/Jahr an die Atmosphäre verbunden ist. Dies führt auf einen Freisetzungsfaktor von $9 \cdot 10^{-6}$.

Für eine andere Uranoxid-Brennstoffanlage /83/ wurde ein Auslegungswert von 10^6 genannt; bei Messungen, die der Erweiterung dieser Anlage vorangingen und die sich über vier Jahre erstreckten, wurden Freisetzungsfaktoren ermittelt, die um drei Größenordnungen unter dem Auslegungsrichtwert lagen. Für die weiteren Betrachtungen soll hier ein Freisetzungsfaktor von 10^{-6} für Uran an die Abluft zugrundegelegt werden.

Zur Ermittlung der Freisetzung von Uran ins Abwasser werden wieder /15/ und /83/ herangezogen: entsprechend dem einen erhält man einen Wert von $5 \cdot 10^{-5}$;

auf der Grundlage von /83/ ergibt sich durch Zugrundelegung einer Höchstabgabe von 0,2 Ci Uran pro Jahr ein Freisetzungsfaktor für den Wasserpfad von $26 \cdot 10^{-5}$; als Basis für weitere Rechnungen wird ein Wert von $5 \cdot 10^{-5}$ angenommen.

III.3.3 Americium-Freisetzungen

Unter der Annahme, daß Uran und Plutonium bei der Wiederaufarbeitung fast vollständig von den übrigen Bestandteilen des Brennstoffs - Spaltprodukte und α -Strahler (die in den Abfallstrom laufen) - abgetrennt werden, kann der Aufbau von Am-241-Zerfall aus /4/ entnommen oder durch die Beziehung

$$\Delta Am^{41} \approx Pu_0^{41} \frac{\lambda(Am) \cdot \lambda(Pu)}{\lambda(Am) - \lambda(Pu)} \cdot \Delta t$$

angenähert werden. ΔAm^{41} stellt die aufgebaute Am-241-Aktivität dar, Pu_0^{41} die des Pu-241 zum Zeitpunkt der Wiederaufarbeitung, $\lambda(Am)$ und $\lambda(Pu)$ die Zerfallskonstanten und Δt den Betrachtungszeitraum bis zur Refabrikation (im Jahr nach der WA). Damit ergibt sich an Am-241-Aktivität pro GWe·a zum Zeitpunkt der Brennstoff-Fabrikation ($\Delta t \approx 1$):

SBR: 9500 Ci LWR_{rez}: 8900 Ci LWR: 4200 Ci

Falls zwischen WA und Refabrikation mehr als ein Zeitraum von etwa drei Monaten liegt, so ergibt sich aus Strahlenschutzgründen (γ -Strahlung!) die Notwendigkeit, das Am-241 quantitativ abzutrennen. Nimmt man an, daß diese Abtrennung zu 99% gelingt, und sind die für Plutonium geltenden Freisetzungsfaktoren auch für Am-241 gültig (/15/, /69/) - nämlich 10^{-12} für den Luft- bzw. $5 \cdot 10^{-11}$ für den Wasserpfad -, so ergeben sich folgende Mengen an freigesetztem Am-241:

Tab. III.9: Am-241-Freisetzungen bei der Brennstoff-Refabrikation ($\mu Ci/GWe \cdot a$)

	<u>L W R</u>	<u>L W R_{rez}</u>	<u>S B R</u>
Luft	$4 \cdot 10^{-5}$	$9 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-4}$
Wasser	$2 \cdot 10^{-3}$	$5 \cdot 10^{-3}$	$6 \cdot 10^{-3}$

In der folgenden Tabelle sind die Freisetzungsfaktoren für den Brennstoff-fabrikationsvorgang zusammengefaßt:

Tab. III.10: Freisetzungsfaktoren ($\frac{\text{freigesetzte Aktivität}}{\text{durchgesetzte Aktivität}}$) für die Brennstoff-fabrikation

Element	L u f t	W a s s e r
Uran	10^{-6}	$5 \cdot 10^{-5}$
TU-Element	10^{-12}	$5 \cdot 10^{-11}$

Die Brennstoffrefabrikation findet ein Jahr nach Entladung des abgebrannten Brennstoffs aus dem Reaktor statt. In Tab. III.11 und III.12 sind die in Luft und Wasser bei Normalbetrieb der Anlage abgeleiteten Aktivitäten zusammengestellt. Es ist hier das Uran, insbesondere über den Wasserpfad, das in Einheiten von Aktivität einen Beitrag liefert.

Tab. III.11: Freisetzungen bei der Fabrikation von Leichtwasserreaktor-Brennstoff ($\mu\text{Ci}/\text{GWe}\cdot\text{a}$)

Nuklid	A b l u f t		A b w a s s e r	
	L W R	L W R _{rez}	L W R	L W R _{rez}
U-234	17	16	840	780
U-235	0,5	-	20	12
U-236	7	5	350	270
U-238	7	7	350	360
Pu-238		0,2		7,6
Pu-239		-		0,5
Pu-240		-		0,1
Pu-241		5,7		285

Tab. III.12: Radioaktive Freisetzungen bei der SBR-Brennstofffabrikation

Nuklid	Aktiv. Gehalt ($\frac{Ci}{t \text{ S.M.}}$) nach 365 Tagen	Freisetzungs- faktor Luft	Abluft Ci/GWe·a	Freisetzungs- faktor Wasser	Abwasser $\mu\text{Ci/GWe}\cdot\text{a}$
U-234	0,092	10^{-6}	2	$5 \cdot 10^{-5}$	90
U-235	0,003		-		3
U-236	0,010		0,2		9
U-238	0,288		5		270
Pu-238	10000	10^{-12}	0,2	$5 \cdot 10^{-11}$	8
Pu-239	3600		0,07		3
Pu-240	4900		0,1		4
Pu-241	555000		10		450

Abschließend soll in Tabelle III.13 für die drei Reaktortypen eine zusammenfassende Darstellung der Freisetzung von Uran- und TU-Isotopen, normiert auf 1 GWe·a, erfolgen

Tab. III.13: Actinidenfreisetzung aus dem Brennstoffzyklus ($\mu\text{Ci}/\text{GWe}\cdot\text{a}$)

Atmosphäre:

Nuklid	Wiederaufarbeitung			Brennstofffabrikation		
	LWR	LWR _{rez}	SBR	LWR	LWR _{rez}	SBR
Uran	-	-	-	32	28	7
Pu (α)	89	181	303	-	0,2	0,37
Pu (β)	2700	5800	9300	-	5,7	10
Am (α)	4	19	47	-	-	-
Cm (α)	430	3900	650	-	-	-
$\sum \alpha$	523	4100	1000	32	28	7,4

Abwasser:

Nuklid	Brennstofffabrikation		
	LWR	LWR _{rez}	SBR
Uran	1560	1422	372
Pu (α)	-	8,2	15
Pu (β)	-	285	450
$\sum (\alpha)$	1560	1430	387

Anhang: Bemerkungen zum Hochtemperaturreaktor (HTR)

Mit einer bei der Wichtigkeit des Themas "HTR" gerade noch statthaften Knappheit sollen hier Daten über Freisetzungen zusammengestellt werden. Obwohl die Datenbasis äußerst mager ist, soll nicht jeder greifbare Literaturhinweis herangezogen werden; so sind etwa im US.-Brüter Umwelt Statement /15/ Daten über die Gesamtfreisetzung von Radionukliden aus den Brennstoffzyklen von Leichtwasserreaktor, Brüter und Hochtemperaturreaktor vergleichend einander gegenübergestellt: das schlechte Abschneiden des HTR und das gute Ergebnis für den Brüter lassen eine zu starke Einseitigkeit vermuten. Auf der anderen Seite liegen detailliertere Daten über HTR-Freisetzungen überwiegend von Forschungsstellen vor, die die Einführung dieses Reaktortyps favorisieren. Insofern ist eine Beurteilung der Daten auf ihre Belastbarkeit nicht leicht möglich. Andere Autoren /84/ weisen auf die etwa doppelt so hohe Kr-85 Erzeugung beim HTR im Vergleich zum LWR hin, machen jedoch keine Aussage über die Menge an freigesetzten Nuklide. Auf der anderen Seite wird von Schulden /85, 86/ auf die extrem hohe Spaltproduktrückhaltung in den kugelförmigen Brennelementen des Jülicher Versuchsreaktors AVR hingewiesen und ein so niedriger Kontaminationsgrad des Kühlmittels Helium angegeben, daß ein Abblasen an die Luft der Umgebung möglich wäre. Als kritisches Spaltprodukt hätte sich das Cs-137 erwiesen, bei Kühlmittel-Temperaturen oberhalb von 950⁰C wäre ein neues Spaltprodukt im Kühlgas aufgetreten: Ag-110 m.

In der abschließenden Tabelle seien Freisetzungsraten für den Reaktor (Größe etwa 1300 MW_e) und die Wiederaufarbeitungsanlage (1500 jato), wie sie bei Bonka und Vogt /57/ Verwendung finden, ergänzt durch Daten von Hilbert /40/, angegeben.

Freisetzungen aus HTR und HTR-Wiederaufarbeitungsanlage (Ci/Jahr):

	<u>HTR (1300 MW_e)</u>	<u>HTR-WA (1500 jato)</u>
H-3:	50	7,5 x 10 ⁵ (Keine Rückhaltung, ca 20% weniger als bei LWR)
C-14:	-	3 000 (ohne N-Verunreinigung)
Kr-85:	100 (10% des LWR) 1300 (/40/)	2,5 x 10 ⁷ (Keine Rückhaltung, ~ 50% mehr als bei LWR)
Kr-88:	30 400 (/40/)	
J-129:	-	0,035 (Rückhaltung 99,9%, ~1/4 weniger als LWR)
J-131:	0,003 (~1% des LWR, ~10% des Brüters)	0,1 (wie LWR)
Xe-133:	100	-
Sr-89:	-	0,004
Sr-90:	-	0,002
Cs-137:	-	0,0045

Literaturhinweise

- /1/ Stoll, P. (Bernische Kraftwerke) "Der heutige Stand der LWR-Technik". SVA-Tagung "Aussichten der verschiedenen Reaktorsysteme", Zürich (Januar 1976)
- /2/ Gall, N. "Atoms for Brazil, Danger for All". The Bulletin of the Atomic Scientists, Vol. 32 (June 1976), p. 8
- /3/ Häfele, W. und Sassin, W. Energy Strategies, IIASA, Laxenburg, RR-76-8, (March 1976)
- /4/ McGrath, P. "Radioactive Waste Management, Potentials and Hazards from a Risk Point of View". KFK-1992, (Juni 1974)
- /5/ Smith, C. "Risk Assessments for the Disposal of High Level Radioactive Wastes", UCLA dissertation, (1975)
- /6/ The Safety of Light Water Reactors and Related Facilities, WASH-1250, USAEC, (1973)
- /7/ Generic Environmental Statement on Mixed Oxide Fuel Used in LWRs, WASH-1327, USAEC, (1974)
- /8/ Erdmann, Reynolds "Radionuclide Behavior During Normal Operation of LMFBRs", Nucl. Safety 16, 1 (1975)
- /9/ Erdmann, Reynolds aus Meek, Rider: Compilation of Fission Product Yields, USAEC-Report NEDO-12154, GE (1972)
- /10/ Bell "ORIGEN", - The ORNL Isotopic Generation and Depletion Code, ORNL-4628, (1973)
- /11/ "Siting of Fuel Reprocessing Plants and Waste Management Facilities", ORNL-4451, (1970)

- /12/ Nuclear Waste Management and Transportation -
Quarterly Progress Report, (Juli-Sept. 1974),
BNWL-1876
- /13/ Liikala
(Battelle Richland) Pu-Information Meeting, (Jan. 1974)
CONF-740115
- /14/ Deonigi, D.
(Battelle Richland) Nuclear Technology 5, Vol. 18 (1973) p. 80
- /15/ Proposed Final Environmental Impact Statement
on LMFBRs, WASH-1535, US-ERDA, (Juni 1975)
- /16/ Schikorr, M. "Determination of the Isotopic Composition
of Discharged SNR-2 Fuel", (Februar 1976),
private Mitteilung, unveröffentlicht
- /17/ Huppert, K. "Betriebserfahrungen mit der WAK", Atomwirt-
schaft 7/8, Vol. 20 (1975), S. 342
- /18/ Gera, F.,
Jacobs, D. "Hazard Potential of Radioactive Wastes".
Intern. Conference on Radioecology Applied
to the Protection of Man and his Environment,
EUR-4800, Rom, (Sept. 1971)
- /1/ Richter,
(Ostberlin) Symposium "Management of Radioactive Wastes
from the Nuclear Fuel Cycle", IAEA, Wien,
(März 1976)
- /20/ Gasteiger, R.,
Höhlein, G. "Behandlung radioaktiver Abfälle aus Wieder-
aufarbeitungsanlagen", Atomwirtschaft 7/8,
Vol. 20 (1975), S. 349
- /21/ Krause, H. "Anfall radioaktiver Abfälle in der Bundesre-
publik Deutschland", Atomwirtschaft 7, Vol. 21
(1976), S. 343
- /22/ "Tritium Release from Nuclear Power Stations",
Tritium-Symposium Las Vegas (1971)
- /23/ Aurand, K. "Erfassung radioaktiver Abwässer aus Kern-
kraftwerken", Atomwirtschaft 6, Vol. 19
(1974), S. 296

- /24/ Bükér, H. et al. "Kernenergie und Umwelt", KFK 1366, (1973)
- /25/ Eickelpasch, N. Atom und Strom 9/10, Vol. 18 (1972), S. 125
- /26/ ORNL-TM-2793, (1970)
- /27/ Chemical Engineering Division, ANL-7375, (1967)
- /28/ Schnez, Laser et al. "Tritium in Wiederaufarbeitungsanlagen", Jül-1099, (August 1974)
- /29/ Broothaerts, J., et al. "Treatment and Control of Gaseous Effluents from LWRs and Reprocessing Plants", Symposium on the Management of Radioactive Wastes, IAEA Wien, (März 1976), IAEA-SM-207/8
- /30/ Dillon, R. "Chemical Decontamination and Melt Densification of Chop-Leach Fuel Hulls", IAEA Wien, (März 1976), IAEA-SM-207/69
- /31/ Wild, H., (GfK) persönliche Mitteilung (1974), unveröffentlicht
- /32/ Böhnert, R., Bonka, H. Bericht Jül.-763 RG, (1971)
- /33/ Ebersole, E., Vroman Tritium in the EBR-II Reactor Complex, Trans. Am. Nucl. Soc. 14, 1, (1971)
- /34/ Auerbach, S., (ORNL) Meeting on Advanced Nuclear Systems, Pittsburg, (März 1976), Nucl. News, 19 (1976), p. 88
- /35/ Kunz, C., et al. "C-14 Gaseous Effluents form PWRs", Population Exposure Symposium Knoxville, Ten., (Oct. 1974)
- /36/ Magno, P., et al. "A Consideration of the Significance of C-14 Discharges from the Nuclear Power Industry", 13th AEC Air Cleaning Conference, San Francisco (1974)

- /37/ Schröder, R., private Mitteilung (1976), unveröffentlicht
(GfK)
- /38/ IRS-Kurzinformation 11, (1976): "Neue
Ergebnisse über die Auswirkung von C-14".
- /39/ Till, E., "Potential Radiation Doses from C-14 Pro-
Bond, W. duced in Advanced FBR Fuels", Intern. Confe-
rence on World Nuclear Power, Washington,
D.C., (Nov. 1976)
- /40/ Hilbert, F. "Erzeugung und Freisetzung von radioaktiven
Krypton- und Xenonisotopen", KFK 2035, (1974)
- /41/ Becker, D., "Zur Erfassung der radiologischen Belastung
et al. durch KKWe", Atomwirtschaft 9, Vol. 20 (1975),
S. 435
- /42/ Fitoussi, L., "Considerations Sanitaires et Techniques
(CEA) Relatives au Controle des Effluents Gazeux
des Centrales Nucléaires", Seminar on the
Monitoring of Radioactive Effluents,
Karlsruhe (1974)
- /43/ PNS-Jahreskolloquium 1975, KFK 2244
- /44/ Miguel, P., "Progress in Areas of Relevance to the Treat-
Kroebel, R., ment of Gaseous Effluents from Reprocessing
et al. Plants", Sympos. Management Radioactive Waste,
IAEA-Wien, (März 1976), IAEA-SM-207/23
- /45/ KEWA private Mitteilung (1976), unveröffentlicht
- /46/ Porz, F. "Erzeugung und Freisetzung von radioaktiven
Jodisotopen", KFK 1912
- /47/ "Emissionsquellstärken von Kernkraftwerken",
Schriftenreihe Kernforschung 6, Bundesministe-
rium für Bildung und Wissenschaft, (1972)
- /48/ Hoffmann, F. "A Reassessment of the Parameters Used to Pre-
dict the Environmental Transport of I-131
from Air to Milk", IRS-W-13, (April 1975)

- /49/ Kiefer, H.,
Koelzer, W. Jahresbericht 1975 der Abteilung Sicherheit und
Strahlenschutz, KFK 2266
- /50/ Pfeiffer, K.,
(KWU) persönliche Mitteilung (1976), unveröffentlicht
- /51/ Bonka, H.,
Brüssermann, K. "Abschätzung der zukünftigen Umgebungsbelastung
in der BRD durch radioaktives Jod", Reaktor-
tagung Karlsruhe, (1973)
- /52/ Soldat, J. "Radiation Doses from Iodine-129 in the En-
vironment", Health Physics 30, (1976),
p. 61-70
- /53/ Schüttelkopf, H. "Die Radioökologie des J-129", KFK-Nachrichten
4/75
- /54/ Matuszek, et al. Warschau Konferenz, (Nov. 1973), IAEA-SM-180/39
- /55/ Wilhelm, J.,
et al. "Spaltjodabtrennung in KKW und Wiederaufarbei-
tungsanlagen", PNS-Jahreskolloquium, (1975),
KFK-Bericht 2244
- /56/ Atomwirtschaft 5, Vol. 21 (1976), S. 225
- /57/ Bonka, H.,
Vogt, K. "Die Strahlenbelastung durch aus KKW und Wieder-
aufarbeitungsanlagen freigesetzte Nuklide",
VDI-Z 117, (1975)
- /58/ Schiesser, D. "Erzeugung und Freisetzung von Sr, Ru, Cs, Ce",
KFK 2153, (1975)
- /59/ USAEC "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, (1975)
- /60/ Hicks, H. "Recent Concern with Reactor Coolant Chemistry
Technology in Pressurized Water Reactors",
Nuclear Technology, Vol. 29 (Mai 1976), P. 146
- /61/ Vossebreker, persönliche Mitteilung (1976), unveröffentlicht

- /62/ Walter, R.,
Arndt, J.,
(Institut für Wasser-,
und Lufthygiene des
Bundesgesundheitsamtes
Berlin)
- Bundesgesundheitsblatt 18, (April 1975)
S. 113
- /63/ Herrmann, et al.
- "Radiological Effects of a Nuclear Power Plant on a Riversystem, Demonstrated by the Nuclear Power Plant Gundremmingen", IAEA-Conference on Radiological Impacts, Otaniemi, Finnland (1975)
- /65/ Aurand,
- "Regulation of the Release of Radioactive Waste Water from Nuclear Power Plants in the FRG", Seminar on the Monitoring of Radioactive Effluents, Karlsruhe, (1974)
- /66/ Witherspoon, J.,
et al.
- "Dose Estimation and Prediction of Radioactive Effects on Aquatic Biota", IAEA, Otaniemi (1975)
- /67/ Ullmann, H.,
et al.
- Die Radioaktivität im Primärsystem natriumgekühlter Schneller Reaktoren, Kernenergie 4, (1973)
- /68/ Eickelpasch, N.
- "Neun Jahre Betriebserfahrung Gundremmingen", Seminar Kernforschungszentrum Karlsruhe, (Feb. 1976)
- /69/
- Plutonium and Other Transuranium Elements, WASH-1359, (Dez. 1974)
- /70/ Koch, G.,
Ochsenfeld, W.,
et al.
- "Überlegungen zum Fließschema einer Wiederaufarbeitungsanlage", Atomwirtschaft 3, Vol. 20 (1975), S. 123
- /71/ Zühlke, P.
- "Wiederaufarbeitung an der Schwelle zur wirtschaftlichen Nutzung", Reaktortagung des Deutschen Atomforums, (April 1974)
- /72/ Russell, et.al.
- Management of Radioactive Waste from Fuel Re-processing, OECD/IAEA, Paris, (1972)
- /73/ Cochran, J.
- "Environmental Impact of the Reactor and Its Supporting Facilities", (1974)

- /74/ Laser, et al. "Emission of Radioactive Aerosols from Reprocessing Plants", IAEA-SM-181/23, (1974)
- /75/ Cochran, J.,
et al. Report BRH/NERHL 70-3, (1970)
- /76/ Kiefer, H.,
Koelzer, W. KFK-Berichte 1565, 1818
- /77/ "Doses at Separation Facilities", Docket 50-332-27
- /78/ Cooper, R. "Environmental Aspects of Breeders ", Nucl. Technology 7, Vol. 27 (Sept. 1975), p. 166
- /79/ "Environmental Survey of the Nuclear Fuel Cycle", USAEC, (Nov. 1972)
- /80/ Federal Register, Part 190 to Title 40 CFR, Subpart B (Nucl. News, Juli 1975, S. 41)
- /81/ Ettinger, H.,
et al. "Performance of Multiple HEPA Filters against Pu-Aerosols", Report LA-5170-PR, (Jan. 1973)
- /82/ Roepenack, H.,
Hörber, H.
(Reaktorbrennelemente-
Union RBÜ) persönliche Mitteilung (Okt. 1975),
unveröffentlicht
- /83/ Exxon Nuclear
Company UO₂-Fuel Plant Expansion, USAEC 70-1257, (1974)
- /84/ Angelo, J.,
Post, R.,
(Tucson) "Tritium, Krypton, Iodine and Xenon Production in an Advanced-Design HTGR", IAEA-Konferenz Physical Behavior of Radioactive Contaminants in the Atmosphere, Wien, (Nov. 1973), IAEA-SM-181/9
- /85/ Schulten, R. Seminar des Kernforschungszentrums Karlsruhe, (1975), unveröffentlicht
- /86/ Schulten, R. "HTR als Wärmequelle", SVA-Tagung, Zürich (Jan. 1976)