

KfK 5055
Juli 1992

Tritium

Redaktion: A. Fiege
Projekt Kernfusion

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Kernforschungszentrum Karlsruhe
Projekt Kernfusion

KfK 5055

Tritium

Redaktion: A. Fiege

Projekt Kernfusion

Beiträge von:

E. Hutter

Hauptabteilung Ingenieurtechnik

H. Dertinger, S. Diabaté, H. Dilger, S. Strack, A. Wicke

Hauptabteilung Sicherheit

K. Heiß, G. Jourdan, H. Kraemer

Hauptabteilung Versuchstechnik / Tritiumlabor

J. Ehrhardt

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

H. Albrecht, H. R. Ihle, R.-D. Penzhorn, H. Wertenbach

Institut für Radiochemie

W. Kramer

Institut für Reaktorsicherheit

G. Baumgärtel, D. Stünkel

Koordinationsstelle Genehmigungsverfahren

W. Raßkob

DTI Dr. Trippé Ingenieurgesellschaft m.b.H., Karlsruhe

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Als Manuskript gedruckt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003

Zusammenfassung

Dieser Bericht enthält zum Stichwort "Tritium" Informationen über Chemie, Physik, Vorkommen, Herstellung, Verwendung, Technologie, Freisetzungen, Radioökologie und -biologie, Dosisabschätzungen, Strahlenschutzmaßnahmen und rechtliche Aspekte.

Ziel ist die Bereitstellung einer verlässlichen Datenbasis für die in der Öffentlichkeit geführte Diskussion über Tritium, insbesondere seinen Einsatz in zukünftigen Kernfusionsanlagen und seine radiologische Bedeutung.

Tritium

Abstract

This report contains information on chemical and physical properties, occurrence, production, use, technology, release, radioecology, radiobiology, dose estimates, radioprotection and legal aspects of tritium.

The objective of this report is to provide a reliable data base for the public discussion on tritium, especially with regard to its use in future nuclear fusion plants and its radiological assessment.

Inhalt

	Seite
1. Eigenschaften von Tritium	1
1.1 Kerneigenschaften	1
1.2 Fusionsreaktionen leichter Kerne	2
1.3 Physikalisch-chemische Eigenschaften, Isotopieeffekte	4
1.3.1 Ortho- und para-H_2, -D_2 und -T_2	6
1.3.2 Sättigungsdampfdrücke, Tripelpunktdaten, kritische Daten und chemische Austauschreaktionen der isotopen Wasserstoffmoleküle	9
1.4 Tritiumverbindungen	12
1.4.1 Austauschreaktionen und die Rolle des $(^3HeT)^+$-Ions	12
1.4.2 Direkte chemische Synthese	14
1.4.3 Rückstoßmarkierung	15
1.5 Löslichkeit und Transport von Tritium in Metallen, oxidischen Festkörpern und Elastomeren	16
1.6 Zusammenfassung	22
1.7 Literatur zu Kapitel 1	23
2. Vorkommen, Herstellung und Verwendung von Tritium	25
2.1 Vorkommen von Tritium	25
2.1.1 Tritium in der Natur	25
2.1.2 Tritium in kosmischen Prozessen	26
2.1.3 Tritium in Kernspaltungsreaktoren	27
2.1.4 Tritium in der Wiederaufarbeitung	29
2.2 Industrielle Herstellung von Tritium	32
2.2.1 Tritiumgewinnung durch Bestrahlung von Lithium in Kernreaktoren	32
2.2.2 Tritiumextraktion aus dem Deuteriumoxid von Schwerwasserreaktoren	33
2.3 Verwendung von Tritium	34
2.3.1 Industrielle Verwendung von Tritium	34
2.3.2 Wissenschaftlich-technischer Einsatz	35
2.3.3 Militärische Anwendungen	36
2.3.4 Tritium in Fusionsanlagen	37

	Seite
2.4 Zusammenfassung	42
2.5 Literatur zu Kapitel 2	43
3. Tritiumtechnologie	47
3.1 Vorbemerkung	47
3.2 Einschluß	48
3.2.1 Mobilität von Tritium	48
3.2.2 Barrieren	48
3.2.3 Reinigung der Atmosphäre	52
3.2.4 Tritiumüberwachungsbereiche	53
3.3 Lagerung	54
3.4 Transfer	57
3.4.1 Ansaugen durch Gettern	57
3.4.2 Pumpen	58
3.5 Reinigung	60
3.5.1 Adsorption der Verunreinigungen und katalytische Oxidation	60
3.5.2 Gettern der Verunreinigungen an heißem Metall	61
3.5.3 Permeationsfilter und katalytische Umsetzung	62
3.6 Isotopentrennung	64
3.6.1 Kryogene Isotopentrennung	64
3.6.2 Gaschromatographische Isotopentrennung	66
3.6.3 Isotopentrennung durch Thermodiffusion	67
3.7 Dekontamination	68
3.7.1 Ausheizen und Evakuieren	68
3.7.2 Isotopenaustausch	71
3.8 Entsorgung von tritiumhaltigen Abfällen	72
3.8.1 Einteilung tritiumhaltiger Abfälle	73
3.8.2 Abfallvorbehandlung	74
3.8.3 Abfallbehandlung	75
3.8.4 Verpackung von tritiumhaltigen Abfällen	76
3.8.5 Zwischenlagerung in einer Landessammelstelle	76
3.8.6 Transport von radioaktiven Abfallgebinden	77
3.8.7 Endlagerung	78

	Seite
3.9 Analytische Meßtechnik	78
3.9.1 Methoden zur Tritiumaktivitätsmessung	78
3.9.2 Methoden zur Identifizierung tritiumhaltiger Verbindungen	83
3.10 Tritumbilanzierung	87
3.10.1 Einleitung	87
3.10.2 Die Bilanzposten einer Tritiummaterialbilanz	88
3.11 Forschungsprogramme zur Tritiumtechnologie	92
3.11.1 Pumpensysteme	92
3.11.2 Einzelkomponenten für den Brennstoffkreislauf	93
3.11.3 Entwicklung integraler Prozesse zur Brennstoffreinigung	95
3.12 Zusammenfassung	95
3.13 Literatur zu Kapitel 3	96
4. Tritiumfreisetzung	102
4.1 Freisetzung aus bestehenden Einrichtungen im Normalbetrieb	102
4.2 Freisetzung aus bestehenden Einrichtungen bei Störfällen	108
4.3 Tritiumfreisetzung durch Kernwaffenexplosionen	108
4.4 Erwartete Tritiumfreisetzung bei Fusionsanlagen	109
4.5 Radiologische Auswirkungen von Tritiumfreisetzung	110
4.6 Zusammenfassung	111
4.7 Literatur zu Kapitel 4	113
5. Radioökologie und Radiobiologie	115
5.1 Tritium in der Atmosphäre	116
5.1.1 Ausbreitung in der Atmosphäre	116
5.1.2 Deposition aus der Atmosphäre	117
5.2 Tritium im Boden	118
5.2.1 Deposition von HT und HTO am Boden	118
5.2.2 Reemission von HTO aus dem Boden	121

	Seite
5.3 Tritium im Grundwasser	122
5.4 Tritium in Pflanzen	123
5.4.1 Tritium im pflanzlichen Gewebewasser	124
5.4.2 Dynamische und statische Modellierung des Verhaltens von HTO	125
5.4.3 Organisch gebundenes Tritium (OBT)	127
5.5 Tritium in aquatischen Ökosystemen	131
5.6 Tritium in Tieren und Menschen	134
5.6.1 Aufnahme von Tritium	134
5.6.2 Ausscheidung von Tritium	135
5.6.3 Einfluß des OBT auf die Dosis	137
5.6.4 Tritiumanreicherung in den Nahrungsketten	139
5.7 Auswirkungen von Tritiumemissionen auf die Umwelt	141
5.7.1 Kurzzeitige Freisetzung	141
5.7.2 Chronische Freisetzung	143
5.7.3 Globale Ausbreitung von Tritium	144
5.8 Somatische und genetische Wirkungen von Tritium	146
5.8.1 Tritium in nicht-austauschbaren Wasserstoffpositionen der DNA	147
5.8.2 Tritiierte Aminosäuren und RNA-Vorstufen	148
5.8.3 Linearer Energie-Transfer (LET) und Relative Biologische Wirksamkeit (RBW) von Tritium-β-Strahlung	149
5.8.4 Faktoren, die zu einer Erhöhung der RBW führen	149
5.8.5 Experimentelle RBW-Werte für kultivierte Zellen und Embryonen	150
5.8.6 Somatische und genetische Tritiumwirkungen im Tierexperiment	151
5.8.7 Der Qualitätsfaktor	152
5.9 Forschungsprogramme zur Radioökologie	153
5.9.1 Ertüchtigung von Computermodellen	153
5.9.2 Dosimetrie von Tritium	154
5.10 Zusammenfassung	154
5.11 Literatur zu Kapitel 5	156

	Seite
6. Abschätzung der radiologischen Auswirkungen von Tritiumfreisetzung auf die Bevölkerung	162
6.1 Strahlenexposition durch luftgetragene Tritiumfreisetzung	162
6.1.1 Freisetzung während des Normalbetriebs	162
6.1.2 Unfallbedingte Freisetzung	171
6.2 Strahlenexposition bei der Ableitung von Tritium mit dem Abwasser	180
6.2.1 Grundlagen	180
6.2.2 Expositionspfade	180
6.2.3 Berechnung der Strahlenexposition	181
6.3 Zusammenfassung	185
6.4 Literatur zu Kapitel 6	187
7. Strahlenschutz	189
7.1 Schutzziele	189
7.1.1 Radiotoxische Einwirkungsmöglichkeiten von Tritium	189
7.1.2 Primäre und abgeleitete Grenzwerte für die Exposition mit Tritium	190
7.1.3 Festlegung von betrieblichen Interventionswerten	191
7.2 Arbeitsplatz- und Personenüberwachung	191
7.2.1 Schutz- und Überwachungsstrategie	191
7.2.2 Meßgeräte	192
7.2.3 Organisatorischer Ablauf der Arbeitsplatz- und Personenüberwachung	193
7.2.4 Schutzkleidung	194
7.2.5 Strahlenschutzmaßnahmen bei Montagearbeiten an Handschuhkästen	194
7.2.6 Strahlenschutzmaßnahmen bei Stör- und Unfällen	194
7.3 Fortluft-, Abwasser- und Umgebungsüberwachung	195
7.3.1 Rechtliche Grundlagen	195
7.3.2 Fortluftüberwachung	196
7.3.3 Abwasserüberwachung	197
7.3.4 Umgebungsüberwachung	198
7.4 Zusammenfassung	199
7.5 Literatur zu Kapitel 7	200

	Seite
8. Rechtliche Aspekte und Vorschriften beim Umgang mit Tritium	201
8.1 Einordnung des Tritiums in das Rechtsgefüge des Deutschen Atomgesetzes (AtG)	201
8.1.1 Tritium als Nebenprodukt in kerntechnischen Anlagen	201
8.1.2 Tritium als Nebenprodukt beim Umgang mit Kernbrennstoffen außerhalb von kerntechnischen Anlagen	202
8.1.3 Verwendung von Tritium außerhalb von kerntechnischen Anlagen und eines genehmigungspflichtigen Umgangs mit Kernbrennstoffen	202
8.1.4 Verwendung von Tritium als Brennstoff in Kernfusionanlagen	204
8.1.5 Ein- und Ausfuhr von Tritium, Beförderung von Tritium	204
8.2 Rechtliche Behandlung des Umgangs mit Tritium im internationalen Vergleich	205
8.3 Konkretisierung der Genehmigungsvoraussetzungen aus § 6 Abs. 1 Strahlenschutzverordnung (StrlSchV)	206
8.3.1 Schutzzvorschriften für die Umgebung	206
8.3.2 Schutz des eingesetzten Personals	207
8.3.3 Schutz gegen Störmaßnahmen und sonstige Einwirkungen Dritter	208
8.4 Restriktionen unter dem Polierationsgesichtspunkt	209
8.5 Literatur zu Kapitel 8	209
9. Kurzlexikon	210
9.1 Kernphysikalische und radiologische Begriffe	210
9.2 Präfixe für dezimale Vielfache und Teile von Einheiten	218
9.3 Einheiten der Aktivität und Dosis	218
9.4 Literatur zu Kapitel 9	219

1. Eigenschaften von Tritium

H. R. Ihle, R. - D. Penzhorn

1.1 Kerneigenschaften

Die Atome eines Elementes können bei gleicher Protonenzahl im Kern eine unterschiedliche Neutronenzahl besitzen. Solche Atome mit gleicher Protonen- bzw. Kernladungszahl, aber unterschiedlicher Neutronenzahl bezeichnet man als Isotope. Sie unterscheiden sich im allgemeinen nicht in ihren chemischen, wohl aber in ihren physikalischen Eigenschaften.

Beim Wasserstoff unterscheidet man drei verschiedene Isotope:

- den einfachen Wasserstoff oder Protium (^1H oder H), dessen Kern nur aus einem Proton (p) besteht,
- den schweren Wasserstoff oder Deuterium (^2H oder D), dessen Kern (das Deuteron) ein Proton und ein Neutron (n) besitzt und
- den überschweren Wasserstoff oder Tritium (^3H oder T), dessen Kern (das Triton) ein Proton und zwei Neutronen aufweist.

Tritium ist das einzige radioaktive Isotop des Wasserstoffs. Es zerfällt mit einer Halbwertszeit von etwa 12,3 Jahren unter Aussendung von β -Strahlung (d.h. Elektronen) zu Helium-3 (^3He).

Tritium ist das Radionuklid mit der geringsten Zerfallsenergie aller bekannten β -Strahler; der Zerfall ist frei von begleitender Gammastrahlung. Wie aus dem β -Energiespektrum des Tritiumzerfalls ersichtlich, reichen die Energien der emittierten Elektronen von sehr niedrigen Werten bis zu einer maximalen Energie von 18,54 keV (siehe Abb. 1-1). Die β -Strahlung des Tritiums hat nur eine sehr geringe Reichweite (in Luft beträgt die maximale Reichweite 6 mm und die mittlere 0,5 mm; die Reichweite in Wasser liegt bei 6 μm). Die Abschirmung dieser Strahlung ist problemlos möglich.

Für die Berechnung der Zerfallsenergiedichte ist die mittlere Energie der β -Teilchen maßgeblich. Das Tritium ist ein Radionuklid mittlerer spezifischer Aktivität: Innerhalb eines Jahres zerfallen etwa 5,5 %. Für die breiten Anwendungen als "Tracer nuklid" (Leitisotop) für Wasserstoff ist die spezifische Radioaktivität immerhin hoch genug, um einen sehr empfindlichen Nachweis zu ermöglichen. Tabelle 1-1 faßt die wichtigsten Kerneigenschaften von Tritium zusammen [1-1].

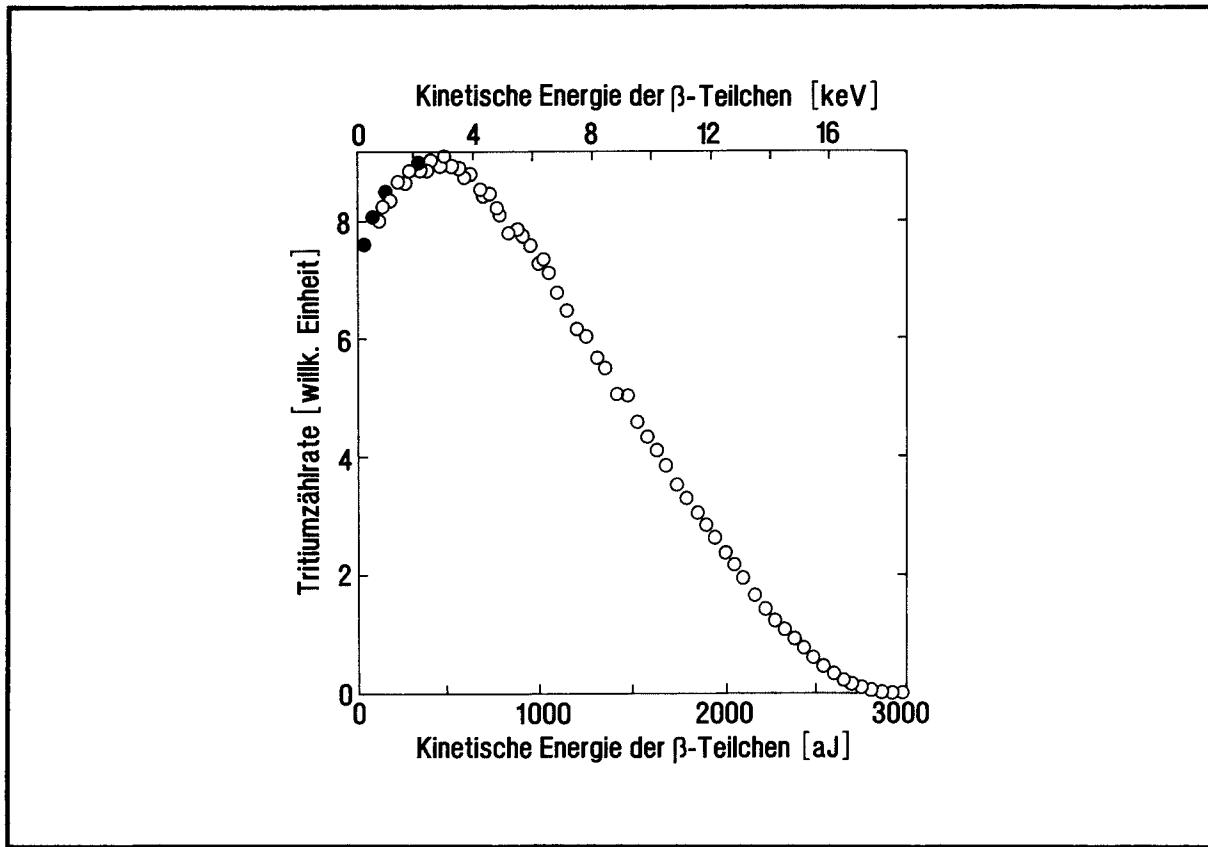


Abb. 1-1: Hochauflöste Spektrum der kinetischen Energie der Tritium- β -Teilchen aus zwei verschiedenen Messungen (offene u. geschlossene Kreise) nach [1-1], S. 209
(aJ = 1E- 18 J)

Zerfallsart *	$T = {}^3\text{He} + \beta^- + \bar{\nu}$
Halbwertszeit	12,3232 [a]
Zerfallskonstante λ	1,782 E -09 [s ⁻¹]
Spezifische Aktivität	3,558 E 14 [Bq/g]
Mittlere β - Energie	5,685 [keV]
Max. β - Energie	18,54 [keV]
Zerfallsenergiedichte	0,3240 [W/g]
Atomgewicht	3,0160497
Kernspin	1/2

Tab. 1-1: Kerneigenschaften von Tritium
* $\bar{\nu}$ = Antineutrino

1.2 Fusionsreaktionen leichter Kerne

Die Kerne leichter Atome, besonders die der Wasserstoffisotope, können bei hohen Temperaturen miteinander verschmelzen (fusionieren). Dabei werden große Energiemengen frei. Die wichtigsten Fusionsreaktionen leichter Kerne sind in Ta-

belle 1-2 aufgeführt. In Abb. 1-2 ist die Reaktionsgeschwindigkeit für die in Tabelle 1-2 genannten Reaktionen in Abhängigkeit von der Temperatur bzw. der kinetischen Energie der Teilchen dargestellt [1-1].

Reaktion*	Energie** [MeV]
(I) $D + T = {}^4\text{He} + n$	17,6
(IIa) $D + D = T + H$	3,98
(IIb) $D + D = {}^3\text{He} + n$	3,25
(III) ${}^3\text{He} + D = {}^4\text{He} + H$	18,3
(IV) $T + T = {}^4\text{He} + 2n$	11,3
(V) ${}^3\text{He} + T = {}^4\text{He} + D$	14,3

Tab. 1-2: Fusionsreaktionen

* H, D, T bedeuten hier Kerne, nicht Atome

** 1 eV = 1,602189 E-19 J

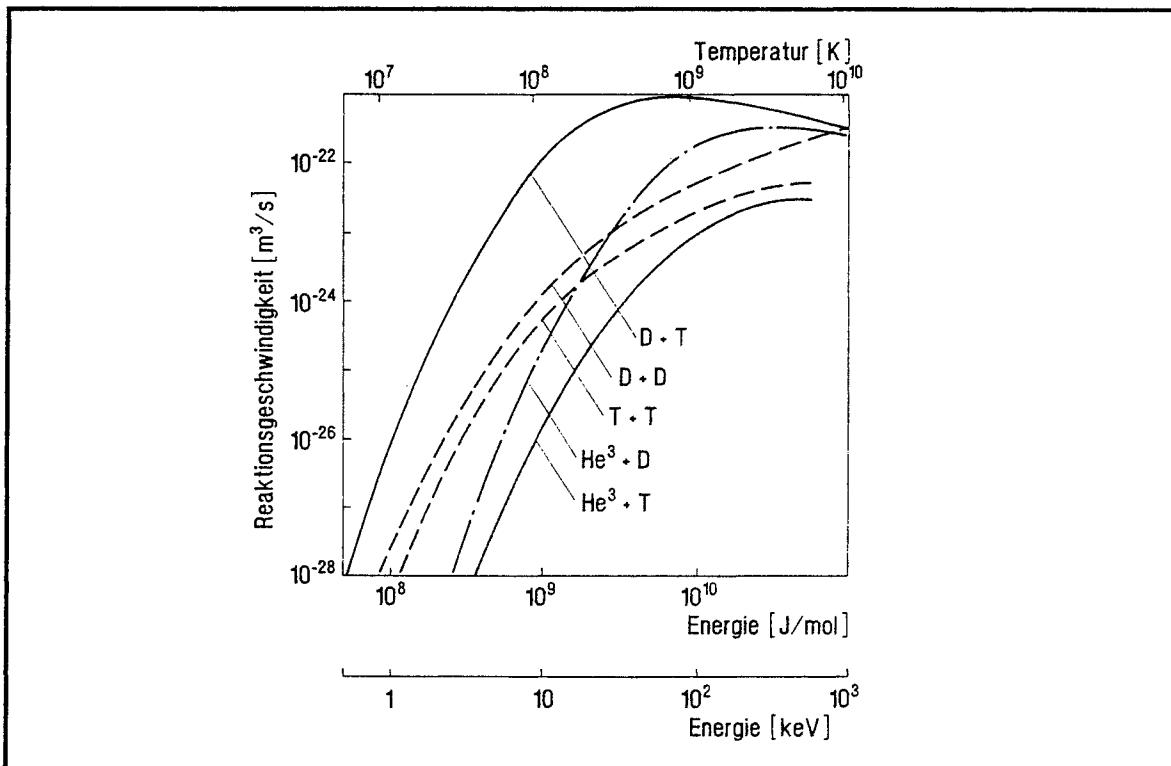


Abb. 1-2: Reaktionsgeschwindigkeiten der wichtigsten Kernfusions-Reaktionen in Abhängigkeit von der Temperatur

Wie aus Abb. 1-2 ersichtlich, ist das Zustandekommen der Kernfusion für die Reaktion (I) sehr viel wahrscheinlicher als für alle anderen Reaktionen. Daher wird in Konzeptstudien künftiger Fusionsreaktoren meist die auf der Fusion von Tritonen mit Deuteronen beruhende Reaktion zugrunde gelegt (vergl. Kap. 2.3.4). Um

Reaktion (I) zu nutzen, muß Tritium durch Reaktionen der frei werdenden Neutronen mit Lithiumkernen gewonnen werden. Die Reaktionen (IIa) und (IIb) verlaufen mit gleicher Geschwindigkeit. Das für Reaktion (III) benötigte ^3He kann auf der Erde nur durch Zerfall von Tritium mit vertretbarem Aufwand gewonnen werden. Auch bei allen anderen hier aufgeführten Fusionsreaktionen wird Tritium verbraucht oder erzeugt.

Die Reaktionen zwischen leichten Kernen können durch Myonen, μ^- , "katalysiert" werden, z. B. entsprechend Reaktion



Myonen entstehen beim Zerfall von Pionen, π^- , die in 20 ns zu Myonen und Antimyonen-neutrinos, $\bar{\nu}_\mu$, zerfallen:



Pionen entstehen durch Kollision hochenergetischer Nukleonen mit anderen Kernen.

Die durch Myonen katalysierte Fusion leichter Kerne mit positiver Energiebilanz ist nach heutigem Wissen als Energiequelle nicht aussichtsreich.

1.3 Physikalisch-chemische Eigenschaften, Isotopieeffekte

Die drei Wasserstoffisotope H, D und T bilden drei homonukleare Moleküle, (H_2 , D_2 und T_2) und drei heteronukleare Moleküle (HD, HT und DT), deren Eigenschaften erheblich voneinander abweichen. Dies ist hauptsächlich auf die Massenunterschiede der Wasserstoffisotope zurückzuführen, was in verschiedenen Nullpunktsenergien und Energiezustandssummen zum Ausdruck kommt.

In der Quantenmechanik versteht man unter Nullpunktsenergie, E_0 , die Energie des als "Oszillatoren" betrachteten zweiatomigen Moleküls im tiefsten Energiezustand, $E_0 = 1/2 \text{h}\nu$, wobei h das Planksche Wirkungsquantum und ν die Frequenz der Schwingung der quasi-elastisch verbundenen Atome der Moleküle um ihre Gleichgewichtslage ist. Neben der linearen Schwingung um eine Gleichgewichtslage und der Eigenrotation führen die Kerne eines zweiatomigen Moleküls auch eine Rotationsbewegung um eine senkrecht zu ihrer Verbindungsleitung gedachte Achse aus, deren Energie von der sogenannten Rotationsquantenzahl J abhängt ($J=0, 1, 2, 3, \dots$). Auf diese Zusammenhänge wird im nächsten Unterkapitel eingegangen.

Abb. 1-3 zeigt die Schwingungsenergie eines zweiatomigen Moleküls als Funkti-

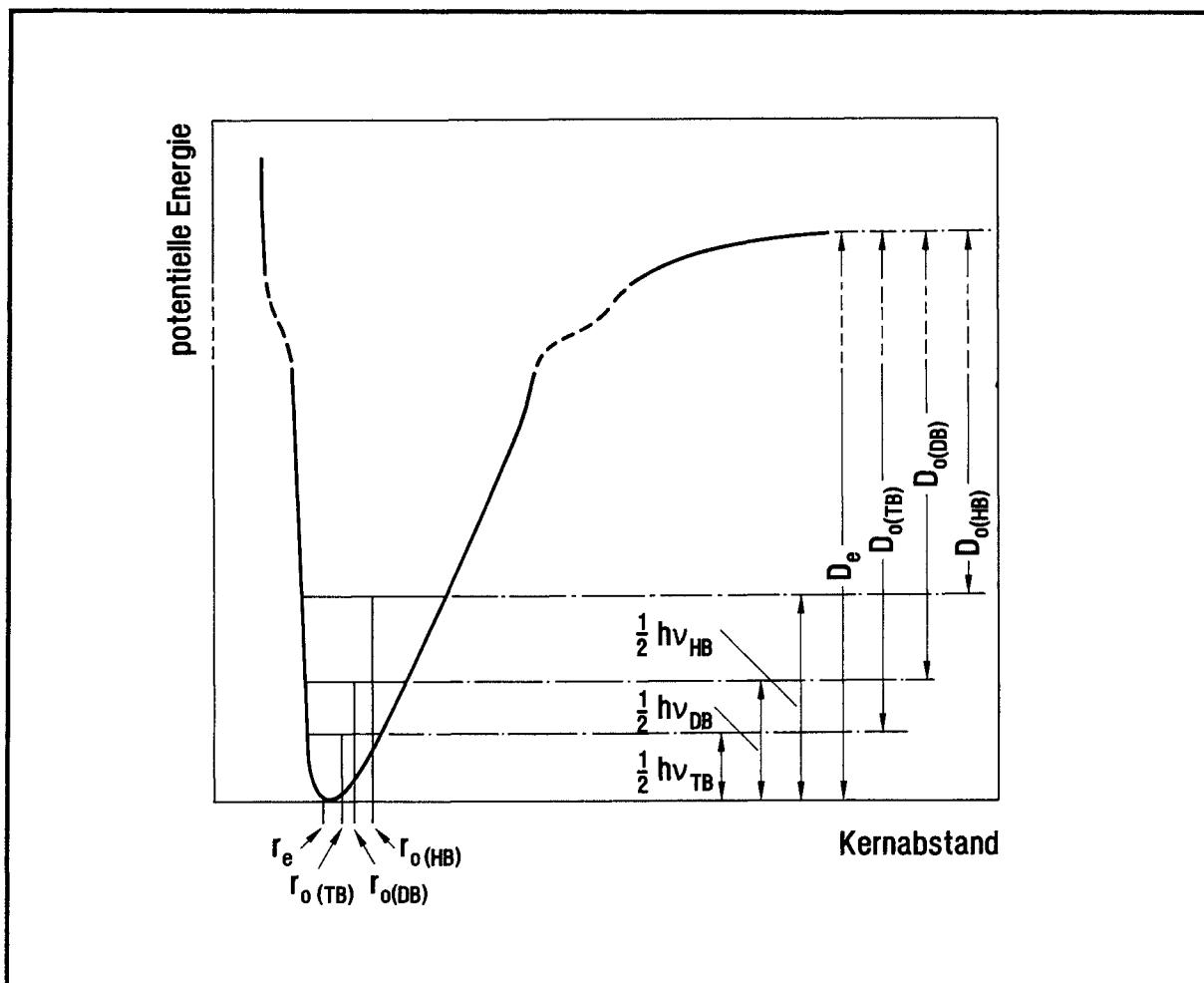


Abb. 1-3: Potentialkurven (H, D, T)-B, wobei B ein beliebiges Atom darstellt [1-2].

on des Atomkernabstandes, r , wobei r_0 der Abstand der Atomkerne im Gleichgewicht ist. Man bezeichnet eine solche Kurve als Potentialkurve. Sie wird im rechten Teil durch die sogenannte Dissoziationsenergie, D , begrenzt, das ist die Energie, bei der das Molekül dissoziiert.

Die isotopen Wasserstoffmoleküle zeigen erhebliche Unterschiede in den gemessenen Dissoziationsenergien, D_o . In Abb. 1-3 ist der Zusammenhang zwischen der Nullpunktsenergie $E_o = 1/2 \hbar v$, der Dissoziationsenergie vom Minimum der Potentialkurve, D_e , und der Dissoziationsenergie bei 0 K, D_o , z. B. für drei Bindungen HB, DB und TB dargestellt, wobei B ein beliebiger Molekülrest ist. Es besteht folgender Zusammenhang:

$$D_e = D_o(\text{HB}) + 1/2 \hbar v_{\text{HB}} = D_o(\text{DB}) + 1/2 \hbar v_{\text{DB}} = D_o(\text{TB}) + 1/2 \hbar v_{\text{TB}} \quad (1-3)$$

Die kleinere Nullpunktsenergie der Bindung, die das schwerere Wasserstoffatom enthält, bewirkt eine Erhöhung der Dissoziationsenergie D_o , eine Verringerung

des Abstandes r_0 und eine Verringerung der Schwingungsamplitude. Daher ist auch T_2 das stabilste Molekül der sechs isotopen Wasserstoffe (vgl. Tabelle 1-3).

Spezies	E_0 [kJ/Mol]	D_0 [kJ/Mol]
H_2	25,96	432,08
HD	22,53	435,51
D_2	18,44	439,61
HT	21,26	436,78
DT	16,85	441,18
T_2	15,10	444,98

Tab. 1-3: Nullpunktsenergie und Dissoziationsenergie der isotopen Wasserstoffmoleküle

1.3.1 Ortho- und para- H_2 , - D_2 und - T_2

Die besondere Eigenschaft der Kernspinsomerie der isotopen Wasserstoffmoleküle röhrt daher, daß wegen ihrer kleinen Masse ihr Trägheitsmoment um etwa eine Größenordnung oder mehr niedriger ist als das anderer Moleküle. Daher ist der Abstand der Rotationsenergiezustände bei tiefer Temperatur größer als die thermische Energie, kT (k = Boltzmannkonstante).

Die Kernspins der Wasserstoffmoleküle koppeln antiparallel oder parallel, und die Kopplung bleibt bestehen, sofern nicht ein Katalysator vorhanden ist. Es gibt daher zwei Arten von Wasserstoffmolekülen, und die Menge jeder Art ändert sich in Abwesenheit eines Katalysators praktisch nicht. Symmetrische Moleküle, wie H_2 , D_2 und T_2 , zeigen nur Rotationszustände mit entweder geraden oder ungeraden Rotationsquantenzahlen J , aber nicht beide. Dabei bestimmt die Kernspinkopplung, welche Art von J -Werten erlaubt ist. Die makroskopischen Eigenschaften der meisten Moleküle zeigen keine Unterschiede der Spezies mit geraden oder ungeraden J -Werten, sondern Unterschiede werden nur in den Spektren und anderen mikroskopischen Eigenschaften beobachtet.

Die thermodynamischen Eigenschaften symmetrischer Wasserstoffmoleküle zeigen jedoch erhebliche Unterschiede, bedingt durch die großen Differenzen der Rotationsenergiezustände. Sogenannter "para- H_2 ", hat antiparallele Spinorientierung und gerade Werte von J ; dagegen hat der sogenannte "ortho- H_2 " parallele Spinorientierung und ungerade Werte von J . Die parallele Spinkopplung ist dreimal wahrscheinlicher als die antiparallele, daher ist im Gleichgewicht bei ho-

Temp. [K]	e-H ₂	HD	HT	e-D ₂	DT	e-T ₂
Tripel punkt	4,5 E-05	1,3 E-03	4,5 E-03	1,5 E-02	7,38 E-02	6,48 E-01
4,2	2,1 E-17	1,6 E-13	3,7 E-12	1,9 E-09	1,1 E-07	9,9 E-06
6	4,1 E-12	1,5 E-09	1,4 E-08	8,9 E-07	1,9 E-05	1,6 E-04
8	5,0 E-09	3,2 E-07	1,7 E-06	3,2 E-05	3,8 E-04	6,7 E-03
10	3,6 E-07	8,0 E-06	3,0 E-05	2,8 E-04	2,3 E-03	2,69 E-02
12	6,6 E-06	6,8 E-05	2,0 E-04	1,1 E-03	7,5 E-03	6,77 E-02
14	4,6 E-05	3,1 E-04	8,0 E-04	3,2 E-03	1,74 E-02	1,26 E-01
16	2,1 E-04	9,8 E-04	2,2 E-03	6,9 E-03	3,26 E-02	1,95 E-01
18	6,9 E-04	4,2 E-03	5,0 E-03	1,25 E-02	5,26 E-02	2,66 E-01
20	1,8 E-03	2,9 E-03	9,4 E-03	1,99 E-02	7,62 E-02	3,33 E-01
22	3,9 E-03	8,7 E-03	1,57 E-02	2,92 E-02	1,03 E-01	3,93 E-01
24	7,3 E-03	1,41 E-02	2,41 E-02	4,00 E-02	1,31 E-01	4,46 E-01
26	1,26 E-02	2,10 E-02	3,45 E-02	5,20 E-02	1,50 E-01	4,92 E-01
28	2,00 E-02	2,97 E-02	4,68 E-02	6,49 E-02	1,86 E-01	5,30 E-01
30	2,97 E-02	3,99 E-02	6,06 E-02	7,85 E-02	2,14 E-01	5,63 E-01
32	4,19 E-02	5,15 E-02	7,58 E-02	9,24 E-02	2,40 E-01	5,91 E-01
34	5,64 E-02	6,43 E-02	9,20 E-02	1,06 E-01	2,65 E-01	6,14 E-01
36	7,32 E-02	7,81 E-02	1,09 E-01	1,20 E-01	2,87 E-01	6,34 E-01
38	9,21 E-02	9,28 E-02	1,26 E-01	1,34 E-01	3,08 E-01	6,51 E-01
40	1,13 E-01	1,08 E-01	1,44 E-01	1,48 E-01	3,27 E-01	6,65 E-01

Tab. 1-4: Anteil der Moleküle im J = 1 Niveau

Bemerkung: Im allgemeinen sind die restlichen Moleküle im Niveau J = 0. Eine auffallende Ausnahme ist T₂ in der Nähe von 40 K, wo das Niveau J = 2 mit 0,15 % besetzt ist.

her Temperatur (300 K) ortho-H₂ dreimal häufiger als para-H₂. Eine solche Mischung von 3/4 ortho-H₂ und 1/4 para-H₂ wird als n-H₂ (normaler Wasserstoff) bezeichnet. Für das Molekül T₂ gelten die gleichen Kopplungen zwischen Kernspin und Rotationszuständen wie beim H₂, da das Triton und das Proton den gleichen Kernspin 1/2 aufweisen. Das Verhältnis ortho-T₂ / para-T₂ ist somit ebenfalls 3 im Gleichgewicht bei hoher Temperatur. Der niedrigste Rotationszustand ist J = 0; daher ist für H₂ und T₂ die para-Spezies bei tiefer Temperatur die stabile Form. Das Deuteron hat dagegen einen Kernspin gleich 1, und für D₂ mit paralleler Kopplung der beiden Kernspins sind gerade Rotationsquantenzahlen J erlaubt ("ortho-D₂"). Bei antiparalleler Kopplung der Kernspins sind Rotationszustände

mit ungeraden Quantenzahlen erlaubt ("para-D₂"). Die Zustände mit geraden J-Werten sind hier doppelt so wahrscheinlich wie die mit ungeraden J-Werten. Bei hoher Temperatur (300 K) ist das Mischungsverhältnis ortho-D₂ / para-D₂ gleich 2; bei tiefer Temperatur ist ortho-D₂ die stabile Form (J = 0).

Für die homonuklearen Moleküle H₂, D₂, T₂, sind nur Übergänge $\Delta J = \pm 2$ erlaubt. Durch Katalysatoren oder durch den β -Zerfall des Tritiums bei einer bestimmten Temperatur ins Gleichgewicht gebrachte ortho-para-Mischungen der homonuklearen Moleküle bezeichnet man mit e-H₂, e-D₂ und e-T₂. Für die heteronuklearen Moleküle HD, HT und DT sind dagegen alle Rotationsübergänge erlaubt, wobei $\Delta J = \pm 1$ der wichtigste Übergang ist. In Tabelle 1-4 ist der Anteil der im Rotationszustand J = 1 befindlichen Wasserstoffmoleküle bei Temperaturen zwischen 4,2 und 40 K dargestellt.

Der Gesamtteil der in Rotationszuständen mit ungeraden Rotationsquantenzahlen vorliegenden homonuklearen Wasserstoffmoleküle ist in Tabelle 1-5 für ei-

Temp. [K]	e-H ₂	e-D ₂	e-T ₂
40	0,113	0,148	0,666
50	0,229	0,207	0,712
60	0,344	0,251	0,732
77,4	0,500	0,297	0,745
100	0,614	0,322	0,749
150	0,714	0,332	0,750
200	0,740	0,333	0,750
250	0,747	0,333	0,750
300	0,749	0,333	0,750

Tab. 1-5: Gleichgewichtsbevölkerung der Niveaus mit ungeradem J für H₂, D₂ und T₂

Bemerkung: Alle Moleküle befinden sich im Schwingungsgrundzustand.
Bei 300 K beträgt der ortho-Anteil an H₂ und T₂ je 3/4,
respektive der para-Anteil des D₂ 1/3.

nen höheren Temperaturbereich angegeben. Die sich ergebenden großen Unterschiede in den Rotationszustandssummen der isotopen Wasserstoffmoleküle tragen erheblich zu den Unterschieden der thermodynamischen Funktionen bei tiefen Temperaturen bei. Die Eigenschaften der tritiumhaltigen Wasserstoffmoleküle werden zusätzlich durch die Effekte des radioaktiven Zerfalls beeinflußt, die im Abschnitt 1.4 behandelt werden.

1.3.2 Sättigungsdampfdrücke, Tripelpunktdaten, kritische Daten und chemische Austauschreaktionen der isotopen Wasserstoffmoleküle

Die Tabellen 1-6 und 1-7 geben Daten für die Berechnung von Sättigungsdampfdrücken der isotopen Wasserstoffe, Sublimations- und Verdampfungswärmen sowie Temperaturen und Drücke für Tripelpunkte und kritische Punkte, die besonders für kryotechnische Anwendungen wichtig sind, beispielsweise die Trennung der Wasserstoffisotope durch Tieftemperaturdestillation.

		a	b	c	$\Delta H^\circ_{\text{sub}, \text{T.P.}}$ [J/Mol]
Fest	n-H ₂	9,2458	92,610	2,3794	1028
	HD	9,7731	116,66	2,3769	1270
	HT	9,8954	126,29	2,3758	1370
	n-D ₂	10,427	138,31	2,2891	1470
	DT	10,821	150,34	2,2389	1580
	T ₂	11,559	164,77	2,1189	1690
Flüssig	n-H ₂	9,64596	83,5177	1,98042	911
	HD	11,5827	109,419	1,57756	1110
	HT	12,7295	123,995	1,34440	1190
	n-D ₂	12,6317	130,249	1,38962	1270
	DT	14,2203	147,349	1,04950	1360
	T ₂	15,8148	164,486	0,707997	1460

Tabelle 1-6: Sättigungsdampfdrücke von isotopen Wasserstoffen gemäß
 $\ln p/\text{[Pa]} = a - b/T + c \ln T/\text{[K]}$ *
 und Sublimationswärme $\Delta H^\circ_{\text{sub}, \text{T.P.}}$ bzw. Verdampfungswärme $\Delta H^\circ_{\text{vap}, \text{T.P.}}$
 beim Tripelpunkt (T.P.)
 * Daten für HT und DT sind geschätzt

Zwischen isotopen Wasserstoffmolekülen finden Austauschreaktionen statt, die bei Temperaturen um 300 K und darunter unter der Einwirkung von Katalysatoren mit hinreichender Geschwindigkeit ablaufen. Berechnete Gleichgewichtskonstanten für die Austauschreaktionen (z.B. für die Reaktion D₂+T₂ = 2DT ist $K_p = P_{DT}^2 / (P_{D_2} \cdot P_{T_2})$) sind in Tabelle 1-8 zusammengestellt.

Spezies	Molekular- gewicht ($10^{-3} \times$ [kg/Mol])	Tripelpunkt		Kritischer Punkt	
		T [K]	Pc [Pa]	T _c [K]	Pc [MPa]
e-H ₂	2,015650	13,804	7030	32,976	1,293
n-H ₂	2,015650	13,956	7200	33,19	1,315
HD	3,021927	16,60	12370	35,91	1,484
HT	4,023875	17,70*	14580*	37,13*	1,571*
e-D ₂	4,028204	18,69	17130	38,262	1,650
n-D ₂	4,028204	18,73	17150	38,34	1,665
DT	5,030152	19,79	20080*	39,42*	1,773*
T ₂	6,032100	20,62	21600*	40,44*	1,850*

Tabelle 1-7: Tripelpunkt und kritischer Punkt von isotopen Wasserstoffmolekülen
* geschätzt

T [K]	D ₂ + T ₂ = 2DT	H ₂ + T ₂ = 2HT	H ₂ + D ₂ = 2HD
0	0	0	0
4,2	4,8 E-02	2 E-17	4,9 E-08
6	2,0 E-01	4 E-12	1,4 E-05
8	4,7 E-01	5 E-09	3,6 E-04
10	7,8 E-01	3,8 E-07	2,6 E-03
12	1,10	6,5 E-06	9,6 E-03
15	1,46	1,1 E-04	3,6 E-02
20	1,74	2,0 E-03	1,3 E-01
25	1,94	1,1 E-02	2,9 E-01
30	2,09	3,4 E-02	4,9 E-01
50	2,57	3,3 E-01	1,41
77,4	3,06	6,4 E-01	1,94
100	3,29	9,5 E-01	2,26
200	3,69	1,94	2,90
300	3,82	2,58	3,26
∞	4,00	4,00	4,00

Tab. 1-8: Gleichgewichtskonstanten, K, für den Isotopenaustausch

Für Austauschreaktionen wie



im Falle gleicher Anteile an D- und T-Atomen sind die Gleichgewichtsanteile der isotopen Wasserstoffmoleküle in Tabelle 1-9 angegeben. Im Bereich tiefer Tem-

Temp. [K]	D ₂ +T ₂ =2DT		H ₂ +T ₂ =2HT		H ₂ +D ₂ =2HD	
	D ₂ =T ₂	DT	H ₂ =T ₂	HT	H ₂ =D ₂	HD
0	50,0	0	50,0	0	50,0	0
4,2	45,1	9,9	50,0	0	50,0	0
6	40,8	18,4	50,0	0	49,9	0,2
8	37,2	25,6	50,0	0	49,5	0,9
10	34,7	30,7	50,0	0	48,8	2,5
12	32,8	34,4	49,9	0,1	47,7	4,7
15	31,2	37,7	49,7	0,5	45,7	8,6
20	30,1	39,8	48,9	2,2	42,3	15,4
25	29,5	41,1	47,5	5,0	39,4	21,3
30	29,0	41,9	45,8	8,4	37,0	26,0
50	27,8	44,5	40,2	19,7	31,7	36,7
77,4	26,7	46,7	35,7	28,6	29,5	41,1
100	26,2	47,6	33,6	32,8	28,5	42,9
200	25,5	49,0	29,4	41,1	27,0	46,0
300	25,3	49,4	27,7	44,5	26,3	47,4
∞	25,0	50,0	25,0	50,0	25,0	50,0

Tab. 1-9: Prozentuale Anteile der isotopen Wasserstoffmoleküle bei einer Ausgangszusammensetzung 50:50 % zweier Isotope

peratur zerfallen bei Äquilibrierung die heteronuklearen Spezies wegen der Unterschiede der Nullpunktsenergiedifferenzen, die im System D/T am kleinsten und im System H/T am größten sind. In tritiumhaltigen Systemen wird der Austausch unter der Wirkung der β -Strahlung durch Reaktionen wie



ermöglicht, die als Kettenreaktion mit großer Kettenlänge abläuft. Auch Katalysatoren, wie Fe, Ni, Pt und Al₂O₃, bewirken die Gleichgewichtseinstellung, wie Experimente bei 77 K zeigen. Auch bei noch tieferer Temperatur sollte eine Äquilibrierung mit Katalysatoren möglich sein.

1.4 Tritiumverbindungen

Im Prinzip können alle wasserstoffhaltigen Verbindungen, aber auch andere, wie z. B. organische Halogenverbindungen, tritiert werden. Die wichtigsten Methoden der Markierung organischer Verbindungen mit Tritium werden als Beispiele für die vielfältigen Möglichkeiten der Einwirkung von Tritium auf organische Stoffe aufgeführt. Die besonders wichtigen Prozesse der Einwirkung von Tritium oder tritiumhaltigen Verbindungen im Biozyklus sind in Kapitel 5 behandelt.

Zu den am häufigsten angewendeten Methoden für die Darstellung tritiumhaltiger Verbindungen gehören Austauschreaktionen, die direkte chemische Synthese und Rückstoßmarkierungen [1-3, 1-4].

1.4.1 Austauschreaktionen und die Rolle des $(^3\text{HeT})^+$ -Ions

Beim radioaktiven Zerfall von T_2 bildet sich als Hauptprodukt das $(^3\text{HeT})^+$ (s. Tab. 1-10).

Produkte	Prozentueller Anteil
$(^3\text{HeT})^+$	58
${}^3\text{He}^+ + \text{T}$	32
${}^3\text{He} + \text{T}^+$	9,2
${}^3\text{He}^{++} + \text{T} + e^-$	0,8

Tab. 1-10: Produkte des radioaktiven Zerfalls von T_2

Das $(^3\text{HeT})^+$ -Ion ist ein stabiles Molekülion, wie auch das $(^4\text{HeH})^+$ -Ion, dessen Dissoziationsenergie zu ${}^4\text{He}$ und H^+ 1,844 eV beträgt. $(^3\text{HeT})^+$ rekombiniert mit Elektronen; das sich bildende ${}^3\text{HeT}$ -Molekül zerfällt innerhalb etwa 10 ns. Die weiteren Produkte des radioaktiven Zerfalls von T_2 sind atomares und ionisiertes Helium und Tritium.

Die von Wilzbach eingehend untersuchte und nach ihm benannte Wilzbach-Selbstmarkierung organischer Bindungen (R-H) mit Tritium benutzt die Zerfallsenergie des Tritiums als einzige Energiequelle für den Tritium-Gas-Austausch. Sie beruht auf Reaktionen der beim Zerfall von Tritiummolekülen gebildeten Ionen und Atome (vgl. Tabelle 1-10)



sowie auf strahlenchemischen Reaktionen, die auf die Bildung von angeregten Molekülen (mit einem * gekennzeichnet), Radikalen und Ionen durch Einwirkung von β -Strahlen auf das T_2 -Molekül



bzw. auf die zu markierende organische Verbindung



zurückzuführen sind (Kennzeichen der Strahlenwirkung: $\xrightarrow{\text{---}}$).

Zu den Nachteilen der Wilzbach-Methode zählen die Vielzahl der oben beispielhaft aufgeführten Prozesse und die erforderliche lange Einwirkungsdauer. Aus dem Ausgangsmaterial werden durch die Strahleneinwirkung auf das Ausgangsmaterial tritierte Verbindungen gebildet (in der Regel nur etwa 1 % pro Tag der Gesamttritiumaktivität durch Kontakt mit Tritiumgas inkorporiert). Dadurch ist die Tritiierung mit dieser Methode sehr unspezifisch. Für die Anwendung der Methode sind hohe Partialdrücke an Tritium, der Einsatz gasförmiger organischer Verbindungen oder fester organischer Verbindungen mit großer spezifischer Oberfläche günstig. Die erreichbaren spezifischen Aktivitäten liegen im allgemeinen bei 1 GBq/mg.

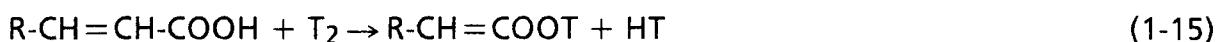
Die Anregung, Ionisation und Radikalbildung kann durch Zusatz von inerten β -aktiven Radionukliden (z. B. ${}^{85}\text{Kr}$), Bestrahlung mit UV-Licht oder γ -Strahlen und durch elektrische Entladung erhöht werden. Die Verwendung eines Hitzdrahtes zur Beschleunigung der Reaktionskinetik wurde insbesondere in Austauschreaktionen an leichten Kohlenwasserstoffen eingesetzt; sie führt ebenso zu zahlreichen unerwünschten Nebenreaktionen. Höhere spezifische Aktivitäten an Tritium bei einer Verminderung der Verunreinigungen konnten mit Aktivkohle bzw. Edelmetallkatalysatoren, Raney-Nickel oder Nickelpulver bei 100 °C erzielt werden.

1.4.2 Direkte chemische Synthese

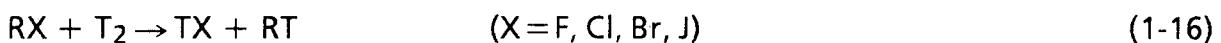
Eine der einfachsten Markierungsmethoden ist die katalytische Tritiumanlagerung an ungesättigten Bindungen:



Die Spezifität der Reaktion hängt von der Art des Substituenten R bzw. R' ab. Enthalten die Substituenten "labile" Wasserstoffatome, so gehen diese auch eine Austauschreaktion ein:



Ebenfalls können tritierte Verbindungen durch Austausch von Alkylhalogeniden mit Tritium gemäß

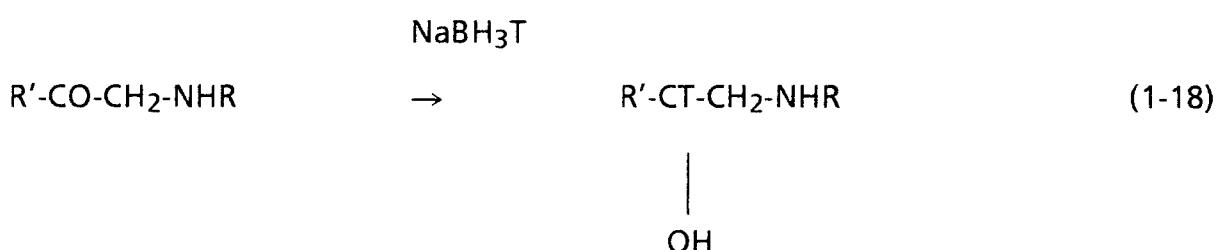


unter Verwendung von Katalysatoren, wie sie in Hydrierungen üblich sind, dargestellt werden. Um eine Vergiftung des Katalysators zu verhindern, wird mit einer Base das Tritiumhalogenid



neutralisiert.

Tritiierte Metallhydride vom Typ $NaBH_4$ und $LiAlH_4$ werden zur Reduktion verschiedener organischer Verbindungen, wie z. B. Säuren, Ester, Aldehyde, Ketone und Nitrile, verwendet. Die Besonderheit hierbei ist, daß die Markierung streng spezifisch ist und Tritiumatome nur an das Kohlenstoffatom gebunden werden. Zum Beispiel kann das Hormon Adrenalin mit $NaBH_3T$ reduziert und dabei tritiert werden:



(R' bedeutet eine zweifach hydroxylierte Phenylgruppe).

1.4.3 Rückstoßmarkierung

Bei der Rückstoßmarkierung tritt ein Rückstoßatom in ein gegebenes Molekül ein. Chemische Effekte, die bei Kernreaktionen auftreten, führen nicht nur zur Sprengung bestehender Bindungen, sondern es können auch für die Herstellung von markierten Verbindungen wichtige, neue Bindungen entstehen. Das Nuklid Tritium kann durch folgende Kernreaktionen erzeugt werden:



Die nach Gleichung (1-20) erzeugten Tritiumatome besitzen eine verhältnismäßig niedrige Energie, weshalb sie für Tritiummarkierungen besonders geeignet sind. In allen untersuchten Systemen sind die Reaktionen



für die Bildung der Reaktionsprodukte am wichtigsten. Rückstoßexperimente in substituierter Benzosäure ergaben zum Beispiel, daß die Wahrscheinlichkeit des Austausches von Substituenten (-NH₂, -NO₂, -COOH, -F, -Cl, -Br und -J) durch Tritium mit deren abnehmender Bindungsenergie zum aromatischen Ring stark zunimmt.

Ein großer Nachteil der Methode der Rückstoßmarkierung ist, daß auch hier eine Vielzahl von Reaktionsprodukten entsteht. Außerdem treten in den Verbindungen Strahlenschäden ein, die durch die Rückstoßatome sowie elastische und unelastische Streuung der einfallenden Strahlung verursacht werden. Diese Strahlenschäden sind in aromatischen organischen Verbindungen geringer als in aliphatischen. Auch ist die Ausbeute an dem gewünschten Produkt oft verhältnismäßig klein. Zumeist findet man bei der Rückstoßmarkierung mit Tritium einen großen Teil des Tritiums in Form einfacher Moleküle (Methan, Wasserstoff), die erreichbaren spezifischen Aktivitäten liegen bei etwa 100 MBq/mg.

Aus den genannten Beispielen der Radio- und Strahlenchemie des Tritiums wird deutlich, daß bei der Handhabung von Tritium besonders im technischen Maßstab die Verwendung organischer Substanzen soweit wie möglich vermieden werden muß. Auch im Hinblick auf das Verhalten von Tritium in der Biosphäre muß den vielfältigen Möglichkeiten der Inkorporierung von Tritium in organische Materie Rechnung getragen werden.

1.5 Löslichkeit und Transport von Tritium in Metallen, oxidischen Festkörpern und Elastomeren

Tritium kann sich als Wasserstoffisotop wegen seiner geringen Größe und hohen Beweglichkeit in Festkörpern lösen (d. h. Zwischengitterplätze einnehmen) und durch sie hindurchdiffundieren. Im Hinblick auf einen sicheren Tritiumeinschluß ist es wichtig, die Löslichkeit und das Diffusionsverhalten des Wasserstoffs in den eingesetzten Materialien zu kennen.

Wasserstoff wird entweder in atomarer oder in molekularer Form gelöst. Bei atomarer Lösung ergibt sich die Gleichgewichtskonzentration des Wasserstoffs C_H in Metallen nach dem Sievert-Gesetz zu

$$C_H = S_H \cdot p_{H_2}^{1/2}. \quad (1-23)$$

Bei molekularer Lösung gilt

$$C_{H_2} = S_{H_2} \cdot p_{H_2}. \quad (1-24)$$

S_H und S_{H_2} sind die atomaren bzw. molekularen Löslichkeitskonstanten. S_H (oder einfach S) wird oft auch als Sievert-Konstante bezeichnet.

In Abb. 1-4 ist die Wasserstofflöslichkeit (Sievert-Konstante) für verschiedene Metalle als Funktion der Temperatur aufgetragen. Bei Metallen mit stark exothermer Wasserstofflösung, wie Li, Ti, Nb und V, ist die Löslichkeit groß und nimmt mit steigender Temperatur ab. Bei Metallen mit endothermer Wasserstofflösung ist die Löslichkeit klein und nimmt mit steigender Temperatur zu.

Die Diffusion von Wasserstoff durch Metalle folgt dem 1. Fickschen Gesetz:

$$\varnothing_H = -D_H \cdot \frac{dc_H}{dx}, \quad (1-25)$$

wobei \varnothing_H der Teilchenstrom, D_H der Diffusionskoeffizient und

$$\frac{dc_H}{dx}$$

der Konzentrationsgradient im Feststoff ist.

Durch die Kombination der Gleichungen (1-23) und (1-25) erhält man nach Richardson für die Permeationsrate \varnothing von Wasserstoff durch blaue Metalle die folgende, in weiten Bereichen gültige Bestimmungsgleichung:

$$\varnothing = D \cdot S \cdot A/L (p_1^{1/2} - p_2^{1/2}) \quad (1-26)$$

mit \varnothing = Permeationsrate [mol/s]

D = Diffusionskoeffizient [m²/s]

S = Löslichkeit [mol/m³ · Pa^{1/2}]

A = Permeationsfläche [m²]

L = Wandstärke der Permeationsbarriere [m]

p_1 = Druck auf der Hochdruckseite [Pa]

p_2 = Druck auf der Niederdruckseite [Pa]

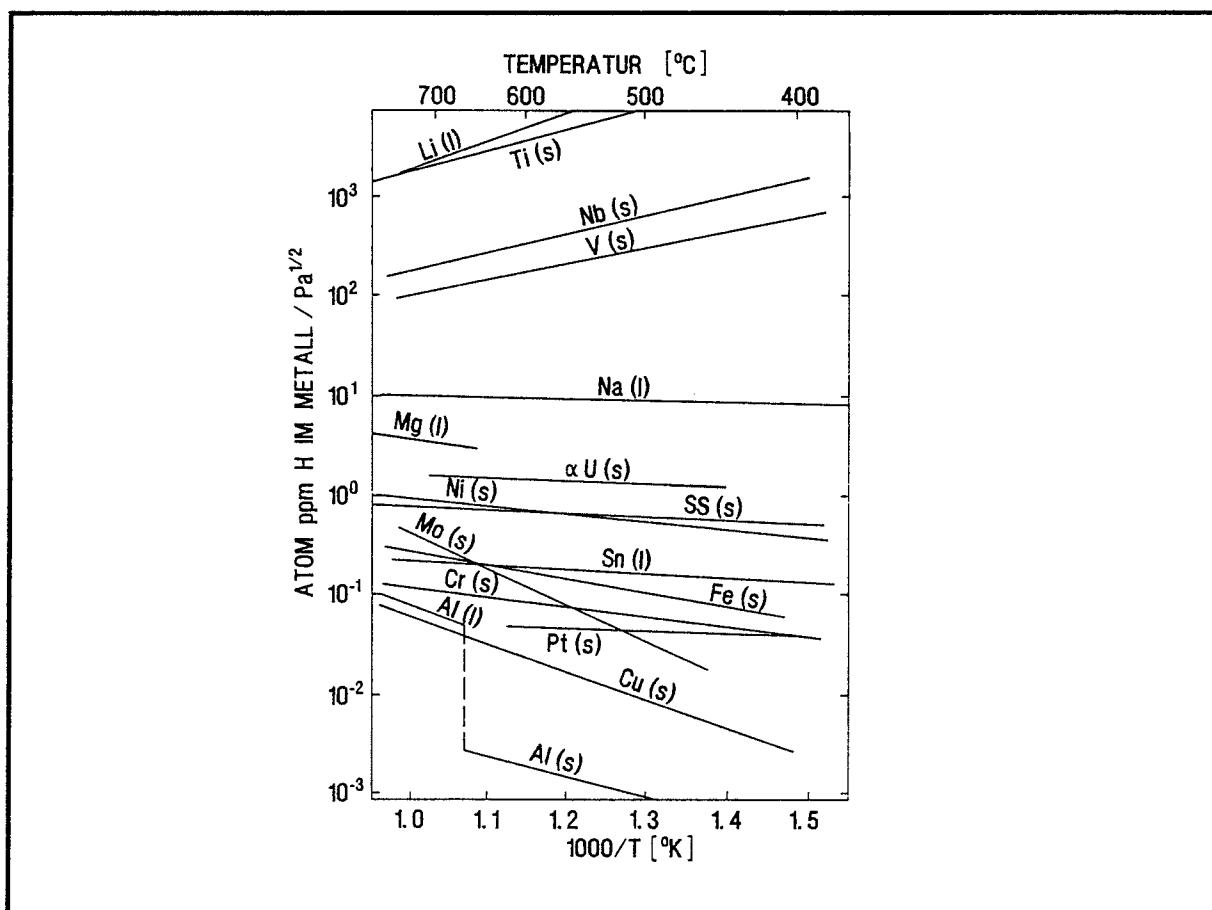


Abb. 1-4: Wasserstofflöslichkeit (Sievert-Konstante) für verschiedene Metalle [1-6]
(s, solid = fest; l, liquid = flüssig)

Dabei ist vorausgesetzt, daß Lösung und Diffusion im Metall atomar verlaufen ($p^{1/2}$ -Abhängigkeit als Konsequenz der Dissoziation) und die Diffusion den geschwindigkeitsbestimmenden Schritt des Permeationsprozesses darstellt. Letztere Randbedingung bedeutet die Annahme eines Konzentrationsgleichgewichts zwi-

schen Metallocberfläche und Gasphase. Im Druckbereich oberhalb etwa 1 Pa ist dies stets der Fall.

Bei sehr niedrigen Drücken ($< 1 \text{ Pa}$) treffen die Voraussetzungen nicht mehr zu. Die aktive Metallocberfläche wird nicht vollständig mit Gas bedeckt, so daß die Permeationsrate in erster Linie durch das fehlende Angebot diffundierender Substanz bestimmt wird. Die Oberflächeneffekte werden zeitbestimmend. Dementsprechend stellt sich eine lineare Druckabhängigkeit ein.

Das Produkt aus Diffusionskoeffizient D und Löslichkeit S wird als Permeationskoeffizient K bezeichnet:

$$K = D \cdot S [\text{mol}/\text{m} \cdot \text{s} \cdot \text{Pa}^{1/2}] \quad (1-27)$$

Der Permeationsvorgang ist ein thermisch aktivierter Prozeß, d. h. die Permeationsrate nimmt mit steigender Temperatur zu. Die Temperaturabhängigkeit des Permeationskoeffizienten kann in Form einer sogenannten Arrheniusbeziehung dargestellt werden:

$$K = K_0 \cdot e^{-\theta/T}, \quad (1-28)$$

$$\theta = E/R \quad (1-29)$$

wobei E die Aktivierungsenergie der Permeation, R die allgemeine Gaskonstante $= 8,3145 \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ und T die absolute Temperatur des permeierten Materials bedeuten.

Zumindest für den Druckbereich, in dem die Diffusion geschwindigkeitsbestimmend ist, konnte in vielen Experimenten gezeigt werden, daß sich die Konstanten K_0 von Tritium und Wasserstoff umgekehrt proportional zur Wurzel aus den Molekülmassen verhalten, also:

$$K_0^{\text{T}_2} / K_0^{\text{H}_2} = 1/31/2. \quad (1-30)$$

Dies folgt auch aus einfachen kinetischen Überlegungen zur Diffusionsgeschwindigkeit.

Bei oxidierten Metallen bleibt zwar der formale Temperaturverlauf nach Gleichung (1-28) erhalten, allerdings ändern sich θ und K_0 entsprechend der Natur der Oxidschicht.

Durch oxidische Deckschichten auf den Permeationsflächen kann die Permeationsrate deutlich abgesenkt werden.

In Tabelle 1-11 sind Werte von K_0 und θ für eine Anzahl von Metallen, Legierungen und β -Siliziumcarbid angegeben.

Material	Isotop	K_o [mol/m · s · Pa ^{1/2}]	θ [K]	Temp. Bereich der Messung [K]
Fe	H ₂	4,1 E-08	4200	375-850
Ni	H ₂	4,0 E-07	6600	300-775
α -Co	D ₂	3,8 E-08	7750	670-820
SS 304S	H ₂	2,0 E-06	8660	370-570
ε - Co	D ₂	6,3 E-09	6850	470-670
Ag	H ₂	3,4 E-08	7350	730-980
Cu	H ₂	8,4 E-07	9320	470-700
Pt	H ₂	1,2 E-07	8500	540-900
SS 309S	D ₂	1,5 E-07	8500	520-720
Mo	H ₂	2,3 E-07	9710	500-1700
95 Cu - 5 Sn	H ₂	6,6 E-07	9810	560-640
91 Cu-7 Al-2 Fe	H ₂	4,0 E-08	8850	620-840
50 Cu-50 Au	H ₂	6,6 E-06	11500	370-570
SS oxidiert	D ₂	2,8 E-05	13900	370-700
Be	T ₂	5,8 E-14	2200	670-1170
Al	T ₂	5,8 E-05	14800	420-520
Au	D ₂	3,1 E-06	14800	500-900
W	H ₂	7,8 E-07	17000	1100-2400
Ge	H ₂	1,2 E-05	24000	1040-1200
Si	H ₂	1,4 E-05	27000	1240-1485
β -SiC	T ₂	1,8 E-10	55600	700-1570

Tab. 1-11: Konstanten K_o und θ zur Berechnung der Permeabilität von Wasserstoffisotopen in verschiedenen Metallen, Legierungen und β -SiC in der Reihenfolge abnehmender Durchlässigkeit bei Zimmertemperatur [1-5]

Abb. 1-5 zeigt den Permeationskoeffizienten K in logarithmischer Darstellung als Funktion der reziproken Temperatur für verschiedene blanke Metalle [1-16]. Es zeigt sich, daß ferritische Stähle aufgrund ihrer weitmaschigen Gitterstruktur (kubisch-raumzentriert) insbesondere bei niedrigen Temperaturen eine deutlich höhere Permeabilität als austenitische Stähle (kubisch-flächenzentriert) aufweisen. Besonders geringe Permeabilität zeigen Aluminium und Wolfram.

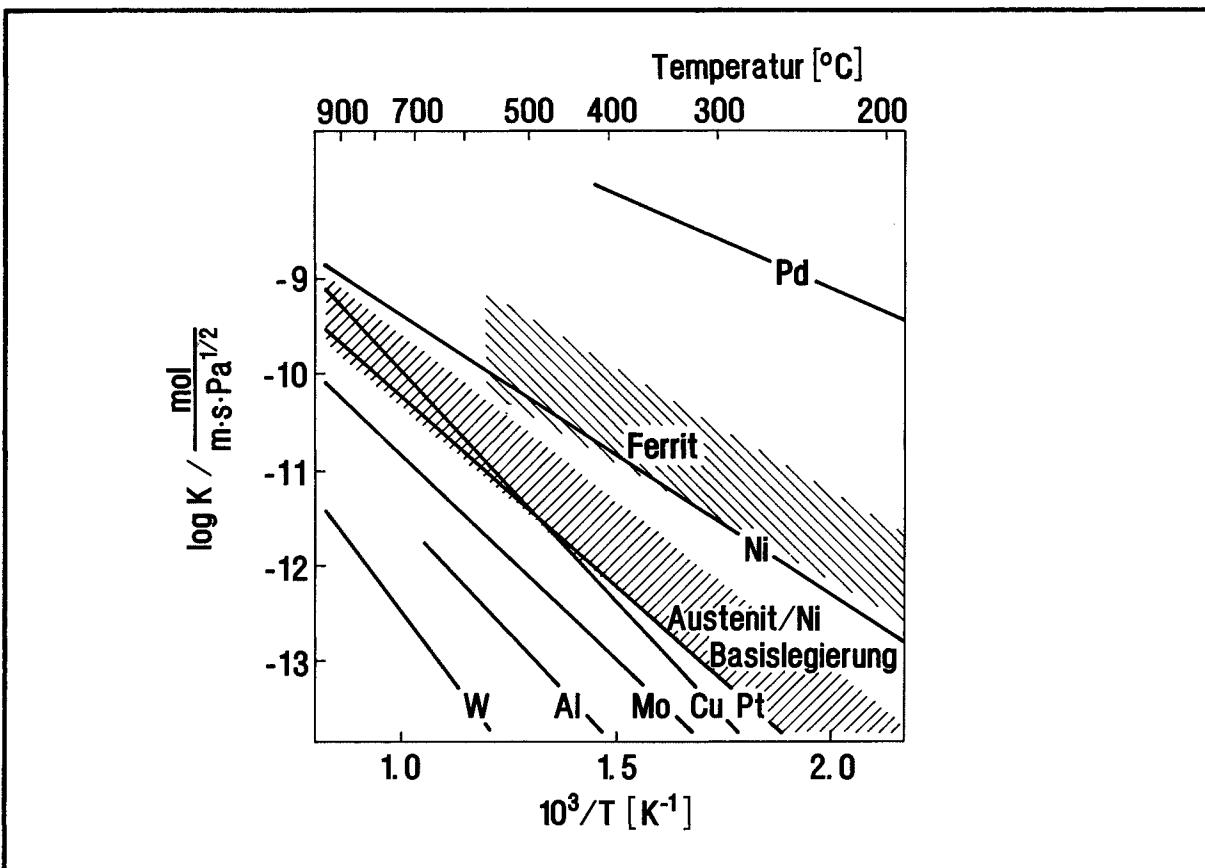


Abb. 1-5: Wasserstoff-Permeationskoeffizient durch blankes Metall als Funktion der Temperatur (Literaturdaten).

Für Gläser, in denen Wasserstoff als Molekül diffundiert, gilt die Beziehung

$$\emptyset = (K \cdot A/L) (p_1 - p_2) \quad (1-31)$$

Die Temperaturabhängigkeit von K ist:

$$K = K_0 T \exp(-\theta/T) \quad (1-32)$$

(vgl. Gl. (1-29)). In Tabelle 1-12 sind Daten zur Errechnung der Permeabilität von Wasserstoffisotopen in Gläsern zusammengestellt.

Die Permeabilität von Silikatgläsern kann aus folgender Gleichung abgeschätzt werden

$$K \approx [3,4 + 8(E-04) \cdot M^3] \cdot 1,0(E-17) T \exp[-(3600 + 165M)/T] \quad (1-33)$$

wobei M der Prozentanteil von nicht netzwerkbildenden Oxiden, wie Na_2O , CaO , K_2O und Al_2O_3 (gilt für $M < 30\%$), und T die Temperatur in Kelvin bedeutet.

In Tabelle 1-13 sind bei Raumtemperatur gemessene Daten der Permeationskonstanten für die Permeation von Wasserstoffisotopen durch Elastomere angegeben. Für den Permeationsfluß \emptyset gilt die Gleichung (1-31).

Detaillierte Angaben zur Wasserstofflöslichkeit und -permeation in verschiedenen Materialien finden sich in [1-5 bis 1-16].

Material	Isotop	K_o [mol/m · s · Pa]	θ [K]	Temp. Bereich der Messung [K]
Quarzglas	H ₂	3,4 (E-17)T	3600	300-1000
Pyrexglas	H ₂	3,6 (E-17)T	4590	300- 720
Glas M=15%	H ₂	6,1 (E-17)T	6080	550- 720
Glas M=30%	H ₂	2,5 (E-16)T	8550	550- 720

Tab. 1-12: Konstanten K_o und θ der Permeabilität von Wasserstoffisopen in einigen Gläsern
M = siehe Text

Material	Isotop	K^* [mol/m · s · Pa]
Latex (Naturgummi)	H	1,54 E-14
Latex	D	1,32 E-14
Latex	T	1,31 E-14
Buna N (nitrierter Butadiengummi)	D	2,47 E-15
Buna N	T	1,94 E-15
Mylar (Polyethylenteraphthalat)	H	1,98 E-16
Mylar	D	1,81 E-16
Teflon (Polytetrafluoroethylen)	H	2,69 E-15
Kapton (Polyimid)	H	5,72 E-16
Kapton	D	5,72 E-16
Kapton	T	8,19 E-16
Saran (Vinylidenchlorid)	H	1,59 E-15
Saran	D	1,01 E-15

Tab. 1-13: Permeationskonstante, K, von Wasserstoffisopen durch Elastomere [1-15]
* Temperatur aller Messungen 298 K.

1.6 Zusammenfassung

Die Freisetzung nutzbarer Energie durch Kernfusion wird in der näheren Zukunft auf der Kernreaktion zwischen Deuteronen und Tritonen beruhen, die von allen anderen Fusionsreaktionen zwischen leichten Kernen am ehesten - mit positiver Energiebilanz - unter Einsatz der heute verfügbaren Technologie erreichbar ist. Das radioaktive Wasserstoffisotop Tritium wird dazu in künftigen Fusionsreaktoren im Kilogramm-Maßstab verwendet werden. Tritium zerfällt unter Emission von β -Strahlung niedriger Energie und daher geringer Reichweite in Materie (ohne Emission von γ -Quanten). Die Halbwertszeit von etwa 12 Jahren ist für die Durchführung der notwendigen Operationen des Brennstoffkreislaufs hinreichend lang, wirft andererseits aber keine gravierenden Abfallprobleme auf. Die technischen Probleme der Handhabung großer Tritiummengen sind aufgrund der o.a. Kerneigenschaften lösbar.

Umfassende Kenntnisse der physikalischen und chemischen Eigenschaften der Wasserstoffisotope H (Protium), D (Deuterium) und T (Tritium) sind heute verfügbar. Allein die Isotope des Wasserstoffs haben individuelle Namen erhalten. Dies ist berechtigt wegen der großen Unterschiede in ihren makroskopischen Eigenschaften, die besonders bei tiefer Temperatur beobachtet werden und durch Quanteneffekte hervorgerufen sind. Hierzu gehören Eigenschaften wie Wärmekapazitäten, Enthalpien, Dissoziationsenergien, Rotationsenergien und Zustandssummen. Die durch die Unterschiede der physikalisch-chemischen Eigenschaften hervorgerufenen sog. Isotopieeffekte ermöglichen z. B. die kryotechnische Trennung der Wasserstoffisotope durch Destillation und haben besondere Bedeutung für das Gebiet der analytischen Meßtechnik. Moleküle, die Tritium enthalten (T_2 , DT, HT), sind chemisch besonders reaktiv, z. B. durch die β -Strahlung und durch die Wirkung des stabilen, aber sehr reaktiven $(^3HeT)^+$ -Ions (Zerfallsprodukt von T_2).

Ein weiterer Gesichtspunkt von großem praktischen Interesse ist die Eigenschaft aller Wasserstoffisotope, sich in Festkörpern in atomarer oder molekularer Form zu lösen und in ihnen zu diffundieren. Diese Eigenschaft erschwert den Einschluß des radioaktiven Tritiums bei erhöhter Temperatur. Trotzdem war es bereits technisch möglich, in einem Tritiumlabor mit einem Gesamtinventar von ca. 100 g Tritium die Gesamttritiumfreisetzung über alle möglichen Pfade deutlich unter eine vorgegebene Freisetzungsr率e von $7,4 \times 10^{12}$ [Bq/a] zu bringen [1-17].

Die in die Umwelt gelangten geringen Tritiummengen können über Austauschreaktionen, z. B. als HTO, in den Biozyklus eintreten. Das Verhalten von Tritium in der Biosphäre wird in Kapitel 5 behandelt.

1.7 Literatur zu Kapitel 1

- [1-1] P. C. Souers,
Hydrogen properties for fusion energy,
University of California Press, Berkeley and Los Angeles, Calif. (1986).
- [1-2] K. M. Mackay, M.F.A. Dove,
Deuterium and tritium,
in Comprehensive Inorganic Chemistry, A. F. Trotman-Dickenson, Ed. Pergamon, Oxford (1973), S. 77-116.
- [1-3] E. A. Evans,
Tritium and its compounds,
Butterworth & Co Ltd, London, 2nd Ed. (1974).
- [1-4] K. H. Lieser,
Einführung in die Kernchemie,
Verlag Weinheim, Deerfield Beach, Florida, Basel (1980).
- [1-5] S. A. Steward,
Review of hydrogen isotope permeability through materials,
UCRL-53441, Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, California (1983).
- [1-6] V. A. Maroni, E. H. Deventer,
Materials considerations in tritium handling systems,
J. Nucl. Mater., 85 & 86, 257 (1979).
- [1-7] C. G. Interrante,
Basic aspects of the problems of hydrogen in steels,
American Society for Metals, Metals Park, Ohio (1982).
- [1-8] M. Miyake et al.,
Thermal release of tritium from neutron irradiated glass,
Fusion Technol. 1, 555 (1982).
- [1-9] T. S. Elleman, L.R. Zumwalt, K. Verghese,
Hydrogen transport and solubility in non-metallic solids,
Proc. Top. Meet. Technol. Controlled Nucl. Fusion, 3, 763 (1978).
- [1-10] K. Verghese ea al.,
Hydrogen permeation through non-metallic solids,
J. Nucl. Mater. 85 & 86, 1161 (1979).
- [1-11] J. Brandup, E. H. Immergut, eds.,
Polymer Handbook,
John Wiley, New York (1975).

- [1-12] C. J. Smithells, C. E. Ransley,
The diffusion of gases through metals,
Proc. Roy. Soc. of London, A 150 (1935).
- [1-13] J. D. Fast,
Interaction of metals and gases,
N. V. Philips, Eindhoven (1965).
- [1-14] N. P. Kherani, W. T. Shmayda,
Tritium interactions with materials,
Ontario Hydro, Research Division, Toronto, Ontario (1988).
- [1-15] R. H. Steinmeyer, J. D. Braun,
Hydrogen isotope permeation in elastomeric materials,
CONF-750989, Vol IV S. 176 (1976).
- [1-16] W. Steinwarz,
Tritium in HTR-Anlagen,
JüL - 2138, Juli 1987.
- [1-17] J.L. Anderson, J.R. Bartlit, R.V. Carlson, D.O. Coffin,
F.A. Damiano, R.H. Sherman, R.S. Willms, H. Yoshida, T. Yamanishi,
T. Naito, S. Hirata, Y. Naruse,
Experience of TSTA milestone runs with 100 g level of tritium,
Fusion Technology, Vol. 14, Nr. 2, S. 438, Sept. (1988).

2. Vorkommen, Herstellung und Verwendung von Tritium

G. Baumgärtel, H.R. Ihle, R. Kraemer, R.-D. Penzhorn

2.1 Vorkommen von Tritium

2.1.1 Tritium in der Natur

Die Hauptquelle des radioaktiven Wasserstoffisotops Tritium (Halbwertszeit = 12.3232 Jahre) in der Natur ist die Produktion durch Kernreaktionen kosmischer Strahlung an Stickstoff- und Sauerstoffkernen in der Erdatmosphäre. Aus Analysen des Verhältnisses T/H in einer Anzahl natürlicher Gewässer wurden 0,5 - 67 Tritiumatome pro 10^{18} Wasserstoffatome radioanalytisch bestimmt (aus praktischen Gründen gibt man die Tritiumkonzentration in der Natur in sogen. Tritumeinheiten (TU) an; 1 TU = $T/H = 10^{-18}$). Aus diesen ersten Ergebnissen wird eine mittlere Tritiumproduktionsrate in der Erdatmosphäre von 0,12 Tritiumatomen/ $cm^2 \cdot s$ abgeleitet. Dabei wird vorausgesetzt, daß die Transportgeschwindigkeit des Tritiums in die Ozeane durch Regen und Schnee sowie durch alle Flüsse der gesamten Tritiumproduktionsrate gleich ist [2-1]. Daraus wurde ein Inventar an natürlichem Tritium auf der Erde von $1\ 800 \pm 600$ g ermittelt. Von diesem Inventar befindet sich nur etwa 1 % in der Atmosphäre und im Grundwasser, der Rest in den Ozeanen. In einer weiteren Arbeit wurde von Libby et al. [2-2] durch Messungen des Wirkungsquerschnittes für die Reaktion von 2,05 GeV-Protonen mit Stickstoff (25 ± 4 mb) ($1\ mb = 1\ Millibarn = 10^{-27}\ cm^2$) und Sauerstoff (30 ± 4 mb) die grundsätzliche Richtigkeit der oben angegebenen Tritiumproduktionsrate aus kosmischer Strahlung bestätigt und ein Inventar von 2100 g angegeben. Das Weltinventar durch kosmische Strahlung in der Natur erzeugten Tritiums wird in einer 25 Jahre später erschienenen Veröffentlichung auf 7 kg geschätzt und entspricht einer Produktionsrate von 0,4 kg/a [2-3].

Auch in der Erdkruste führen Kernreaktionen aus der Spontanspaltung und dem radioaktiven Zerfall von Uran- und Thoriumisotopen zur Bildung von Tritium. Diese Tritiumquelle trägt aber nur einen kleinen Anteil (< 1 %) zur Gesamttritumbildung bei.

Während der Kernwaffentests in der Periode 1952 - 1962 [2-4, 2-5] wurde das Weltinventar an Tritium erheblich erhöht (aus dem von Michel für 1970 geschätzten Inventar für die Erdoberfläche von 300 ± 80 kg wurde eine Tritiumproduktion von 550 ± 160 kg durch Kernwaffentests berechnet [2-6].

2.1.2 Tritium in kosmischen Prozessen

In der Urknall-Theorie der Kernsynthese wird ein zu gleichen Anteilen aus Protonen und Neutronen bestehendes und im Gleichgewicht befindliches Gasgemisch (Nukleonengas) bei Temperaturen über 10^{10} K angenommen [2-7, 2-8]. Bei der Berechnung der Kernsynthese wird die Entwicklung dieses Gasgemisches in einem sich ausdehnenden und abkühlenden Universum verfolgt. Wegen der zu hohen Temperaturen verschmelzen Protonen und Neutronen nicht miteinander, jedoch wandeln sie sich durch Kernprozesse ständig ineinander um.

Bei Abkühlung auf eine Temperatur von 10^9 K sank das Verhältnis Neutronen/Protonen auf etwa 1/7, und bei dieser Temperatur begann die Verschmelzung von Neutronen und Protonen zu Deuteronen unter Emission von γ -Strahlung.



Weitere Reaktionen von Deuterium führen zur Bildung von ^3He und Tritium (D und T bedeuten in diesem Zusammenhang Kerne, nicht Atome):



wobei der radioaktive Zerfall von Tritium ebenfalls zur Bildung von ^3He beiträgt.

Darüber hinaus sind noch andere Kernprozesse, wie z. B.



von Bedeutung. Wegen der hohen Bindungsenergie von ^4He wurden schließlich bei 10^9 K fast alle Neutronen in ^4He gebunden. Reaktionen von ^4He mit ^3He bzw. mit Tritium lieferten außerdem kleine Mengen an ^7Be und ^7Li .

Die Nukleosynthese im Urknall führte also zur Bildung großer Mengen an ^4He und von Spuren an D, ^3He und ^7Li . Auch Tritium spielte in dieser Phase eine Rolle durch die Kernreaktionen, die zur Bildung von ^4He führten.

2.1.3 Tritium in Kernspaltungsreaktoren

Tritiumquellen und -produktionsraten

Die Entstehung von Tritium in Kernspaltungsreaktoren erfolgt durch verschiedene Neutronenreaktionen, wie

- ternäre Spaltungen von schweren Kernen im Kernbrennstoff
(s. Tab. 2-1) und

Neutronenreaktionen: (n, α) , (n, γ) , $(n, n\alpha)$, $(n, 2\alpha)$ und (n, p) mit leichten Elementen, wie D, ^6Li , ^9Be und ^{11}B , die entweder als Materialkomponente oder als Verunreinigung im Kühlmittel, Moderator, in Steuerstäben oder in Strukturmaterial vorhanden sind (s. Tab. 2-2).

Nukleus	Neutronenspektrum	Tritiumatome pro 10^4 Spaltungen	
^{235}U	thermisch*	0,85	0,92
^{239}Pu	thermisch	1,85	1,64
^{241}Pu	thermisch	2,6	
^{235}U	schnell**	2,2	
^{238}U	schnell	1,4	2,3
Referenz		[2-9]	[2-10]

Tab. 2-1: Tritiumausbeute bei ternären Spaltreaktionen

* Neutronenenergie: 0,025 eV

** Neutronenenergie: 1,0 MeV

Reaktortyp	Elemente und Materialien, die Neutronenreaktionen ausgesetzt sind, welche zu Tritium führen.
Druckwasserreaktor	Borsäure, natürliches Deuterium, gelöste Lithiumverbindungen
Siedewasserreaktor	naturliches Deuterium
Schwerwasserreaktor	Deuterium, gelöste Neutronengifte
Gasgraphitreaktoren	Lithium im Graphitmoderator
Schneller Brüter	Bor- und Lithium-Verunreinigungen in Spalt- u. Brutzone
Hochtemperaturreaktor	^3He im Kühlmittel und Lithium im Graphit

Tab. 2-2: Tritiumproduktion durch Neutronenreaktionen

Unter ternären Spaltungen versteht man Kernspaltungen mit drei Spaltprodukten pro Spaltreaktion, von denen ein Spaltprodukt ein leichter Kern, z. B. ein Triton, sein kann. Wie Tabelle 2-1 zeigt, ist diese Reaktion sehr selten - etwa 1:10⁴ - und abhängig vom Neutronenspektrum und dem spaltbaren Kern. Spaltbare Pu-Kerne haben eine signifikant höhere Ausbeute im thermischen Neutronenspektrum als U-235 Kerne, so daß mit größer werdendem Abbrand und mit größerem Anteil von Pu-Spaltungen auch die Tritiumproduktionsrate ansteigt.

In den meisten Reaktortypen überwiegt die Tritiumproduktion über ternäre Spaltung, wie Tab. 2-3 zeigt. Der Schwerwasserreaktor bildet die Ausnahme wegen der D (n,γ)T - Reaktion im D₂O (Moderator), wo ca. 100 mal mehr Tritiumkerne entstehen als durch ternäre Spaltungen.

Tritiumentsorgung

In den Leichtwasserreaktoren verbleiben während der Bestrahlungszeit etwa 40 % des entstehenden Tritiums im Kernbrennstoff. Der Rest diffundiert in den Hüllwerkstoff, der aus einer Zirkonlegierung besteht, die das Tritium als Zirkontritid bindet. Nur etwa 3 % des Gesamtinventars gelangen in das Kühlwasser, das man durch gezielte Kühlmittelabgaben auf einer Konzentration von 2 E10 Bq/m³ hält.

Werden die bestrahlten Brennelemente der Wiederaufarbeitung zugeführt, verteilt sich das Tritiuminventar auf mehrere Abfallströme, die im Kapitel 2.1.4 behandelt werden. Da Deutschland keine eigene Wiederaufarbeitungsanlage hat, wird der Wiederaufarbeitungsdienst für die deutschen Reaktoren auch weiterhin in Frankreich und England wahrgenommen. Die Entsorgung der wässrigen tritiumkontaminierten Abfälle erfolgt dort durch kontrollierte Einleitung in das Meer.

Ein weiterer Entsorgungsweg für bestrahlte Brennelemente aus deutschen Kraftwerken wird nach ausreichender Qualifizierung und Genehmigung die direkteendlagerung ohne Wiederaufarbeitung sein. Mit dieser Option werden die Brennelemente, die das Tritium enthalten, unter Tage in das Endlager Gorleben in einem Salzstock eingelagert.

Im schnellen Brüter, dessen Hüllwerkstoff aus Edelstahl ist, diffundiert fast das gesamte durch ternäre Spaltungen aufgebaute Tritiuminventar (> 95 %) aus dem Brennelement in das Kühlmittel Natrium. Dort reagiert es zu Natriumtritid, das im Bypass durch Kühlfallen aus dem Kühlkreislauf entfernt wird.

Bei Schwerwasserreaktoren, z.B. vom Typ CANDU (CANadian Deuterium Uranium), ist es wegen der hohen Tritiumproduktionsrate im Schwerwasser notwen-

dig, durch den Betrieb einer Anlage zum Tritiumentzug die Konzentration des Tritiums auf etwa 0,1 TBq/kg Schwerwasser zu begrenzen. Dieser Tritiumentzug ist aus Strahlenschutzgründen erforderlich und kann gleichzeitig als relativ ergiebige Quelle zur Erzeugung von Tritium dienen. (vgl. Kap. 2.2).

Reaktortyp	Ausbeute durch Kernspaltungen		Reaktionsprodukte nach Tabelle 2-2 a)	
	kCi/GW _e · a	TBq/GW _e · a	kCi/GW _e · a	TBq/GW _e · a
Druckwasserreaktor	15-20	550-740	0,55 - 1,0	20 - 40 b)
Siedewasserreaktor	10-20	550-740	0,1 - 0,4	4 - 15 c)
Schwerwasserreaktor	20-24	740-890	2400	89 000
Gasgraphitreaktor	17	630	ca. 5	200
Schneller Brüter	26-30	740-1100	ca. 25	1000
Hochtemperaturreaktor	18	670	3,7 - 8,5	140 - 310

Tab. 2-3: Tritiumproduktion in Kernkraftwerken [2-11]

- a) enthält auch Tritiumverluste vom Kernbrennstoff
- b) Untere Grenze entspricht 0,1 % Tritiumverluste aus dem Kernbrennstoff und bei pH-Einstellung des Kühlwassers durch Verwendung von Lithiumhydroxid (⁷Li mit isotopischer Reinheit > 99,9 %)
- c) Untere Grenze entspricht 0,1 % Tritiumverluste aus dem Kernbrennstoff

2.1.4 Tritium in der Wiederaufarbeitung

Ein Druckwasserreaktor mit einer Leistung von 1000 MW_e entlädt bei einem mittleren Abbrand von 40 GWd/tU pro Jahr ca. 25 t Schwermetall als bestrahlten Kernbrennstoff, der nach 3 bis 10 Jahren Kühlzeit zur Wiederaufarbeitung gegeben wird. Das Aktivitätsinventar eines solchen Brennstoffs gibt Tabelle 2-4 wieder.

Abkühlzeit	3 Jahre	10 Jahre
Gesamtes Aktivitätsinventar (Bq/tU)	$34,1 \times 10^{15}$	$13,6 \times 10^{15}$
Tritiuminventar (Bq/tU)	$17,2 \times 10^{12}$	$11,6 \times 10^{12}$

Tab. 2-4: Aktivitätsinventare in bestrahltem Kernbrennstoff aus einem Druckwasserreaktor (Typ Biblis)
(Mittl. Abbrand: 40.000 MWd/tU)

Bestrahlter Kernbrennstoff aus Druckwasserreaktoren mit einem Abbrand von 40 GWd/tU enthält nach 3 Jahren Abkühlzeit 17,2 TBq/tU Tritium. Von diesem Tritium befinden sich ca. 60 % fest gebunden als Zirkonhydrid im Hüllwerkstoff Zircaloy und etwa 40 % im Uran-Oxid-Brennstoff. Lediglich diese 40 % tauchen beim Wiederaufarbeitungsprozeß als HTO oder HT und in ganz geringem Maße in Form anderer tritiierter Verbindungen auf. Der Tritiumgehalt im Gasraum der Brennstäbe beträgt weniger als 10^{-3} % des gesamten Tritiuminventars und kann daher bei den nachfolgenden Betrachtungen vernachlässigt werden.

Der Wiederaufarbeitungsprozeß gliedert sich in drei verfahrenstechnische Abschnitte

- Head-end
- Extraktion
- Tail-end

Im Head-end werden die bestrahlten Brennelemente mechanisch zerlegt und die Brennstäbe zerschnitten, aus denen der bestrahlte Brennstoff mit konzentrierter Salpetersäure herausgelöst wird; dabei bleiben von den zerschnittenen Stabstücken die Hülsen ungelöst zurück.

Im Verfahrensteil Extraktion wird die Abtrennung der Kernbrennstoffe Uran und Plutonium von den nicht nutzbaren Schadstoffen - den Spaltprodukten und den durch Neutroneneinfang gebildeten schweren Actiniden - vorgenommen.

Im Tail-end werden Uranyl- und Plutonium-Nitratlösungen bzw. Uran/Plutonium-Mischoxide hergestellt.

Bezüglich des Tritiums sind nur die Verfahrensabschnitte Head-end und Extraktion von Interesse.

Die ausgelaugten Hülsen, die nach der Auflösung des Brennstoffes im Head-end aus dem Auflöser entnommen werden, enthalten ca. 60 % des Tritiuminventars als Zirkontritid sowie die Aktivierungsprodukte ^{60}Co und ^{55}Fe , die für eine relativ hohe spezifische Aktivität (rd. 8×10^{14} Bq/tU) der Hülsen verantwortlich sind. Pro Tonne Kernbrennstoff fallen etwa 300 kg Hülsen an.

Als Verfahren zur Behandlung der Hülsenabfälle hat sich bislang in vorhandenen Wiederaufarbeitungsanlagen die Überzementierung der Hülsen in 200 l-Fässern bewährt, die wegen des hohen Strahlenpegels der Aktivierungsprodukte in abgeschirmten Behältern transportiert und gehandhabt werden. In Zukunft sollen andere Behandlungsverfahren angewandt werden; so denkt man beispielsweise an

eine Kompaktierung der Hülsen (Volumenreduktionsfaktor >4) und anschließendes Einschweißen der kompaktierten Stücke in Edelstahlbehälter.

Nach dem gegenwärtigen Endlagerkonzept sollen die Hülsenfässer im Salzstock Gorleben in Bohrlöcher eingelagert werden. Bis zur Verfügbarkeit dieses Endlagers müssen die Hülsenfässer in fernbedienbaren abgeschirmten oberflächigen Zwischenlagern gelagert werden, wie z. B. dem im Kernforschungszentrum Karlsruhe.

Das beim Auflösen des Brennstoffes aus dem Auflöser in das Abgas als HT oder HTO freigesetzte Tritium kann nach Durchströmen des Abgases durch ein Katalysatorbett (zur Oxidation des HT zum HTO) in Kühlfallen als HTO abgeschieden werden. Bei bestehenden Wiederaufarbeitungsanlagen wird hiervon jedoch kein Gebrauch gemacht, sondern dieses Tritium wird über den Kamin an die Atmosphäre abgegeben.

Das mit der Brennstofflösung in den Verfahrensabschnitt Extraktion gelangende Tritium geht zum größten Teil gemeinsam mit den Spaltprodukten in den hochaktiven Abfallstrom (HAW). Beim Aufkonzentrieren des HAW gelangt das Tritium hauptsächlich in das Destillat, das der Salpetersäurerückgewinnung zugeführt wird. Die zurückgewonnene Säure wird erneut zur Auflösung von Kernbrennstoff eingesetzt. Dadurch akkumuliert das Tritium in der zurückgewonnenen Säure und wird nach Erreichen eines Grenzwertes von etwa 3,7 TBq/m³ (100 Ci/m³) aus dem Prozeß genommen und beseitigt. Das im HAW-Konzentrat zurückgebliebene Tritium gelangt beim Verglasungsprozeß in die Behandlung des mittelaktiven Abfalls (MAW). Die Tritiumemission über den Luftpfad beträgt etwas mehr als 10 % vom Gesamttritiuminventar.

Etwa 0,5 % des ursprünglich in der wässrigen Phase vorhandenen Tritiums wird zusammen mit dem Uran und Plutonium in die organische Phase extrahiert. Aus dieser kann es in einem Tritiumwäscher mit frischer tritiumfreier Säure entfernt werden, so daß praktisch kein Tritium mehr in die weiteren Prozeßschritte gelangt (Tritiumsperre!).

Für das Genehmigungsverfahren der Wiederaufarbeitungsanlage Wackersdorf wurden mehrere Optionen zur Beseitigung dieser Abwässer diskutiert [2-12]:

- 1000 Ci/a (37 TBq/a) in starker Verdünnung über den Vorfluter,
- 100000 Ci/a ($3,7 \cdot 10^3$ TBq/a) in etwa 1000 m³ Wasser, das in den tiefen Untergrund verpreßt werden sollte, oder als Back-up-Lösung eine Konditionierung in 200 l-Fässern mit hydraulischen Zementen und Verpackung in dichten Behältern, die in ein begehbares Endlager eingelagert werden konnten.

Daneben wurden noch mehrere andere Entsorgungsverfahren im F+E-Bereich entwickelt, wie z.B.:

Tritiumanreicherungsverfahren mit dem Ziel, die abgereicherte Fraktion auf Abgabespezifikation zu bringen,

Tritiumverfestigung in Zeolithen oder durch Metalltritidbildung,

In-situ-Verfestigung von hydraulischen Zementsuspensionen in nicht begehbaren untertägigen Hohlräumen.

Durch den Verzicht auf die nationale Wiederaufarbeitungsanlage in Wackersdorf wurden diese Arbeiten allerdings in Deutschland irrelevant, da für diese Tritiumabfälle keine Rücknahmeeverpflichtung aus den Wiederaufarbeitungsverträgen mit Frankreich und Großbritannien besteht.

2.2 Industrielle Herstellung von Tritium

Die Hauptmenge des industriell hergestellten Tritiums wird durch die Bestrahlung von Lithium in Kernreaktoren gewonnen. Eine weitere Quelle stellt das Deuteriumoxid der Schwerwasserreaktoren dar. In beiden Fällen muß das Tritium über einen Extraktionsprozeß abgetrennt werden.

2.2.1 Tritiumgewinnung durch Bestrahlung von Lithium in Kernreaktoren

Aufgrund des hohen Wirkungsquerschnittes σ_0 des Lithiumisotops der Masse 6 von $\sigma_0 = (940 \pm 4)$ barn [2-13] für thermische Neutronen ($v_0 = 2200$ m/s), entsprechend der Reaktion



werden zur technischen Herstellung von Tritium in Kernreaktoren sowohl Lithium natürlicher Isotopenverteilung als auch an ${}^6\text{Li}$ angereichertes Lithium eingesetzt. Das in der Natur häufiger vorkommende Lithium der Masse 7 trägt zur Bildung von Tritium in thermischen Kernreaktoren nicht bei. In der Praxis werden in erster Linie Lithiumkeramiken, speziell Lithiummetaaluminat, und Lithium/Aluminium-Legierungen (0.7 - 7.4 Gew. % Li) verwendet [2-14], [2-15] und [2-16]).

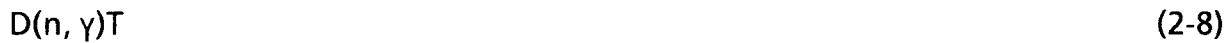
Die Gewinnung des Tritiums aus bestrahltem Lithiummetaaluminat wird durch thermische Entgasung im Vakuum bei Temperaturen von 800 - 900 °C durchgeführt. Die Vakuumextraktion von Tritium erfordert bei der Verwendung von Lithium/Aluminium-Legierungen wesentlich geringere Temperaturen (ungefähr

400 °C) als bei LiAlO_2 und führt zu einem Tritiumprodukt mit geringeren Verunreinigungen.

Unabhängig von der Wahl der bestrahlten Lithiumverbindung oder -legierung sind eine anschließende Abtrennung chemischer Verunreinigungen (z.B. ${}^4\text{He}$, CO , CO_2) nach verschiedenen Methoden und eine Isotopentrennung zur Hochanreicherung des gewonnenen Tritiums, das immer einen erheblichen Anteil von Protium enthält, als anschließende Prozeßschritte erforderlich.

2.2.2 *Tritiumextraktion aus dem Deuteriumoxid von Schwerwasserreaktoren.*

Grundlage für die Gewinnung von Tritium aus Kernreaktoren, die mit schwerem Wasser (D_2O) moderiert werden, bildet die Reaktion



mit einem Wirkungsquerschnitt von $\sigma_0 = (0,519 \pm 0,007) \times 10^{-24} \text{ barn}$ [2-13]. Trotz des kleinen Wirkungsquerschnittes dieser Reaktion werden in diesen Reaktoren wegen der großen Mengen des eingesetzten schweren Wassers erhebliche Tritiummengen gebildet, die durch einen Extraktionsprozeß mit wirtschaftlich vertretbarem Aufwand abgetrennt werden können.

Die erste kontinuierlich arbeitende Tritiumextraktionsanlage wurde am Hochflußreaktor des Laue-Langevin-Instituts in Grenoble, Frankreich, 1970 errichtet [2-17]. Durch den Betrieb der Tritiumextraktionsanlage wird die Konzentration des Tritiums im Schwerwasser des Reaktors im stationären Zustand von 2,96 TBq/l auf kleiner als 0,074 TBq/l herabgesetzt. Das Gesamtinventar an Tritium der Extraktionsanlage beträgt 7400 TBq, bei einem Inventar von 1 m³ Schwerwasser und 85 m³ Deuteriumgas unter Normalbedingungen. Die Extraktion umfaßt im wesentlichen zwei Prozeßschritte:

- 1) Entsprechend den Reaktionen



wird durch katalytischen Isotopenaustausch ein Teil des Tritium- und Protiumgehaltes des Schwerwassers in einen Deuteriumgaskreislauf überführt.

- 2) Durch fraktionierte Destillation bei tiefer Temperatur wird hochangereichertes Tritium am Boden der zweiten Kolonne gewonnen. Durch diese Operation wird das aus dem D_2O entzogene Tritium um einen Faktor

von 10^6 angereichert. Bis zum Ende 1986 wurden $7,2 \times 10^4$ TBq Tritium aus $840 \text{ m}^3 \text{ D}_2\text{O}$ entzogen [2-18].

Die größte Tritiumextraktionsanlage der Welt ist die Tritium Removal Facility (TRF) in Darlington, Kanada [2-19]. Die Anlage wurde 1987 in Betrieb genommen. Sie dient der Dekontamination des tritiumkontaminierten Schwerwassers aus den sogn. CANDU-Reaktoren (CANDU = CANadian Deuterium Uranium) aus Darlington (4 Reaktoren mit 850 MW_e) und Pickering (8 Reaktoren mit 850 MW_e).

Die Planungsdaten der Grenoble- und der Darlington-Anlagen sind in Tabelle 2-5 gegenübergestellt. Das Tritium wird in beiden Anlagen in zwei Prozeßschritten extrahiert: Isotopenaustausch in der Gasphase (VPCE = Vapor Phase Chemical Exchange), gefolgt von einer mehrstufigen Kryodestillation der Wasserstoffisotope. Das in Darlington produzierte Tritium hat der Planung entsprechend eine isotope Reinheit größer als 99 %. Die jährliche Tritiumproduktion in Darlington beträgt ca. 2 kg.

	Grenoble	TRF
Beschickungsgeschwindigkeit [$\text{kg D}_2\text{O}/\text{h}$]	18,4	360
Eingangskonzentration [TBq/kg D_2O] anfangs stationär	0,057	1,11 - 1,26 0,26 - 0,37
Konzentration im Rückfluß [TBq/kg D_2O] anfangs stationär	0,011	0,031 - 0,035 0,01
Tritium-Extraktionsgeschwindigkeit [TBq/a]	5,92 E 03	(629-925) E 03

Tab. 2-5: Planungsdaten der Tritiumextraktionsanlage in Grenoble und der Tritium Removal Facility (TRF) in Darlington [2-17, 2-18, 2-19]

2.3 Verwendung von Tritium

2.3.1 Industrielle Verwendung von Tritium

Den eingesetzten Tritiummengen nach kann man die industrielle Herstellung und den kommerziellen Vertrieb tritiumhaltiger Produkte folgendermaßen gliedern [2-20]:

- 1) Produkte, die auf Radiolumineszenz beruhen und Tritium in abgeschmolzenen Glasgefäßen enthalten,

- 2) Produkte, die auf Radiolumineszenz beruhen und Tritium in Leuchtfarben oder Kunststoffen enthalten,
- 3) Elektronische, elektrische und andere Vorrichtungen.

Die unter 1) genannten Produkte sind sogenannte "Gaseous Tritium Light Sources" (GTLS). An der Innenseite dieser Glasgefäße ist eine phosphoreszierende Schicht angebracht, die durch die Tritium- β -Strahlung Licht emittiert. Beispielsweise werden in der Uhrenindustrie, besonders für LCD-Uhren mit Hintergrundbeleuchtung, die weltweit Millionenfach hergestellt und vertrieben werden, erhebliche Tritiummengen verwendet (ca. 0,01 TBq/Uhr) [2-21]. Die Gesamtaktivität dieses kommerziellen Produktes übersteigt bei weitem die Summe der Aktivität aller anderen tritiumhaltenden kommerziellen Produkte. Zu der Gruppe der GTLS-Quellen gehören ferner Notausgangsschilder für Gebäude, Instrumentenmarkierungen, Beleuchtungen im maritimen Bereich, usw.

Bei Produkten der zweiten Kategorie werden mindestens 10 mal kleinere Aktivitäten an Tritium für das Einzelstück verwendet. Es handelt sich hierbei um die Leuchtmarkierungen von z.B. Uhren, Kompassen, instrumentellen Anzeigen, Wasserwaagen, usw.

Die übrigen, unter 3) aufgeführten Anwendungen umfassen der Tritiummenge nach zunächst Detektoren von Gaschromatographen (0,01 TBq pro Detektor), Elektronenröhren ($< 0,0004$ TBq pro Röhre), Quellen zur Entfernung statischer Aufladungen in Präzisionswaagen (0,00004 TBq), Kaltkathodenröhren und Glimmlampen ($< 0,000004$ TBq). Ferner wäre die Anwendung von Bremsstrahlungsquellen für die Röntgenfluoreszenz und für Dickemessungen zu erwähnen [2-22].

Derzeit sind eine Reihe von Entwicklungen im Gange, z.B. die von Hochdruckmikrolampen, die mit nur 296 MBq (MBq = 10^6 Bq) Tritium pro Lampe gefüllt werden unter Verwendung von ZnS als Phosphor (phosphoreszierende Leuchtmasse) [2-23]. Weiter werden optisch gut durchlässige organische Materialien als Phosphore in Tritiumlampen entwickelt, deren Gebrauchsduer jedoch durch strahleninduzierte Verfärbungen beschränkt ist [2-24]. Auch auf dem Gebiet der tritiumbetriebenen Miniaturbatterien sind neuere Entwicklungen im Gange [2-25].

2.3.2 Wissenschaftlich-technischer Einsatz

In Generatoren für 14 MeV-Neutronen wird die Kernreaktion von Deuteronen mit einem festen mit Tritium beaufschlagten Target (Auftreffplatte) bei

Deuteronenergien von etwa 50-400 keV ausgenutzt [2-26]. Wird eine mit Tritium beladene Titanschicht verwendet, die auf einer Kupferplatte aufgetragen ist, werden Neutronenquellstärken von 1 E 10 - 1 E 12 Neutronen/s erreicht. Besonders hohe Neutronenquellstärken sind mit rotierenden Targets erzielt worden.

Die Neutronengeneratoren sind zunächst vor allem für kernphysikalische Messungen (z.B. Bestimmung von Wirkungsquerschnitten für schnelle Neutronen) angewendet worden. Spezielle Neutronengeneratoren sind für die Bekämpfung von bösartigen Tumoren entwickelt worden [2-27].

Eine weit verbreitete Anwendung findet das Tritium mit Hilfe der sog. Tracer-technik (Indikatormethode) in vielen wissenschaftlichen Bereichen, z.B. in der chemischen, biowissenschaftlichen, klinischen Forschung und in der diagnostischen Medizin [2-28, 2-29].

Eine besondere Anwendung findet die Tritiumtracermethode in der Hydrologie, wobei das Tritium hauptsächlich aus den Kernwaffentests stammt [2-31]. Zu den technischen Anwendungen zählen z.B. Ölverbrauchsmessungen nach dem Tritiumdurchflußverfahren [2-31].

2.3.3 Militärische Anwendungen

Der größte Anteil des in der Welt erzeugten Tritiums wurde bisher für die Herstellung von Kernwaffen verwendet. Nach einem auf Teller-Ulam zurückgehenden Prinzip wird in Wasserstoffbomben ^6LiD (Lithiumdeuterid) mit Hilfe eines "Zünders" aus spaltbarem Material (^{235}U oder ^{239}Pu) auf die zum Ablauf der Fusionsreaktion nötige Temperatur gebracht [2-32]. Das für die Deuterium-Tritium-Fusion erforderliche Tritium wird dabei nach der Reaktion



spontan durch die Spaltneutronen (n) aus Lithium-6 erzeugt. Die Fusionsreaktion verläuft nach



Eine Zufuhr von künstlich erzeugtem Tritium ist daher bei diesem Konzept außer für die Funktion des "Zünders" nicht erforderlich (s. unten).

In der Neutronenbombe wird als thermonuklearer Brennstoff $^6\text{Li}_2\text{DT}$ anstelle des ^6LiD verwendet [2-33]. Eine Umhüllung aus ^9Be dient als neutronenvervielfachender Reflektor, so daß die Energie im wesentlichen durch die Neutronen abgeführt

wird. Zur Zündung wird ebenfalls eine Anordnung aus spaltbarem Material verwendet.

Tritium findet auch Verwendung bei der sog. "boosting"-Technik, womit eine wesentliche Erhöhung der Ausbeute einer Spaltkernwaffe erreicht wird. Hierzu wird eine relativ kleine Menge Fusionsbrennstoff ins Zentrum des spaltbaren Stoffes eingebracht. Diese Methode wird in den meisten kleinen auf der Spaltung beruhenden Kernwaffen und auch in den "Zündern" von Fusionswaffen verwendet. Bei der Detonation einer Spaltwaffe entstehen im Zentrum des "core" extrem hohe Drücke (Größenordnung 1 E 12 bar) und Temperaturen (1 E 07 K). Unter diesen Bedingungen werden Fusionsreaktionen eingeleitet, und die durch Fusion erzeugten Neutronen hoher Energie kollidieren mit spaltbaren Kernen. Dies ist eine der synergistischen Wirkungen zwischen Spalt- und Fusionsreaktionen.

2.3.4 *Tritium in Fusionsanlagen*

Ein interessantes und langfristig wichtiges Einsatzgebiet von Tritium ist seine Verwendung als Brennstoff in künftigen Kernfusionsanlagen zur Energieerzeugung.

Wie in Kapitel 1.2 beschrieben, können leichte Kerne, wie die Wasserstoffisotope Deuterium und Tritium, entsprechend der Reaktion



miteinander verschmelzen (fusionieren). Hierbei entsteht ein Heliumkern (α -Teilchen), der etwa 20 % und ein schnelles Neutron, das etwa 80 % der gewonnenen Energie transportiert. Eine solche Kernfusion ist allerdings nur möglich, wenn die Deuterium- und Tritiumkerne gegen die abstoßende Kraft ihrer positiven Kernladungen nahe genug zusammengebracht werden. Die Teilchen müssen also mit ausreichend hoher Geschwindigkeit aufeinander zufliegen, daß heißt auf hohe Temperaturen über 100 Millionen Grad aufgeheizt werden. Bei diesen Temperaturen sind die Atome eines Gases in ihre Bestandteile - Elektronen und Kerne - zerlegt. Ein solches Gas weicht in seinen Eigenschaften stark von normalen Gasen ab und wird als Plasma bezeichnet. Ein Plasma ist elektrisch leitend, seine Bewegung lässt sich daher durch magnetische und elektrische Felder beeinflussen. Dies macht man sich in den Fusionsapparaturen zunutze, wo man das heiße Plasma in einen "Magnetfeldkäfig" einschließt und so von materiellen Wänden fernhält. Die entstehenden energetischen α -Teilchen übertragen ihre Energie auf das Plasma.

Im Gegensatz zu den geladenen Plasmateilchen können die freigesetzten schnellen Neutronen den magnetischen Einschluß problemlos durchdringen. Läßt man

sie in einem sogenannten Brutmantel auf Lithium einwirken, so entsteht nach den Reaktionen



in der Fusionsanlage selbst das als Brennstoff benötigte Tritium. Deuterium, die zweite Brennstoffkomponente, kommt in den Ozeanen in relativ hoher Häufigkeit vor und steht für Millionen Jahre zur Energiefreisetzung durch Kernfusion zur Verfügung.

Abb. 2-1 zeigt das Funktionsschema und Abb. 2-2 die wichtigsten Verfahrensschritte des geschlossenen Brennstoffkreislaufes eines Fusionsreaktors [2-34]. Der Brennstoffkreislauf muß so konzipiert werden, daß er der Bedingung der Selbstversorgung mit Tritium genügt [2-35]. Hierzu muß etwas mehr Tritium "erbrütet" werden als durch den radioaktiven Zerfall und durch kleine Verluste während des Reaktorbetriebes verloren geht. Es wird z.Z. angenommen, daß etwa 5 % des eingesetzten Brennstoffs (D, T) Fusionsreaktionen eingeht; das entstandene Helium sowie durch Wechselwirkung des Plasmas mit der inneren Toruswand entstandene Verunreinigungen werden durch das *Toruspumpsystem* entfernt. Anschließend wird der von Verunreinigungen getrennte reine Brennstoff (System *Trennung Brennstoff/Verunreinigungen*) dem *Brennstoffmanagement* zugeführt. Der Hauptanteil des Brennstoffs wird nach Wiederherstellung der optimalen Zusammensetzung (*Brennstoffmischung*) unmittelbar in das Plasma zurückgeführt. Alternativ kann der Brennstoff in Form kleiner Festkörper (Pellets) aus gefrorenem D, T mit hoher Geschwindigkeit in das Plasma eingeschossen werden (*Pellet Injektion*). Zur Plasmaheizung werden auch Neutralteilchen (ungeladene Deuteriumteilchen) bei hohen Energien ins Plasma injiziert (*Neutralteilcheninjektion*).

Die in der Einheit *Trennung Brennstoff/Verunreinigungen* abgetrennten Gase enthalten Helium, ferner Kohlenwasserstoffe, Wasser und Ammoniak, in denen Deuterium und Tritium chemisch gebunden vorliegen. Daneben kommen im Abgas noch Verunreinigungen vor, die keinen Wasserstoff enthalten. In der Einheit *Rückführung chemisch gebundenen Tritiums* werden durch chemische Prozesse die gebundenen Wasserstoffisotope freigesetzt und in reiner Form an das *Brennstoffmanagement* zurückgeleitet.

Durch die *Isotopentrennung* wird die für den Fusionsprozeß benötigte Isotopenmischung ($D/T = 1$) gewonnen. Für den Beginn der Operationen eines Fusionsreaktors muß genügend Brennstoff zur Füllung des gesamten Systems zur Verfügung stehen; die entsprechende Tritiummenge wird in der Einheit *Tritiumspei-*

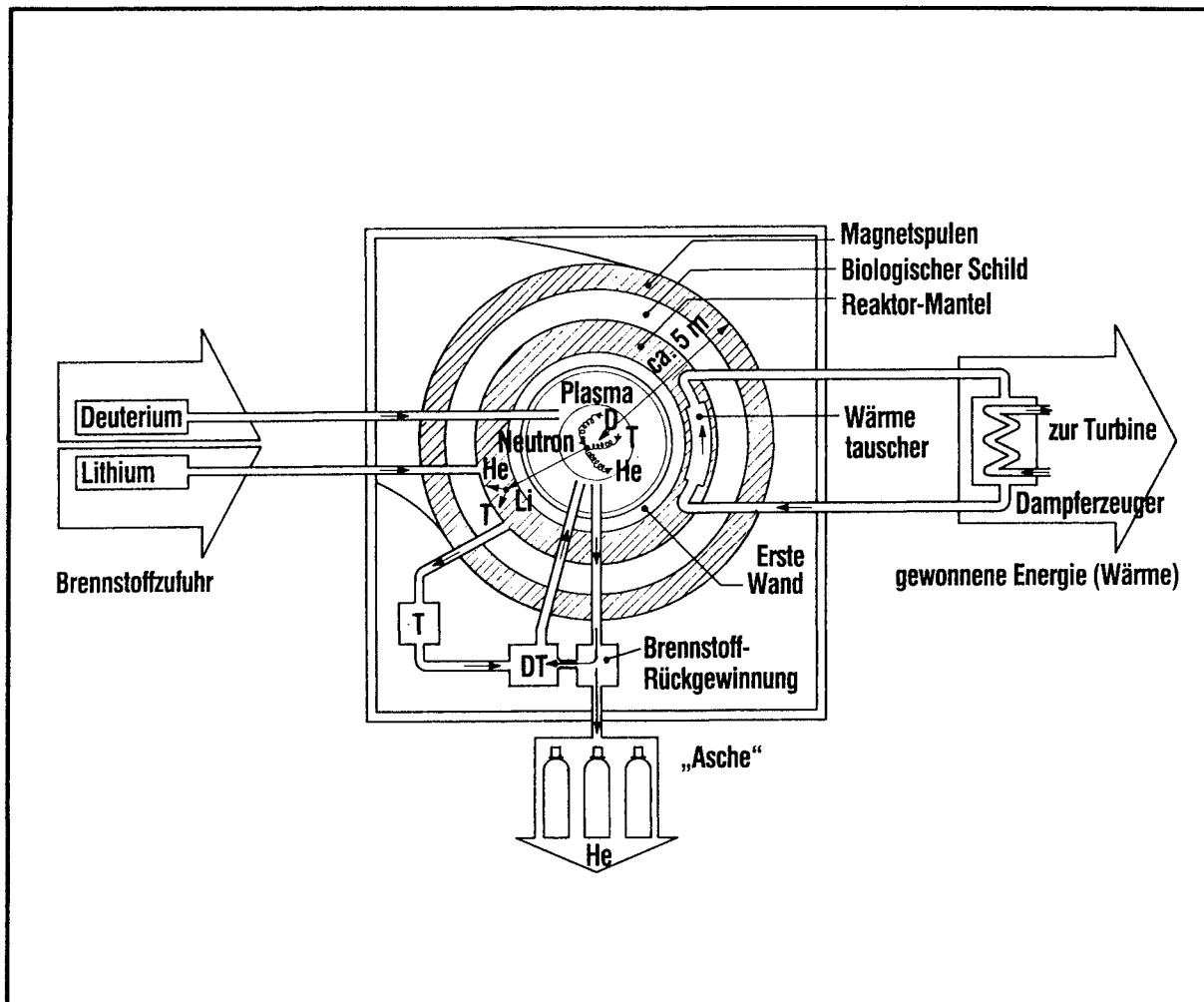


Abb. 2-1: Funktionsschema eines Fusionsreaktors. Das ringförmige Plasma ist von der Ersten Wand umgeben, gefolgt von dem Reaktormantel (oder Blanket), dem biologischen Schild und den supraleitenden Magnetspulen. Im Plasma ist die DT-Fusionreaktion symbolisch dargestellt. Die geladenen Teilchen werden durch das Magnetfeld eingeschlossen. Das ungeladene Neutron dagegen entweicht aus dem Plasma und wird im Blanket abgebremst und/oder absorbiert. Bei der Abbremsung wird das Blanketmaterial erwärmt. Die Wärme wird mit einem Wärmetauscher in den Sekundärkreis gebracht. Dort kann auf konventionelle Weise elektrische Energie erzeugt werden. Wird im Blanket ein Neutron von Lithium absorbiert, so findet eine Brutreaktion statt, und Tritium wird erzeugt. Dieses wird separiert und dem Plasma als Brennstoff zugeführt. Der Brennstoff Deuterium wird dem Plasma von außen zugeführt. Das bei der DT-Reaktion entstehende Helium wird aus dem Plasma abgepumpt.

cherung aufbewahrt. Eine zusätzlich gespeicherte Menge an Tritium kann der Überbrückung von Ausfallzeiten von Einheiten des Tritiumversorgungssystems dienen.

Das im Brutmantel entstehende Tritium muß extrahiert (*Extraktion von Tritium aus dem Blanket*) und ebenfalls einem Reinigungsschritt unterzogen werden.

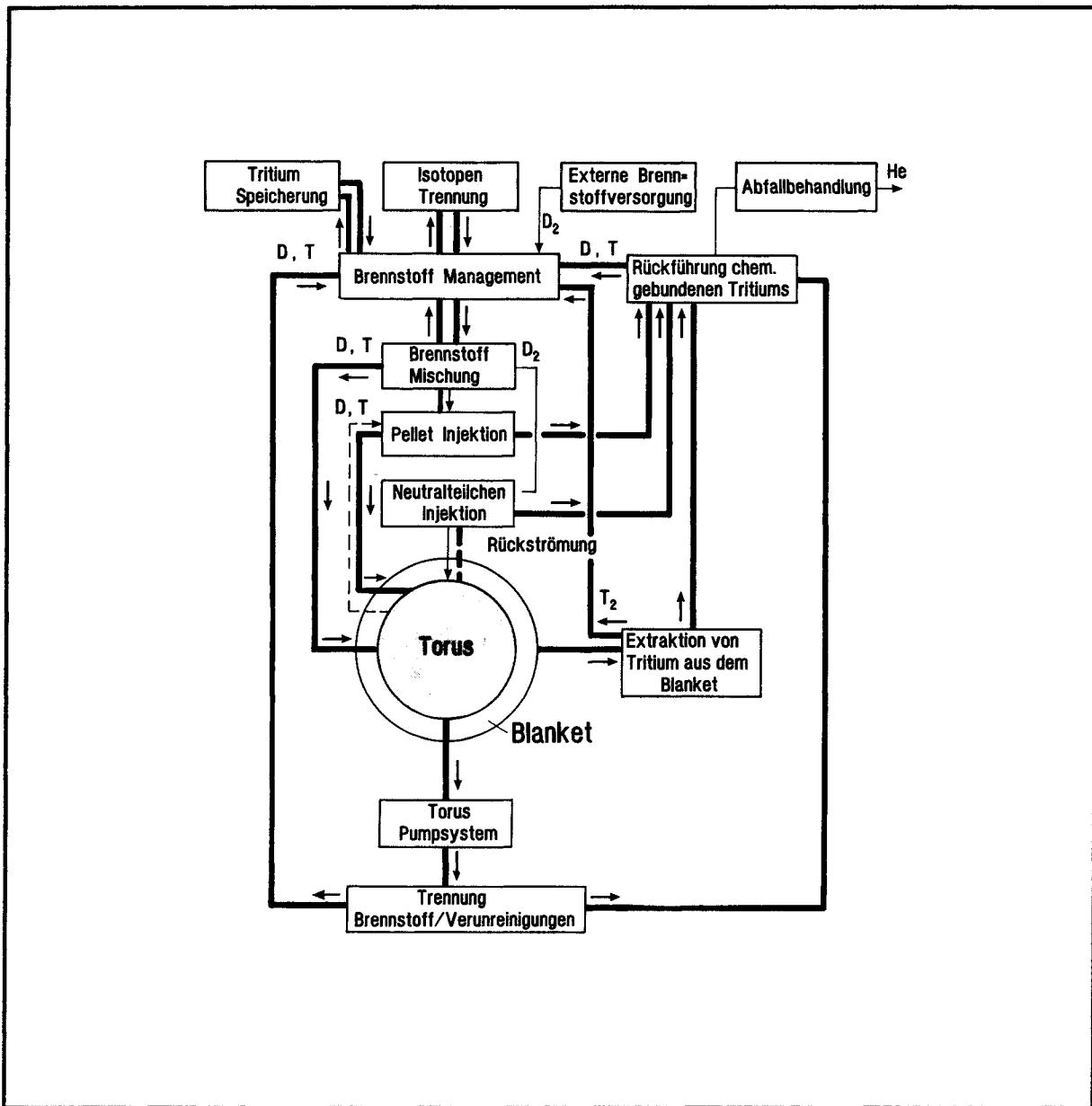


Abb. 2-2: Schema des Brennstoffkreislaufs in einem Fusionsreaktor

Das Deuterium wird dem Brennstoffkreislauf von außen zugeführt (*Externe Brennstoffversorgung*), das durch Kernreaktionen entstehende Helium wird von Tritium befreit und kann danach an die Atmosphäre abgegeben werden.

Analytische Behandlungen der Tritiumerfordernisse für einen Kernfusionsreaktor führen zu folgenden wesentlichen Schlüssen [2-35, 2-36]:

Die Tritiuminventare der einzelnen Systemkomponenten eines Brennstoffkreislaufes sollten so klein wie möglich und miteinander vergleichbar sein.

Die nicht durch radioaktiven Zerfall entstehenden Verluste an Tritium müssen aus Gründen der Tritiumökonomie und der Umweltschonung minimiert werden. Besonders kritisch sind die Tritiumverluste in den Einheiten, die der

Rückführung des Tritiums dienen (innerer Kreislauf). Wegen des relativ geringen Anteils an Brennstoff, der im Plasma verschmilzt, muß ein großer (D , T)-Strom im inneren Kreislauf prozessiert werden. Wenn z. B. nur ein Anteil von 5 % des Brennstoffes im Plasma verschmilzt, dürfen die Verluste in den Einheiten des inneren Brennstoffkreislaufes nicht größer als 0,1 % sein, wenn nicht übermäßig hohe Anforderungen an die Tritiumerzeugung im Blanket gestellt werden sollen.

Die im stationären Zustand im Brutmantel vorhandene Tritiummenge sollte so klein wie möglich sein. Dies ist eine hohe Anforderung, da es sich um große Massen an Blanketmaterial handelt.

In Tabelle 2-6 sind Daten zur Verteilung der Tritiummengen in den wichtigsten Einheiten des jetzt in Planung befindlichen Großexperiments ITER (International Thermonuclear Engineering Reactor) angegeben. Es sind Daten für das Maximum und das Minimum an Tritiuminventar genannt, was z.T. dadurch bedingt ist, daß es sich bei den Einheiten um verschiedene Konzepte der technischen Durchführung handelt.

System	Inventar (g) max./min.
Brennstoffzufuhr	270/195
Plasmapumpsysteme	640/32
Plasmaabgasreinigung	210/50
Isotopentrennung	430/340
Kühlwasserdetritierung	40/10
Tritiumrückgewinnung aus Gasen	30/3
Tritiumenthaltende Festkörper und Rückgewinnung des Tritiums aus Festkörpern	2180/300
Tritiumspeicher	1220/920
Schutz der Ersten Wand und des Divertors	970/250
Kühlwasser, Erste Wand und Divertor	70/10
Brutmantel (keramischer Festkörper)	220/40
Gesamt	6280/2150

Tab. 2-6: Schätzung des maximalen und minimalen Tritiuminventars für ITER (Physikphase) [2-37]

Die Funktion der ersten vier genannten Einheiten sowie des Tritiumspeichers und des Festkörperbrutmantels sind in der Abbildung 2-2 erläutert. Ein relativ kleines Inventar wird für Einheiten der Detritiierung und der Rückgewinnung von Tritium aus Gasen berechnet. Es ist erforderlich, ein gewisses Tritiuminventar tritiumhaltigen Festkörpern zuzuordnen. Auch der Rückgewinnung dieses Tritiumgehalts muß Rechnung getragen werden. Besonders aufgeführt in der Zusammenstellung ist das Tritiuminventar der Armierung der Ersten Wand und des sog. Divertors (Vorrichtung zur Abscheidung von Verunreinigungen aus dem Plasma). Beide müssen gekühlt werden. Diese Kühlwässer haben nur ein relativ geringes Tritiuminventar.

Ähnliche Tritiuminventare wie für ITER erwartet man auch in späteren Leistungsreaktoren. Diese werden wahrscheinlich nicht vor Mitte des nächsten Jahrhunderts zur Verfügung stehen.

2.4 Zusammenfassung

Die Bildung von Tritium durch Kernreaktionen kosmischer Strahlen mit Materie der Erdatmosphäre führt zu sehr kleinen stationären Konzentrationen ($T/H \approx 10^{-18}$) in Oberflächengewässern und den oberen Schichten der Ozeane. Ein kleiner Anteil des gebildeten Tritiums stammt aus Kernreaktionen in der Erdkruste (Spontanspaltung und Zerfall von Uran und Thorium).

Der größte Teil des heute in der Natur enthaltenen Tritiums stammt aus den Kernwaffentests der fünfziger Jahre. Die künstliche Herstellung von Tritium erfolgt in Kernspaltungsreaktoren durch Bestrahlung von Lithiumlegierungen oder keramischen Lithiumverbindungen mit Neutronen und anschließende Extraktion des Tritiums. Eine weitere Quelle für Tritium stellt das Deuteriumoxid der sog. Schwerwasserreaktoren dar. Aus den kanadischen "CANDU" Reaktoren werden heute ca. 2 kg/Jahr aus schwerem Wasser gewonnen.

Tritium entsteht ferner als Spaltprodukt bei der Kernspaltung (Häufigkeit = 0,01 - 0,02 %). In den heliumgekühlten Reaktoren wird Tritium durch Reaktion von ^3He mit Neutronen gebildet. Die beiden letztgenannten Quellen sind zur wirtschaftlichen Gewinnung von Tritium nicht geeignet. Auch die in der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen anfallenden Tritiummengen können nicht mit vertretbarem Aufwand wiedergewonnen werden.

Vielfältige Nutzung findet Tritium zur Herstellung von Leuchtfarben und Leucht-röhren, z. B. in der Uhrenindustrie, im maritimen Bereich und in der Luftfahrt, ferner für Markierungszwecke in militärischen Geräten.

Tritium wird gebraucht für den Betrieb von Neutronengeneratoren und findet weiter Anwendung als sog. Tracer in Wissenschaft und Technik.

Bei der militärischen Nutzung von Tritium steht die Herstellung von Kernwaffen im Vordergrund.

In einem künftigen Fusionsreaktor wird Tritium und Deuterium als Brennstoff eingesetzt. Nach dem heutigen Stand der Planung werden in der Versuchsanlage ITER mit einer Leistung von 1 GW_{th} etwa 130 g Tritium täglich durch Fusion verbraucht und ca. 2,5 kg Tritium im gleichen Zeitraum rezykliert; jedoch beträgt das Gesamtinventar an Tritium nur einige Kilogramm, da der Reaktor das benötigte Tritium selbst erzeugt. Mit den heute in der Entwicklung stehenden Verfahren konnte das für einen Fusionsreaktor benötigte Tritiuminventar bereits erheblich herabgesetzt werden. Besondere Anstrengungen gelten auch der Minimierung der Freisetzung von Tritium in die Umgebung.

2.5 Literatur zu Kapitel 2

- [2-1] S. Kaufmann, W. F. Libby,
The natural distribution of tritium,
Phys. Rev. 93 (1954) 1337.
- [2-2] L. A. Currie, W. F. Libby,
Tritium production by high-energy protons,
Phys. Rev. 1010 (1956) 1557.
- [2-3] M. Eisenbud, B. Bennett, R. E. Blanco, E. L. Compere, E. Goldberg,
D. G. Jacobs, J. Koranda, A. A. Moghissi, J. H. Rust, J. K. Soldat,
Tritium in the environment - NCRP report No. 62,
IAEA-SM-232/101 (1979).
- [2-4] A. S. Mason, H. H. Östlund,
Atmospheric HT and HTO: V. Distribution and large scale circulation,
IAEA-SM-232/62 (1979) p.3.
- [2-5] E. Eriksson,
An account of the major pulses and their effects in the atmosphere,
Tellus 17 (1965) 11.
- [2-6] R. Michel
Tritium inventories of the world oceans and their implications,
Nature 263, 103 (1976).

- [2-7] C.E. Rolfs, W.S. Rodney,
Cauldrons in the Cosmos,
Nuclear Astrophysics, The University of Chicago Press Ltd., London (1988).
- [2-8] H. Frauenfelder, E.M. Henley,
Subatomic Physics,
Prentice Hall, Inc., Englewood Cliffs, N.J. (1974).
- [2-9] Handling of tritium-bearing wastes,
IAEA Technical Reports Series No. 203, (1981).
- [2-10] U. Fischer, H. Wiese,
Verbesserte konsistente Berechnung des nuklearen Inventars abgebrannter DWR-Brennstoffe auf der Basis von Zell-Abbrand-Verfahren mit KORIGEN,
KfK 3014, Januar 1983.
- [2-11] United Nations Scientific Committee on the effects of atomic radiation sources and effects of ionizing radiation, Annex D,
Radioactive contamination due to Nuclear Power Production,
UNSCEAR, New York (1977).
- [2-12] Bayerisches Staatsministerium für Landesentwicklung und Umweltfragen -
Tritium-Rückhaltung in Wiederaufarbeitungsanlagen,
Symposium am 20. und 21. Oktober, München (1983).
- [2-13] S. F. Mughabghab, M. Divadeenam, N. E. Holden,
Neutron cross sections,
Vol. 1, Part A, Academic Press (1981).
- [2-14] J. Harding Owen, D. Randall,
Equilibrium and kinetic studies of systems of hydrogen isotopes,
lithium hydrides, aluminum and LiAlO₂,
Proc. Int. Conf. Gatlinburg, Tenn. Oct. 1-3 (1975), CONF-750989, Vol III p.433.
- [2-15] M. Tanase, M. Kato, K. Kurosawa, S. Motoishi, S. Okano,
H. Sugai, M. Fijie, K. Onoma, H. Yamabayashi,
Test production of tritium in 1000 Ci level from 6Li-Al alloy target,
JAERI-M 86-189 (1987).
- [2-16] P. Hugony, H. Sauvage, E. Roth,
La production de tritium en France,
BIST du CEA, Nr. 178, Febr. (1973).
- [2-17] G. P. Pautrot, J. P. Arnould,
The tritium extraction plant of the Laue Langevin Institute,
Am. Nucl. Soc. 20 (1975) 202.
- [2-18] G. P. Pautrot,
The tritium extraction facility at the Institute Laue Langevin: experience of operation with tritium,
Fusion Technol. 14 (1988) 480.
- [2-19] K. Wong, T. A. Kahn, F. Guglielmi,
Canadian tritium experience,
Bericht des Canadian Fusion Fuels Technology Projects,
2700 Lakeshore Road West, Mississauga, Ontario, Canada L5J 1K3 (1984).
- [2-20] G. Wehner,
Discharges of tritium to the environment from unrestricted use of consumer products containing the radionuclide,
IAEA-SM 232/59, Wien (1979).

- [2-21] F. Combs, R. J. Doda,
Large-scale distribution of tritium in a commercial product,
IAEA-SM-232/57 Wien (1979).
- [2-22] E. A. Evans,
Tritium and its compounds,
London Butterworths, 2nd ED. (1974).
- [2-23] R. E. Ellefson,
High pressure bulk-phosphor tritium lamps,
CONF 9009201-10, Chap. 8 (1990).
- [2-24] C. L Renschler, T. J. Sheppard, R. L. Clough, J. T. Gill, J. A. Tompkins,
All-organic, optically clear, radioluminescent lights,
SAND-90-2120C (1990).
- [2-25] R. J. Walko, C. S. Ashley, C. J. Brinker, S. C. Reed, C. L. Renschler,
T. J. Sheppard, R. E. Ellefson, J. T. Gill, L. E. Leonard,
Electronic and photonic power applications,
CONF 9009201-1, Chap. 13 (1990).
- [2-26] M. Guillaume, G. Delfiore, G. Weber, M. Cuypers,
On the optimal generation of 14 MeV neutrons by means of tritiated titanium targets,
Nucl. Instr. Methods 92 (1971) 571.
- [2-27] B. P. Offermann,
Neutronenbestrahlungsanlagen in der Medizin,
Kerntechnik 18 (1976) 297.
- [2-28] R. C. Thompson,
Biological applications of tritium,
Nucleonics 12 (1976) 283.
- [2-29] E. A. Evans,
Radioisotope weisen neue Wege,
Chemie-Technik, 5 (1976) 283.
- [2-30] H. Moser,
Nukleare Techniken in der Hydrologie,
Kerntechnik 18 (1976) 461.
- [2-31] W. Bentele,
Einsatz von Radionukliden zu Kavitations-, Verschleiß- und Ölverbrauchsmessungen
im Motorenbau,
Kerntechnik 14 (1972) 584.
- [2-32] F. Winterberg,
The physical principles of thermonuclear explosive devices,
Fusion Energy Foundation, New York (1981).
- [2-33] C. Hansen,
U.S. nuclear weapons, the secret history,
Orion Books Crown Publishers Inc., New York (1988).
- [2-34] R.-D. Penzhorn, J. Anderson, R. Haange, B. Hircq, A. Meikle, Y. Naruse,
Technology and component development for a closed tritium cycle,
Fusion Eng. Design 16 (1991) 141.
- [2-35] M. A. Abdou, E. L. Vold, C. Y. Gung, M. Z. Youssef, K. Shin,
Deuterium-tritium fuel self-sufficiency in fusion reactors,
Fusion Technol. 9 (1986) 250.
- [2-36] F. Carré, E. Proust, A. Rocaboy
Analysis of the tritium requirements for a power reactor,
Nuclear Technology/Fusion 4 (1983) 93.

- [2-37] D. Leger, P. Dinner, H. Yoshida, R. Fleming, J. Anderson, A. Andreev, M. Asahara, J. C. Boissin, P. Finn, M. Gouge, M. Iseli, V. Kapishev, S. Kobayashi, B. Kuteev, O. Kveton, M. Müller, D. Murdoch, K. Nagashima, J. Nasize, R.-D. Penzhorn, D. V. Serebrennikov, G. Shatalov, R. Sherman, T. Suzuki, D. Sze, N. Tanemori, V. Vasilev, S. Willms,
ITER Fuel Cycle, ITER Documentation Series No. 31,
IAEA, Wien (1991).

3. Tritiumtechnologie

*H. Albrecht, K. Heiß, E. Hutter, H. R. Ihle, G. Jourdan, H. Kraemer,
R.-D. Penzhorn, H. Wertenbach*

3.1 Vorbemerkung

Bei der Handhabung von Tritium sind zwei Eigenschaften des Tritiums von entscheidender Bedeutung:

- Tritium ist radioaktiv. Dies verlangt einen dichten Einschluß.
- Tritium ist ein Wasserstoffisotop und kann sich wie normaler Wasserstoff in Festkörpern lösen und durch sie hindurchdiffundieren. Diese Eigenschaft erschwert den Einschluß des Tritiums und verlangt besondere technische Maßnahmen.

Wie in Kapitel 2 erwähnt, kommt Tritium nicht nur in Kernspaltungsreaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen vor, sondern wird auch in verschiedenen zivilen und militärischen Bereichen genutzt. Aus all diesen Bereichen liegen langjährige Erfahrungen über den sicheren Umgang mit Tritium vor, die von der IAEA in [3-1] sehr übersichtlich zusammengestellt wurden. Das vorliegende Kapitel konzentriert sich in erster Linie auf die für künftige Fusionsreaktoren relevanten technologischen Aspekte. (Spezielle Technologien, wie sie im militärischen Bereich oder im zivilen Bereich, z. B. der Uhrenindustrie, Verwendung finden, werden nicht beschrieben.)

Fusionsrelevante Probleme der Tritiumtechnologie sind Einschluß, Lagerung und Transfer von Tritium, Reinigung tritiumhaltiger Plasmaabgase und Wasserstoffisotopentrennung, Dekontamination und Entsorgung tritiumhaltiger Abfälle, Tritiummeßtechnik und -bilanzierung.

Von besonderer Bedeutung sind technologische Entwicklungsarbeiten zum Brennstoffkreislauf von Fusionsreaktoren. Die hierzu erforderlichen Komponenten und Verfahren müssen weiterentwickelt und im NET/ITER-relevanten Maßstab getestet werden. Ein wichtiges Entwicklungsziel ist die Minimierung der Tritiuminventare, der Tritiumfreisetzung und der Abfallmengen.

3.2 Einschluß

3.2.1 Mobilität von Tritium

Wie in Kapitel 1 ausgeführt, können Tritium und seine Verbindungen gasförmig oder als kondensierte flüssige bzw. feste Phasen auftreten. Gasförmiges Tritium löst sich in Metallen, organischen und auch in anorganischen Festkörpern und wird in ihnen durch Diffusion transportiert. Tritium kann daher wie Protium und Deuterium besonders bei erhöhter Temperatur das zum Einschluß verwendete Material durchdringen. Diese Eigenschaft führt zu einer gewissen Tritiumleckage, die durch technische Maßnahmen beherrscht werden muß.

Zu den wichtigsten Sicherheitsmaßnahmen für Anlagen, in denen Tritium gehandhabt wird, zählen daher der Einschluß des Tritiums durch wirksame Barrieren und das sofortige Abscheiden von entwichenem Tritium mit einem dafür ausgelegten Tritiumrückhaltesystem.

3.2.2 Barrieren

Eine effektive Verhinderung der Tritiumausbreitung wird durch die Einrichtung von mehreren druckgestaffelten Zonen erreicht.

Tritiumführende Anlagen werden gewöhnlich mit einer doppelten Umschließung (Containment) umgeben. Die Art des Primär- und des Sekundärcontainments hängt vom Tritiuminventar und von den durchzuführenden Arbeiten ab. Im folgenden werden typische technische Lösungen für den sicheren Tritumeinschluß am Beispiel eines Tritiumlabors erläutert.

In einem Tritiumlabor besteht das Primärcontainment üblicherweise aus den Prozeßapparaturen, beispielsweise Reaktionsgefäß, Rohrleitungen, Ventilen, Pumpen und Meßeinrichtungen. Das Sekundärcontainment wird häufig von einem Handschuhkasten gebildet, kann in einigen Fällen aber auch eine metallische Umschließung (Caisson) sein, deren Inhalt in das Sämmesystem für aktive Abfälle des Gebäudes abgegeben wird. In Prozessen, in denen mit tritiumhaltigen Feststoffen gearbeitet werden muß, ist ein doppeltes Containment häufig nicht realisierbar. In diesen Fällen wird der Handschuhkasten zum Primärcontainment.

Ein tertiäres Containment kann von der Raum- und Gebäudestruktur gebildet werden, in der sich Handschuhkästen, Abzüge usw. befinden, mit einem Sammel- und Detritiierungssystem für die von den Arbeitsbereichen abgesaugte Luft. Eine

Bereichs- und Lüftungskontrolle ist vorzusehen, um die Wirksamkeit der Maßnahmen zur Verhinderung einer Tritiumkontamination der sauberen Bereiche durch Luft aus den Arbeitsbereichen überwachen zu können.

Primärcontainment

- Strukturwerkstoffe

Als Strukturwerkstoffe für die Behälter und Rohrleitungen des Primärcontainments kommen in erster Linie austenitische Edelstähle mit niedrigem Kohlenstoffgehalt, Typ 304L und 316L, reduziertes Kupfer und Aluminiumlegierungen in Frage. Kupfer und Aluminium besitzen eine geringere Durchlässigkeit für Tritium als Stahl, sind jedoch bei höheren Temperaturen weniger stabil und haben einen geringeren Kriechwiderstand. Es ist schwieriger, Aluminium haltbar zu verschweißen, und es kann schwierig sein, es mit Komponenten aus anderen Werkstoffen zu verbinden. Die Rohrinnenflächen aller Strukturwerkstoffe sollten vor ihrem Einsatz gereinigt werden, um Ölfilme und sonstige Verunreinigungen zu entfernen.

Die Verwendung von Ganzmetallkomponenten für das Primärcontainment wird empfohlen, damit keine Öle, Kunststoffe, Elastomere oder organische Stoffe mit Tritium in Berührung kommen. Eine Anlage mit verschweißten Rohrleitungen und Metallabdichtungen ist im Hinblick auf die Leckdichtheit der beste Komromiß. Ventile, Meßwertwandler und sonstige Anlagenkomponenten, die nur begrenzte Standzeit haben, können durch Verwendung von zerlegbaren Verbindungsstücken und Standardarmaturen ohne Schneide-, Schweiß- oder Lötarbeiten an tritiumkontaminierten Rohren ausgewechselt werden. Die Erfahrung zeigt, daß eine richtig ausgelegte und zusammengebaute Tritiumanlage mit Hunderten demontierbarer Komponenten eine Leckdichtheit aufweisen kann, die der eines komplett verschweißten Systems gleichkommt.

- Ventile und Armaturen

Dichtungslose Metallbalg- oder Membranventile werden für den Einsatz mit Tritium empfohlen. Sie können über pneumatische Schalter fernbedient werden, was z. B. bei Arbeiten im Handschuhkasten von Vorteil ist. Manuell betätigtes Ventile haben den Vorteil, daß sie einfach sind, sollten jedoch nach Möglichkeit mit drehmomentbegrenzten Griffen benutzt werden. Der Ventilsitz oder die Ventilspitze sollte metallisch sein oder, wenn nicht anders möglich, aus nichtfluoriertem, strahlenbeständigem Material bestehen, beispielsweise aus Polyimid.

In Prozessen, die eine Druckentlastung erfordern, sollten Berstscheiben aus tritiumkompatiblem Material, beispielsweise Aluminium, eingesetzt werden. Entlastungsventile haben sich als unzuverlässig erwiesen, weil durch die Ventilsitzdichtungen Tritium austreten kann. Die Berstscheiben sollten in einen evakuierten Auffangtank druckentlastet werden, der ebenfalls durch eine Berstscheibe geschützt ist.

Hochvakuumarmaturen mit zerlegbaren Metallabdichtungen sind auf dem Markt erhältlich. Für Tritiumarbeiten in Handschuhkästen sind sogenannte Cajon-Armaturen, für deren Ausbau kein Axialspiel benötigt wird, besonders geeignet, da zusammen mit ihnen eingebaute Komponenten ohne Beeinträchtigung der Verbindungsleitungen entfernt werden können. Diese Art der Armatur wird für Rohrgrößen bis zu 25 mm benutzt. Für größere Rohre können sog. Conflat-Flansche und -armaturen benutzt werden.

- Pumpen

Ideal für das Pumpen von Tritium sind trocken laufende, hermetisch abgedichtete und dichtungslose Pumpen ohne Öle als Schmiermittel und ohne Elastomere oder Fluorkohlenwasserstoffe. Für Arbeiten im Hochvakuum kann die Metallbalgpumpe ergänzt werden durch eine Spiralpumpe mit Balgendichtung. Andere mechanische Pumpen mit hermetisch abgedichteten Antrieben sind die Turbomolekularpumpen mit Magnetlager.

Sekundärcontainment

- Handschuhkästen

In Tritiumlabors stellen die Handschuhkästen für die Handhabung großer Tritiummengen gewöhnlich sehr dichte Umschließungen dar, hergestellt aus verschweißtem Edelstahl oder Aluminium, mit einer geeigneten Anzahl von Fenstern und Handschuhöffnungen. Ecken und Kanten sind nach Möglichkeit abgerundet, und der Edelstahl ist poliert, um die Oberfläche glatt zu machen und das Reinigen zu erleichtern. Das Fenstermaterial kann geschichtetes Sicherheitsglas oder Polykarbonat (Lexan oder Makrolon) sein. Die Fenster sollten zur Umschließung hin mit weichen Gummidichtungen abgedichtet sein, um die Leckrate niedrig zu halten.

Wenn die Entscheidung für ein Containment gefallen ist und Handschuhkästen benutzt werden, ist festzulegen, ob als Atmosphäre Luft oder ein Inertgas (Stickstoff oder Edelgas) gewählt werden soll. Luft als Atmosphäre ist billiger und

leichter aufrechtzuerhalten als Schutzgas. Sie hat jedoch auch einige Nachteile. Nach einer Freisetzung von Tritiumgas in den Handschuhkasten kann sich beispielsweise ein explosives Gemisch bilden. Falls sich zusätzlich Protium oder Deuteriumgas in der Anlage befindet, erhöht sich die Gefahr entsprechend. Der Sauerstoff in der Luft kann zu höheren HTO-Konzentrationen im Handschuhkasten führen. Sofern die zugeführte Luft nicht getrocknet wird, kann auch die Feuchtigkeit in der Handschuhkastenatmosphäre Tritium aufnehmen, über die Handschuhe ausdiffundieren und damit das Personal einer Strahlung aussetzen. Ein Teil des Tritiumwassers kann von den Innenflächen des Handschuhkastens sorbiert werden, was eine permanente HTO-Strahlenquelle ergibt und die folgenden Dekontaminationsarbeiten erschwert. Der Feuchtigkeitsgehalt im Handschuhkasten ist so niedrig wie möglich zu halten.

Eine Schutzgasatmosphäre gewährt Schutz vor Bränden und Explosionen und verringert die Probleme in Zusammenhang mit dem im Handschuhkasten gebildeten HTO. Vom Standpunkt der sicheren Handhabung aus ist trockener Stickstoff in vielen Fällen eine befriedigendere Lösung als andere Alternativen. Der Umgang mit bestimmten Stoffen oder die im Handschuhkasten angewandten Verfahren können jedoch ein ganz bestimmtes Schutzgas erforderlich machen und auch die für Spurenverunreinigungen zulässigen Werte bestimmen. Die Sauerstoff- und Feuchtigkeitskonzentration in einem Handschuhkasten mit Schutzgasatmosphäre sollte unter 2% O₂ gehalten werden.

Wenn als Atmosphäre des Handschuhkastens ein Schutzgas gewählt wird, kann das aus dem Primärcontainment austretende Tritium zurückgewonnen werden, ohne daß es zuerst in das toxischere Tritiumoxid umgewandelt werden muß. Das geschieht mit Hilfe geeigneter Getter auf verschiedenste Arten. Das Tritium wird im Getter durch Adsorption oder chemische Bindung zurückgehalten und kann entweder zurückgewonnen, gespeichert oder entsorgt werden.

Für Handschuhkastenatmosphären wird gegenüber dem Druck der Raumatmosphäre entweder leichter Unterdruck oder leichter Überdruck eingestellt. Die Entscheidung darüber wird häufig durch die Reinigungsanlage für die Handschuhkastenatmosphäre bestimmt. Unterdruck wird üblicherweise aufrechterhalten, wenn das Gas ein einziges Mal durch den Handschuhkasten geleitet wird, und zwar entweder in eine Belüftungsanlage oder in eine Reinigungsanlage. Überdruck kann erforderlich sein, um die Menge der in den Handschuhkasten eintretenden Luft in solchen Fällen gering zu halten, in denen die Sauerstoff- und Feuchtigkeitskonzentration auf wenige ppm (parts per million, millionstel Anteil) eingestellt werden muß.

Die Geräte in den Handschuhkästen müssen eventuell aus dem Handschuhkasten heraus- und wieder hineinbewegt werden. Um eine Freisetzung von Tritium in die Raumluft zu verhindern, sollte dafür eine Schleuse benutzt werden, die evakuiert und anschließend wieder mit Gas gefüllt werden kann und die Einrichtungen zur Überwachung der Tritiumkontamination besitzt.

Wenn Tritiumleitungen zwischen Handschuhkästen verlegt werden müssen, sollten sie von einer konzentrisch zur Tritiumleitung angebrachten Hülle als Sekundärcontainment umgeben sein. Diese Hülle muß gasdicht sein und sollte mit dem Medium des Handschuhkastens gefüllt werden.

- Instrumentierung von Handschuhkastenanlagen

Die Zusammensetzung der Handschuhkastenatmosphäre wird normalerweise zumindest für Tritium durch Instrumente on-line überwacht. Außer der Feuchtigkeitskonzentration wird bei Schutzgasatmosphäre zusätzlich die Konzentration von Sauerstoff gemessen. Ein weiteres notwendiges Gerät ist ein Druckdifferenzüberwachungssystem, das den Aufbau eines unnormalen Drucks im Handschuhkasten, der den Handschuhkasten zerstören könnte, verhindert. Außerdem wird eine Temperaturüberwachung eingebaut, um Einbauten und Handschuhkastenausrüstung zu schützen.

3.2.3 Reinigung der Atmosphäre

Falls Tritium in die Handschuhkastenatmosphäre freigesetzt wird, sind Einrichtungen zur Rückgewinnung dieses Tritiums und zur Reinigung der Handschuhkastenatmosphäre empfehlenswert. Das geschieht gewöhnlich entweder in einer zentralen Anlage, die eine Reihe von Handschuhkästen versorgt, oder in einer Reinigungsanlage speziell für jeden einzelnen Handschuhkasten. In einer zentralen Anlage wird der Gasstrom durch einen einzelnen Handschuhkasten so geregelt, daß die Tritiumkonzentration auf einem zulässigen Wert bleibt. In einer Anlage, die jeweils einen einzelnen Handschuhkasten versorgt, wird das Gas normalerweise mit konstanter Geschwindigkeit umgewälzt. Das am häufigsten benutzte Verfahren ist die Oxidation von tritiertem Wasserstoff zu Wasser mit anschließender Adsorption auf Molekularsieb oder Zeolithbett. In einer Anlage mit Schutzgasatmosphäre muß dem Katalysator für die Oxidation entweder Sauerstoff zugesetzt werden, oder man muß ein sauerstoffhaltiges Material einsetzen, beispielsweise Kupferoxid. Wenn es wichtig ist, die Sauerstoffkonzentration zu

kontrollieren, ist darauf zu achten, daß kein überschüssiger Sauerstoff durch die Reinigungsanlage hindurchläuft und in den Handschuhkasten zurückkehrt.

Reinigungsanlagen auf der Basis metallischer und organischer Getter können ebenfalls benutzt werden. Metallische Getter sind nur einsetzbar mit Schutzgasen, wogegen die organischen Getter sowohl in Luft als auch in Schutzgasatmosphäre Verwendung finden können.

Die Kinetik der Tritiumabsorption durch Getter bei niedriger Konzentration (weniger als 50 kBq/cm³) ist jedoch nicht ausreichend, um eine wirkungsvolle Abscheidung zu erzielen. Um die Abscheidung von Tritium effektiv zu gestalten, muß die Atmosphäre mit Wasserstoff versetzt werden, damit das Tritium mitgeführt und isotopisch gespült werden kann. Reinigungsanlagen für die Handschuhkastenatmosphäre auf der Basis von Metallgettern sind im Handel erhältlich.

Unterschiedliche Betriebsarten für Detritiierungsanlagen werden mit zufriedenstellendem Erfolg eingesetzt. Eine davon ist die diskontinuierliche Behandlung der statischen Handschuhkastenatmosphäre immer dann, wenn bestimmte Kontaminationswerte erreicht sind, mit nachfolgender Freisetzung oder Rückführung des behandelten Gasvolumens. Eine andere Betriebsweise besteht in der kontinuierlichen Behandlung mit Rückführung des Gases in den Handschuhkasten. Die Anzahl der pro Stunde zurückgeführten Gasmengen ändert sich über einen weiten Bereich (2 bis 20). Ein Nachteil von Mehrfachanordnungen von Handschuhkästen, die an eine Zentralanlage angeschlossen sind, besteht darin, daß eine versehentliche Freisetzung in einem Handschuhkasten zur Kontamination anderer, ursprünglich von dem Zwischenfall nicht betroffener Handschuhkästen führen kann.

Die Detritiierungsgeschwindigkeit nimmt mit der Umlaufgeschwindigkeit des Spülgases zu; das gleiche gilt für die Investitions- und Betriebskosten. Hohe Umlaufkapazitäten gestatten aber einen größeren Schutz vor hohen Tritiumkonzentrationen in den Handschuhkästen und damit einen höheren Schutz des Betriebspersonals.

3.2.4 Tritiumüberwachungsbereiche (vgl. Kap. 7)

Laut Strahlenschutzverordnung müssen alle Bereiche, in denen mit radioaktiven Stoffen umgegangen wird,

- gekennzeichnet sein,

- überwacht werden,
- an Zu- und Ausgängen kontrolliert werden.

Die Überwachung dieser Bereiche geschieht normalerweise mit Apparaturen, die α -, β - und γ -Strahlung messen. An den Gebäudeausgängen sind Hand- und Fußmonitore angebracht.

Tritium ist ein sehr schwacher β -Strahler. Aus diesen Gründen werden die folgenden Maßnahmen und Einrichtungen in Tritiumüberwachungsbereichen verwendet (als Tritiumüberwachungsbereiche werden normalerweise die Gebäude bezeichnet, in denen die Handschuhkästen stehen):

- Überwachung der Gebäudeatmosphäre auf Tritium mit Hilfe von Ionisationskammern und mit Sammlern, die zwischen HT und HTO differenzieren,
- Überwachung der Oberflächen auf Tritiumkontamination mit Hilfe von Wischtests,
- Überwachung der Fortluft auf Tritium und HTO mit Hilfe von Proportionalzählern, Ionisationskammern und Sammlern.

Die im Tritiumüberwachungsbereich arbeitenden Personen werden mit Hilfe von Ausscheidungsanalysen (Urinproben) auf eventuelle Tritiuminkorporation hin überwacht.

3.3 Lagerung

Abgesehen von einer kurzzeitigen Speicherung des Tritiums, die in Gaszyldern geschehen kann, wird Tritium in der Regel an Metall gebunden (Metall-Tritid) gelagert.

Diese auch aus der konventionellen Wasserstofftechnologie bekannte Lagerart beruht auf der Eigenschaft verschiedener Metalle bzw. Metallegierungen, bei niedriger Temperatur (Raumtemperatur) Wasserstoff als Metallhydrid chemisch zu binden und bei hoher Temperatur (mehrere 100 °C) den Wasserstoff durch Zerfall dieser Verbindung wieder freizugeben.

Um einen hohen Ausnutzungsgrad für diese Reaktion zu erreichen (Minimieren der erforderlichen Metallmenge), wird das Metall dem Wasserstoff zumeist in pulverisierter Form, also mit großer Reaktionsoberfläche angeboten.

Das z. Zt. weltweit am häufigsten für die Lagerung von Tritium verwendete Metall ist abgereichertes Uran. Dies hat auch für die Anwendung im Brennstoffkreis-

lauf eines Fusionsreaktors günstige Eigenschaften, nämlich geringen Wasserstoffpartialdruck im Lagerzustand bei Raumtemperatur und demgegenüber einen solchen von ca. 1 bar bei Temperaturen von ca. 450 °C. Der Nachteil des abgereicherten Urans ist die Entflammbarkeit bei störfallbedingtem Lufteinbruch und die noch vorhandene Restradioaktivität.

Zur Zeit wird an mehreren Stellen nach alternativen Speichermetallen für Wasserstoff und somit auch für Tritium gesucht, welche die Nachteile des Urans nicht haben (Tabelle 3-1).

Getter	Hydrid	$(P_{H2})_{eg}$ bei 25 °C (Pa)	Desorp. temp. ^a (°C)	Max. rev. Kapazität ^b (%)	Lagerkapazität ^c	
					(1/kg)	(1/dm ³)
ZrCo	ZrCoH ₃	4x10 ⁻³	340	ca. 100	247,5	1574
ZrNi	ZrNiH	1x10 ⁻⁴	610	sehr niedrig	82,6	
	ZrNiH ₃	3x10 ⁻¹	265	67	247,9	1574
U	UH ₃	< 10 ⁻³	430	ca. 100	156,1	1691
Y	YH ₂	sehr niedrig	> 1250	sehr niedrig	278,7	
	YH ₃	sehr niedrig	405	33	418,0	
LaNi ₃ Mn ₂	LaNi ₃ Mn ₂ H _{4,7}	4	270	ca. 100	137,0	
U ₂ Zr	U ₂ ZrH _{1,7}	sehr niedrig	> 800	sehr niedrig	37,1	
	U ₂ ZrH _{7,7}	2x10 ⁻⁴	450	78	168,1	
UZr _{2,3}	UZr _{2,3} H ₄	sehr niedrig	> 800	sehr niedrig	110,6	
	UZr _{2,3} H ₇	5x10 ⁻⁵	455	43	193,6	
U ₂ Ti	U ₂ TiH _{2,4}	3x10 ⁻⁹	675	sehr niedrig	56,7	
	U ₂ TiH _{7,6}	5x10 ⁻⁴	460	68	179,7	

Tab. 3-1: Auswahl an Gettermaterialien für die Speicherung von Tritium [3-2]

a Desorptionstemperatur für $P_{eg} = 1$ bar

b Maximal erreichbare reversible Kapazität in einem geschlossenen System, wenn T_{max} für die Desorption 500 °C ist

c Liter H₂ bei 25 °C und 1 bar pro kg Getter oder pro dm³ Hydrid

Das pulverisierte Lagermetall befindet sich in einem Behälter aus Edelstahl. Die eingefüllte Metallmenge kann in mehrere Kammern aufgeteilt sein, um das Zusammenklumpen (Sintern) beim Aufheizen zu vermindern. Dieser Behälter ist mit einer Heizung versehen. Er befindet sich in der Regel in einem Außenbehälter aus Edelstahl (Abb. 3-1). Der Zwischenraum zwischen beiden Behältern ist zur Wärmeisolierung evakuiert. Der kalte Außenbehälter hält so auch das durch die erwärmte Wand des Innenbehälters permeierende Tritium zurück. Üblicherweise wird ein solcher Lagerbehälter nur mit einem Bruchteil seiner Beladekapazität mit Tritium beaufschlagt (z. B. 40 % oder 60 %), um die Aufnahmezeiten zu begrenzen.

Die Beladekapazität beträgt 0,038 g T₂ pro g U (140 ml oder 367 Ci T₂).

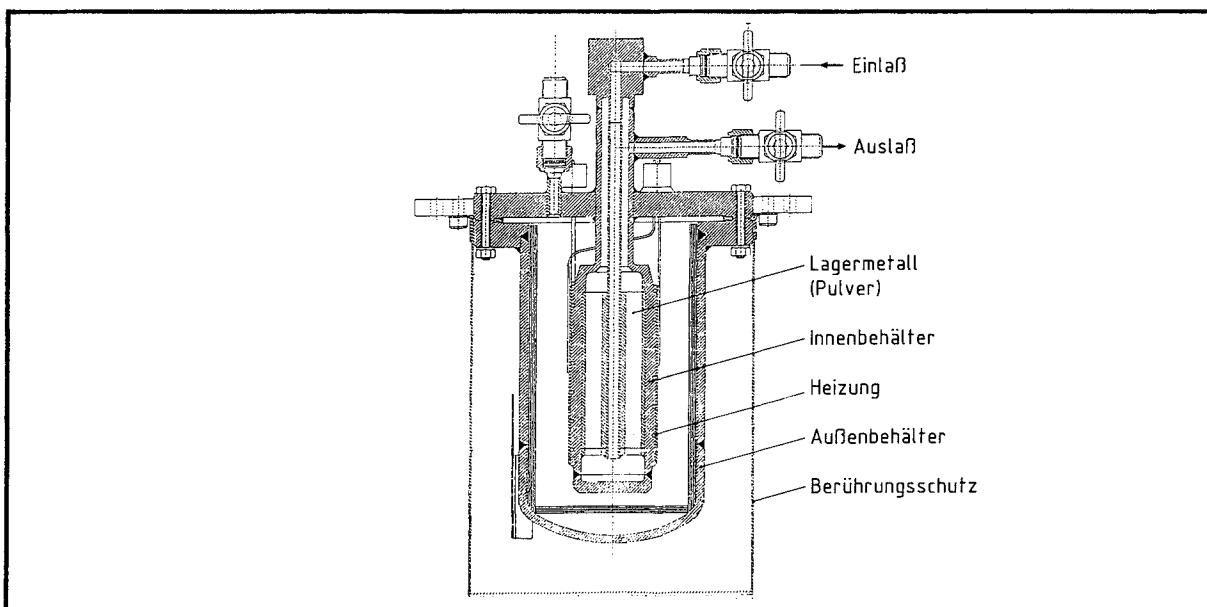


Abb. 3-1: Tritiumlagerbehälter des Tritiumlabors Karlsruhe (TLK)

Ein Tritiumlager besteht im allgemeinen aus mehreren solcher Lagerbehälter, auf die einzeln zugegriffen werden kann (Abb. 3-2). Heute sind durchströmbarer Lagerbehälter üblich, die beim Be- und Entladevorgang mit Helium als Trägergas für das Tritium durchströmt werden können.

Zur Wartung eines Tritiumlagers gehört, daß in bestimmten Zeitabständen das Zerfallshelium entfernt wird. Dies geschieht, indem der betreffende Lagerbehälter aufgeheizt wird, um Tritium und Zerfallshelium auszutreiben. Ein Heliumträgergasstrom fördert dieses ausgetriebene Gas auf einen leeren, kalten Lagerbe-

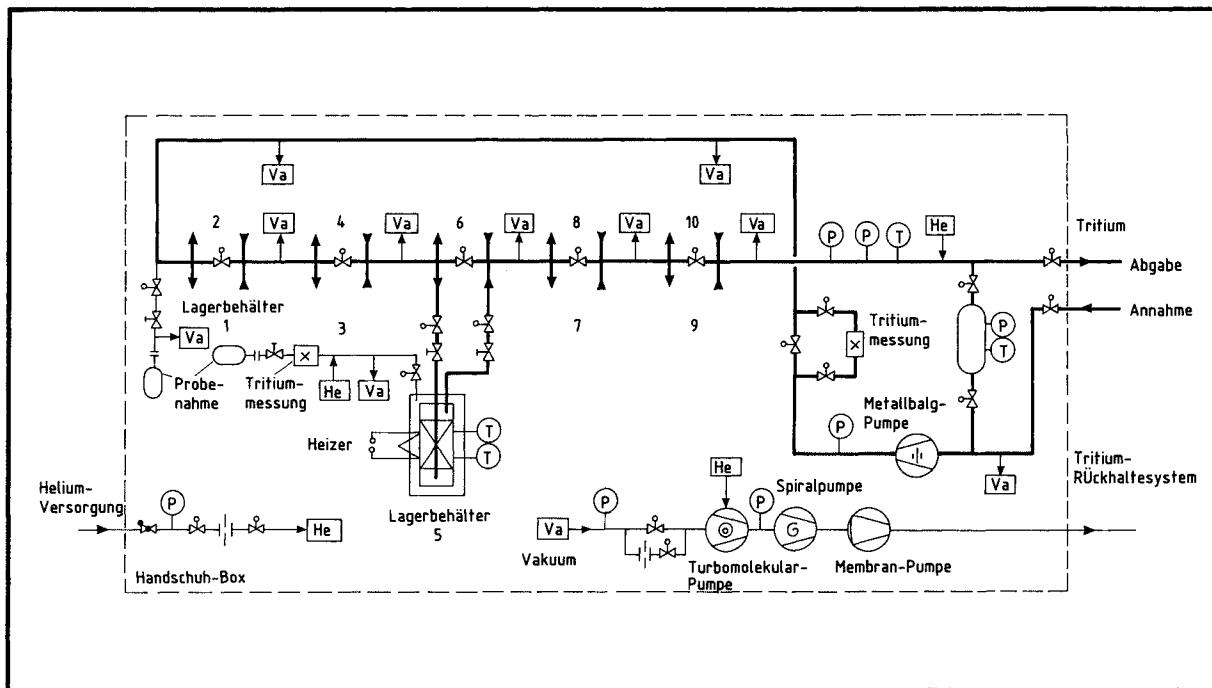


Abb. 3-2: Fließschema eines Tritiumlagers (TLK)

hälter, wo das Tritium wieder gebunden wird. Das inaktive Zerfallshelium verbleibt im Trägergasstrom und wird mit diesem abgegeben.

3.4 Transfer

Soll Tritium innerhalb eines Primärsystems umgewälzt oder von einem Primärsystem zum anderen transferiert werden, so geschieht dies am besten bei Unterdruck (z. B. 900 mbar). Dadurch wird ein Druckgefälle von der 2. Hülle zum tritiumführenden System hin aufrechterhalten. Diese Bedingung wird am sichersten durch das "Holprinzip" eingehalten, d. h. das empfangende System saugt das Tritium an.

Beim Transfer kann sowohl das reine Tritium, ein Wasserstoffisotopengemisch oder auch das Tritium in Helium als Trägergas gefördert werden.

Zwei Förderprinzipien sind üblich:

3.4.1 Ansaugen durch Gettern

Die schon unter 3.3 beschriebene Aufnahmefähigkeit bestimmter Metalle für Wasserstoff bewirkt ein Ansaugen dieses Gases. Somit sind Getterapparate

gleichzeitig Pumpen (Getterpumpen). Sie können den Wasserstoff (Tritium) theoretisch bis zum Wasserstoffpartialdruck über dem Gettermetall abpumpen. Praktisch rechnet man mit einer Druckabsenkung bis zu 10^{-2} mbar; bei verzweigten Systemen oder größeren Volumina werden 0,1 - 1 mbar angegeben. In diesem Fall ist eine anschließende Zugabe von Trägergas erforderlich, um den Wasserstoff den Getterapparaten durch Umpumpen zuzuführen.

3.4.2 Pumpen

Das empfangende System saugt mit einer Pumpe oder einer Pumpenkombination das Gas aus dem abgebenden System an und fördert es in einen Annahmespeicher. Dieser Speicher kann ein Behälter oder ein Getterapparat sein. Wird das Tritium in einem Trägergasstrom gefördert, so ist in jedem Fall eine Pumpe einzusetzen, da das Trägergas vom Gettermetall nicht angesaugt wird.

Die Förderpumpen für Tritium sind ganzmetallisch und öl- und fettfrei. Die meistverwendeten Pumpen sind:

Metallbalgpumpen (Abb. 3-3)

Ein Metallbalg ist zwischen einer festen Platte und einem Kolben eingeschweißt und wird durch die Kolbenbewegung gestreckt und gepreßt (Ziehharmonika). Dadurch saugt dieser bewegte Balg Gas an und verdichtet es. Ventilzungen öffnen und schließen abwechselnd den Ein- und Auslaß des Verdichtungsraumes.

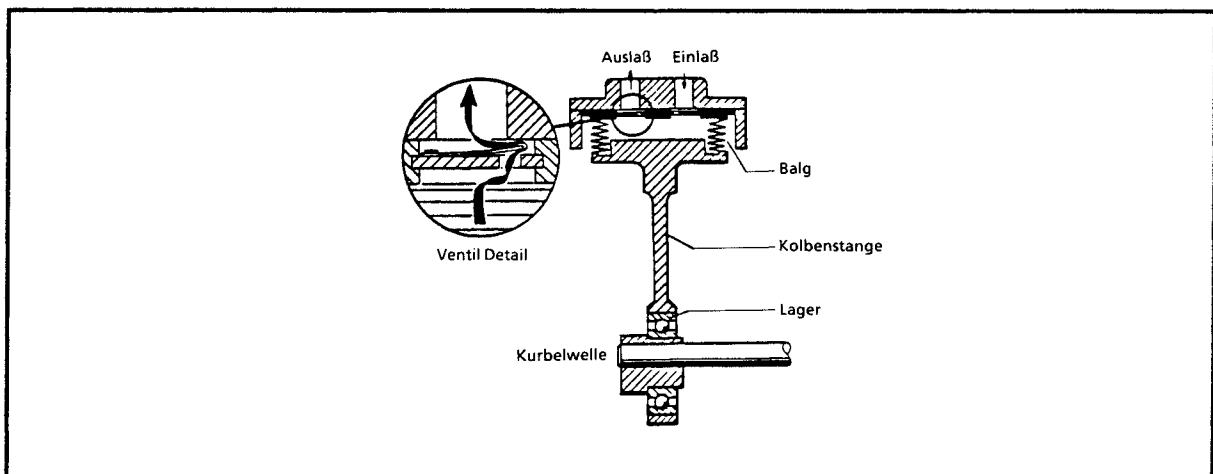


Abb. 3-3: Metallbalgpumpe

Diese Pumpe arbeitet im Druckbereich von ca. 10 mbar bis ca. 2000 mbar. Sie ist also als Einzelförderpumpe einsetzbar.

Membranpumpen

Pumpen mit Metallmembranen kommen ebenfalls zum Einsatz. Ihr Druckbereich ist mit dem der Metallbalgpumpe vergleichbar (10 mbar bis einige bar). Der mit diesem Pumpentyp erreichbare höhere Enddruck wird aber nur in Ausnahmefällen zu experimentellen Zwecken in Tritiumanlagen eingesetzt.

Spiralpumpen (Abb. 3-4)

In einer feststehenden Spiralfuge läuft eine eingepaßte Spirale mit einer aus kri-sender und hin und her gehender Komponente zusammengesetzten Bewegung. Dadurch wird ein angesaugtes Gasvolumen weitergefördert und verdichtet (ähnlich einem Drehkolbenmotor/Wankelmotor).

Diese Pumpe arbeitet im Druckbereich von ca. 10^{-3} mbar bis 100 mbar. Sie ist in Kombination mit einer Vorpumpe (Metallbalg- oder Membranpumpe) zur Evakuierung oder alleine zur Umwälzung einsetzbar.

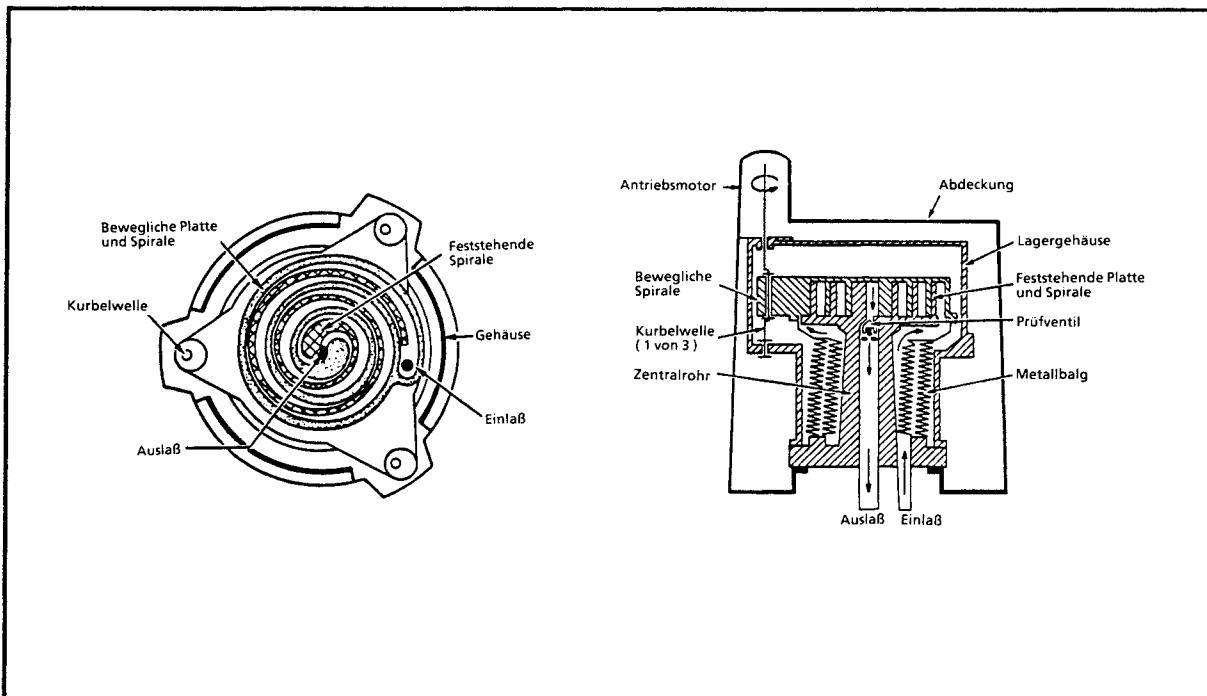


Abb. 3-4: Spiralpumpe

Vakuumpumpstand

In tritiumführenden Anlagen ist es häufig erforderlich, das gesamte System oder Teile davon zu evakuieren.

Die hierfür eingesetzten Vakuumpumpstände sollen ölfrei oder nur fett- bzw. mit Öldocht geschmiert sein, um die Kontaminierung von Öl mit Tritium so gering wie möglich zu halten.

Entsprechende Pumpstände lassen sich aus den o. g. Pumpentypen als Vorpumpen mit einer Turbomolekularpumpe kombinieren. Geeignet sind magnetgelagerte Turbomolekularpumpen oder solche mit Öldocht- oder Fettschmierung.

3.5 Reinigung

Die Reinigung eines tritiumhaltigen Isotopengemisches ist neben der Speicherung und der Wasserstoffisotopentrennung ein wesentlicher Bestandteil des Brennstoffkreislaufs von künftigen Fusionsreaktoren (vgl. Kap. 2.3.4).

Zu entfernen sind O₂, N₂, CO, CO₂, CQ₄, NQ₃ und Q₂O (Q = H, D, T); Helium als Fusionsprodukt oder Trägergas wird vor oder nach diesen Reinigungsschritten abgetrennt.

Das Reinigungsverfahren muß die Reinheitsforderung von wenigen ppm Restverunreinigung im Wasserstoffisotopengemisch erfüllen.

Die wichtigsten Verfahren sind:

3.5.1 Adsorption der Verunreinigungen und katalytische Oxidation (Abb. 3-5).

Aus dem zu reinigenden Wasserstoffstrom wird Sauerstoff an einem Katalysator zu Wasser umgesetzt; danach werden alle Verunreinigungen an einem Molekularsieb zurückgehalten, welches auf Flüssigstickstoff-Temperatur (77 K) gekühlt ist. Um auch das in den so abgefangenen Verbindungen enthaltene Tritium zu gewinnen, werden die Molekularsiebe regeneriert, die Wasserstoff enthaltenden Verunreinigungen katalytisch zu Wasser oxidiert und dieses ausgefroren. Der tritiumfreie Rest wird abgegeben. Das gewonnene tritierte Wasser wird an heißem Metall (Sauerstoffgetter) oder in einem Elektrolyseur gespalten. Die Wasserstoffisotope werden zusammen mit dem am Molekularsieb gereinigten Hauptstrom der Isotopentrennung zugeführt [3-3].

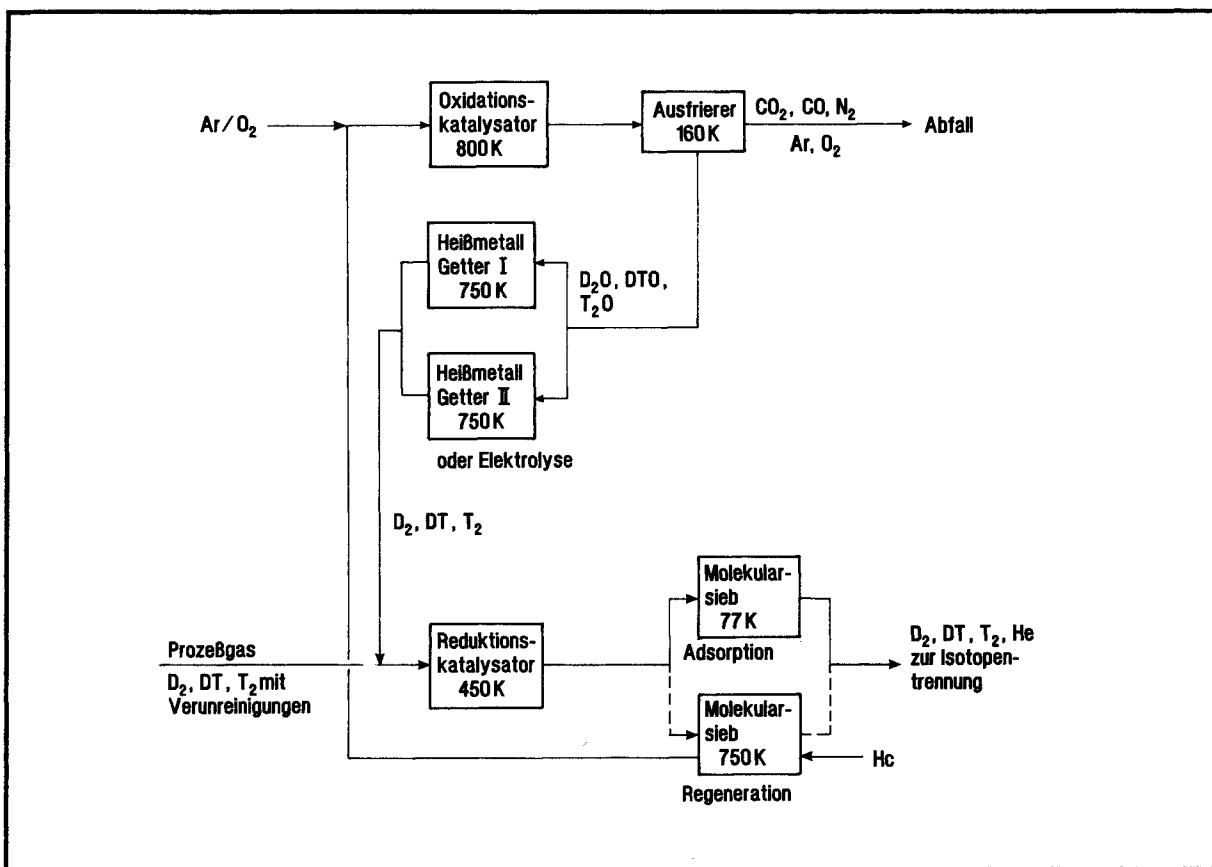


Abb. 3-5: Blockschaltbild der Tritiumreinigung durch Adsorption und katalytische Oxidation.

3.5.2 Gettern der Verunreinigungen an heißem Metall (Abb. 3-6)

Heiße Metalle (vorzugsweise Uran, aber auch andere Metalllegierungen), pulverisiert, um große reagierende Oberflächen zu erreichen, spalten die o. g. Verbindungen der Verunreinigungen auf und binden O₂, N₂ und C als Oxide, Nitride und Carbide. Diese Tatsache wird in einem Reinigungsverfahren genutzt, in dem drei Getterstufen hintereinander geschaltet werden:

1. Stufe: Uranpulver bei 500 °C bindet Sauerstoff.
2. Stufe: Uranpulver bei 700 °C bindet Stickstoff.
3. Stufe: Uranpulver bei 900 °C bindet Kohlenstoff.

In dem Getterapparat der 1. Stufe kann das Pulver in einem Metallbehälter eingeschlossen sein, für die 2. und 3. Stufe werden Behälter aus keramischem Material verwendet. Aluminiumoxidkeramik ist bei den hohen Temperaturen beständig,

bildet mit Uran kein Eutektikum und weist um Größenordnungen geringere Tritiumpermeation auf (s. Kap. 1.5) [3-4].

Dieses Verfahren könnte ergänzt werden durch eine Feinreinigung mit flüssig-stickstoffgekühltem Molekularsieb [3-3]. Dies erscheint aber z. Zt. nicht erforderlich [3-4].

Reinigungsverfahren mit Gettermetallen haben jedoch den Nachteil, daß das Gettermetall sich erschöpft und als Abfall zu entsorgen ist. Dies wären für einen Fusionsreaktor große Mengen. Deshalb sind diese Verfahren vorzugsweise für Tritiumlabors geeignet.

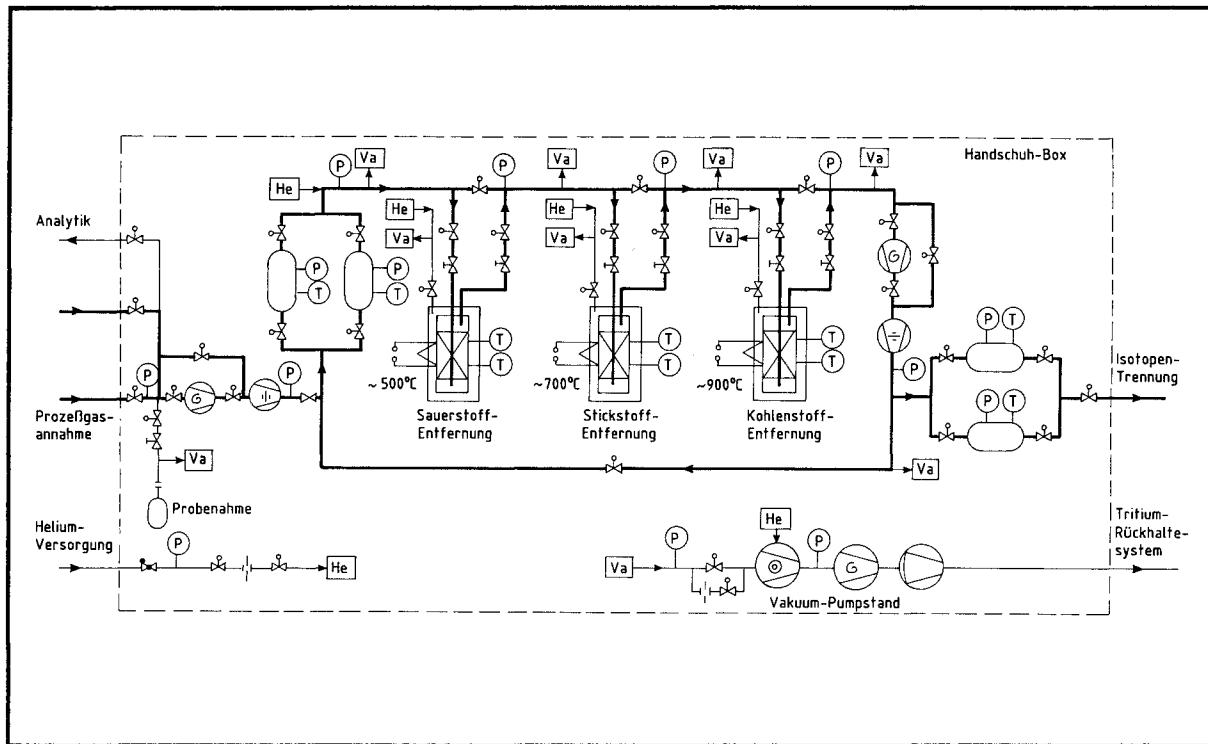


Abb. 3-6: Blockschaltbild der Tritiumreinigung mit Heißmetallgettern

3.5.3 Permeationsfilter und katalytische Umsetzung (Abb. 3-7)

In einem ersten Schritt werden bei diesem Verfahren alle molekularen Wasserstoffisotope des zu reinigenden Gasstroms in hochreiner Form gewonnen, indem sie durch einen Palladium-Silber-Permeator im Hauptstrom permeieren (Permeator I). Das Rückstandsgas mit den tritierten und nicht tritierten Verunreinigungen wird in zwei hintereinandergeschalteten katalytischen Reaktionsschritten prozessiert:

- ein Nickelkatalysator (I) spaltet Kohlenwasserstoffe und Ammoniak,
- ein zinkstabilisierter Kupferchromit-Katalysator (II) konvertiert Wasser in Wasserstoff über die sogenannte Wassergas-Shiftreaktion, eine Umsetzung mit Hilfe von Kohlenmonoxid.

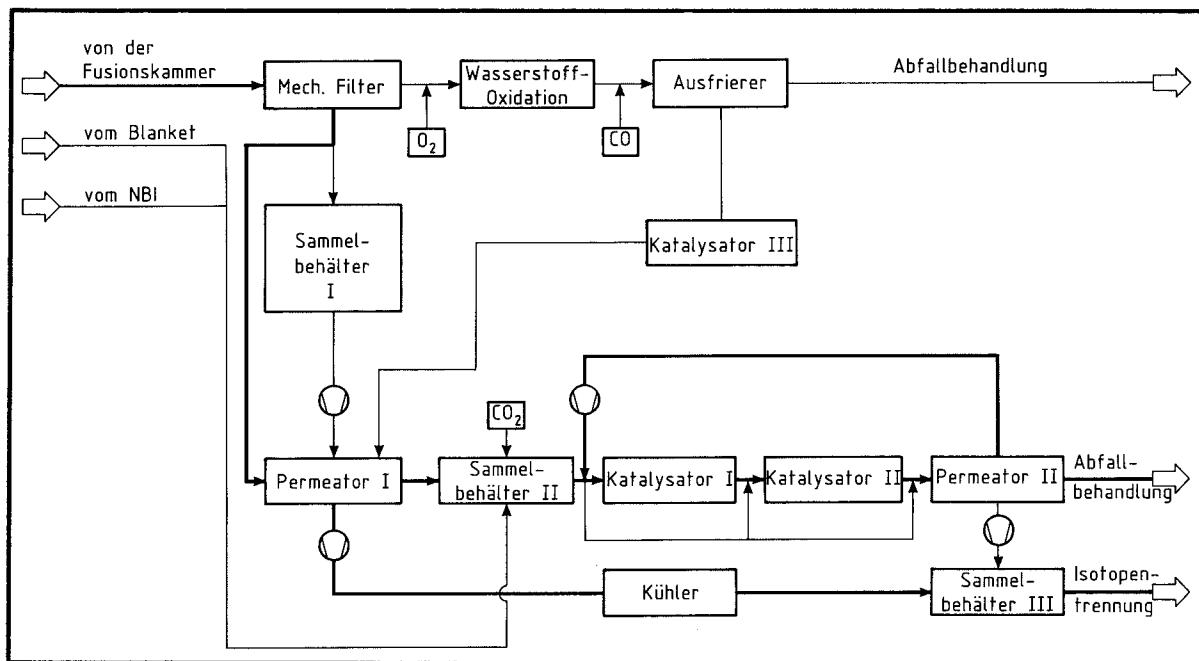


Abb. 3-7: Blockschaltbild der Tritiumreinigung mit Permeationsfiltern und katalytischer Umsetzung

Wasserstoffisotope, die bei diesen Reaktionen freigesetzt werden, werden mit Hilfe eines zweiten Palladium-Silber-Permeators abgetrennt (Permeator II). Das verbleibende, von Tritium befreite Gas geht zum Abfall.

Bei großen Gasströmen, wie sie beim Auspumpen der Fusionskammer eines Fusionsreaktors entstehen, ist ein zusätzlicher katalytischer Oxidationsschritt (Katalysator III) zu dem oben beschriebenen Reinigungsprozeß erforderlich [3-5].

Häufig ist Helium Bestandteil eines zu reinigenden Wasserstoffisotopengemisches. Bei den Permeationsverfahren wird das Helium automatisch mit den Verunreinigungen abgetrennt; bei den anderen Verfahren ist das Helium entweder mit in die Isotopentrennung zu geben oder in einem weiteren Schritt abzutrennen, in dem der Wasserstoff, wie bei der Lagerung beschrieben, gebunden und das Helium abgegeben wird.

3.6 Isotopentrennung

In der Regel liegt in Fusionsreaktoren, aber auch bei der Verwendung von Tritium im Versuchsbetrieb, nach dem Reinigungsprozeß ein Gemisch von Wasserstoffisotopen (Protium, Deuterium, Tritium) im Gleichgewicht der molekularen Spezies, also H_2 , HD, HT, D_2 , DT und T_2 , vor. Diese sollen möglichst in die reinen Isotope getrennt werden, um D_2 und T_2 als Brennstoff bzw. T_2 als Versuchsgas wiederzugewinnen und neu mischen zu können. Zur Wasserstoffisotopentrennung in der Fusionstechnologie haben sich im wesentlichen drei Verfahren etabliert:

- die kryogene Isotopentrennung,
- die gaschromatographische Isotopentrennung,
- die Isotopentrennung durch Thermodiffusion.

3.6.1 Kryogene Isotopentrennung

Dieses Prinzip wird bereits in der Kernspaltungstechnik zum Entzug von Tritium aus mit Schwerwasser moderierten Reaktoren angewendet [3-6, 3-7] (vgl. Kap. 2.2.2).

Das Verfahren nutzt den Unterschied der Siedepunkte der einzelnen Wasserstoffspezies zur Trennung in eine Dampf- und eine Flüssigphase in Rektifizierkolonnen. Diese Trennapparate sind an ihrem oberen Ende mit einem Wärmetauscher ausgestattet, in dem der aufsteigende Wasserstoff mit flüssigem Helium (Siedetemperatur 4,2 K) gekühlt und teilweise kondensiert wird. Diese kondensierte Flüssigkeit fließt zur Verbesserung des Stoff- und Wärmeaustausches über Füllkörper nach unten einem Wasserstoffgasstrom entgegen, der durch eine Heizung im Boden der Kolonne erzeugt wird. Auf diese Weise trennen sich zwei Fraktionen je Kolonne nach ihren Siedetemperaturen (Tab. 3-2).

Das Beispiel einer ausgeführten Anlage [3-8] zeigt die Trennung in die Produkte T_2 , DT, D_2 und Abfallprodukt mit einem System von vier Rektifizierkolonnen (Abb. 3-8). Andere Anordnungen sind möglich.

Das kryogene Verfahren zur Wasserstoffisotopentrennung ist besonders für die Behandlung großer Gasströme geeignet, wie sie z. B. in künftigen Fusionsreaktoren anfallen werden (vgl. Kap. 3.10).

Spezies	Temperatur [K]
H ₂	20,4
HD	22,1
HT	22,9
D ₂	23,6
DT	24,4
T ₂	25,1

Tab. 3-2: Siedetemperaturen von isotopen Wasserstoffen bei $p = 10^5$ Pa.

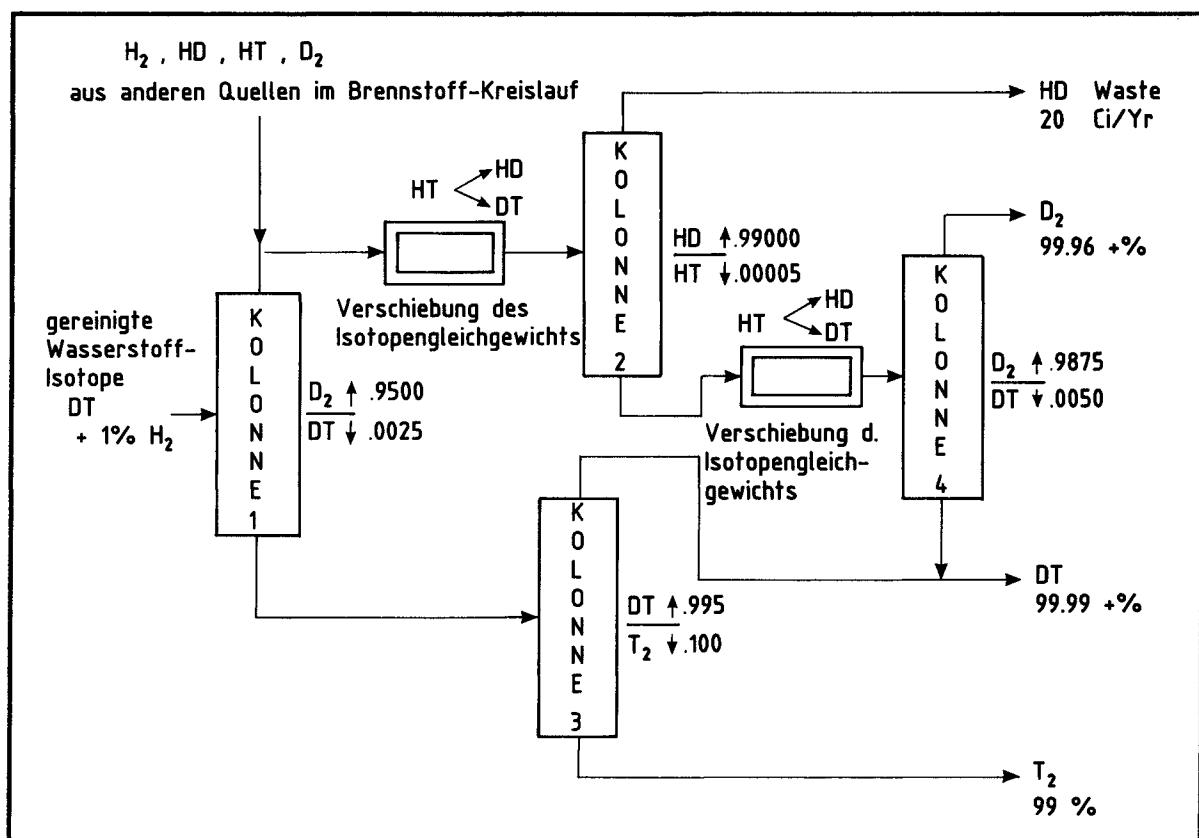


Abb. 3-8: Blockschematic diagram of a cryogenic hydrogen isotope separation system (TSTA)

3.6.2 Gaschromatographische Isotopentrennung

Hierbei werden die unterschiedlichen Retentionsszeiten der Wasserstoffspezies beim Durchgang durch eine mit Adsorbermaterial gefüllte gaschromatographische Trennkolonne ausgenutzt. Zur Verstärkung des Effekts wird diese Kolonne bei Flüssigstickstoff-Temperatur (77 K) betrieben. Helium als Trägergas durchströmt die Kolonne im Kreislauf. In diesen Gasstrom wird das Wasserstoffisotopengemisch mit einem Schub eingespeist und in die Kolonne gespült. Entsprechend ihrer Verweilzeit treten die Bestandteile des Gemisches nacheinander aus der Kolonne aus und können auf verschiedene Metallgetterbetten gegeben werden (Abb. 3-9).

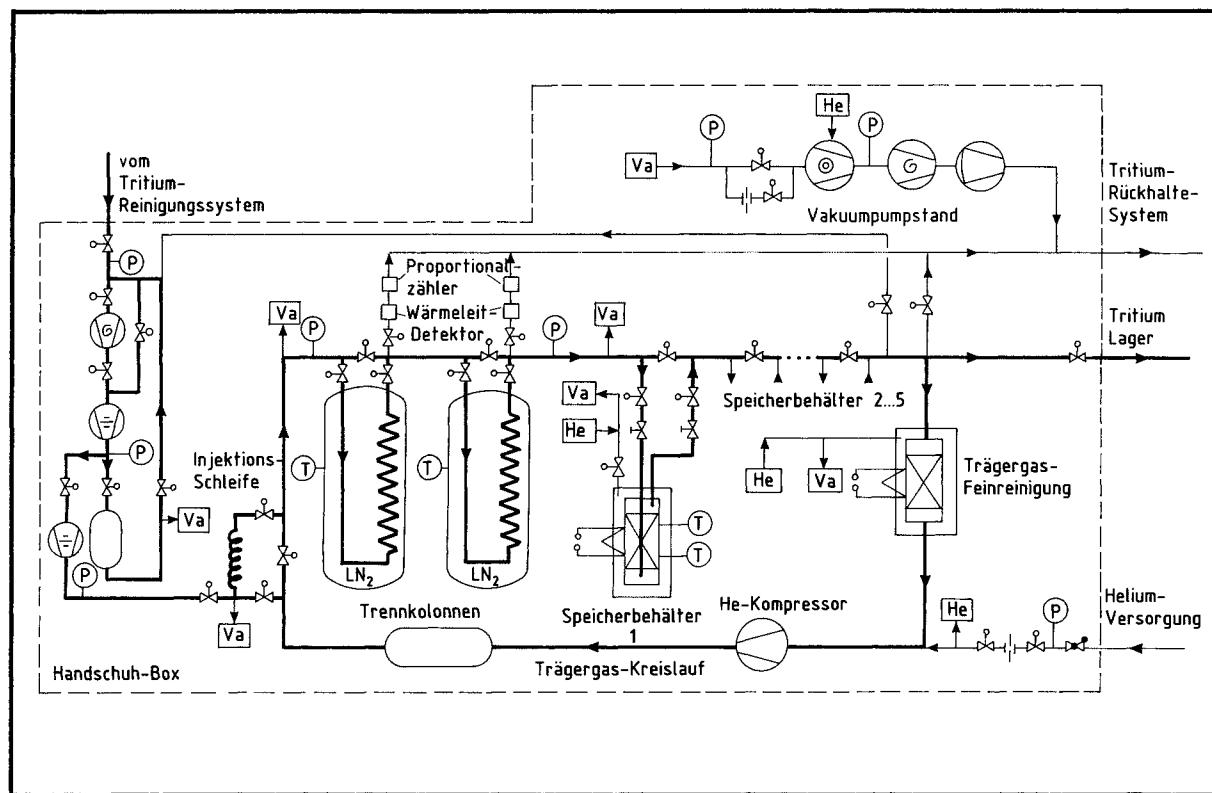


Abb. 3-9: Fließschema einer gaschromatographischen Isotopentrennung (TLK)

Anstieg und Abnahme der einzelnen Spezies können mittels Wärmeleitfähigkeits- oder Aktivitätsmessung (Tritium) verfolgt werden, um rechtzeitig von einem Speicherbett auf das andere zu schalten (Abb. 3-10).

Auch hier werden meist T_2 , DT, und D_2 und HT gesondert aufgefangen, die inaktiven HD und H_2 gehen auf ein gemeinsames Speicherbett. Durch Aufheizen kann die gesammelte Wasserstoffkomponente anschließend ausgetrieben werden.

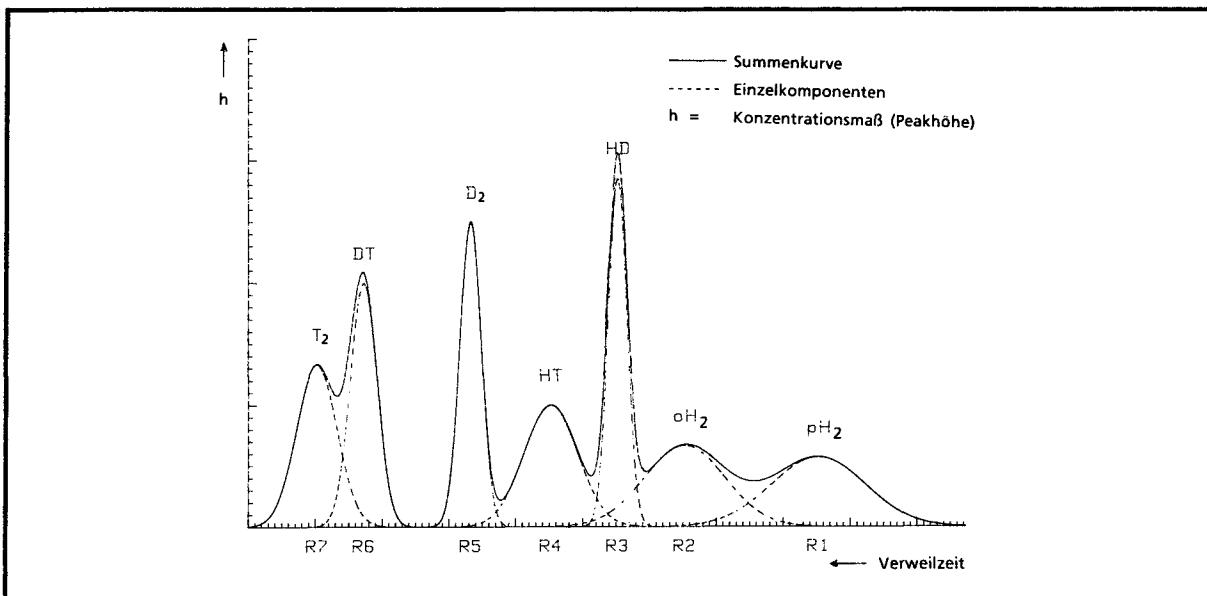


Abb. 3-10: Gaschromatogramm der Wasserstoffisotope (gerechnet)

Dieses Verfahren ist nur im Chargenbetrieb möglich und für die Verarbeitung großer Gasmengen weniger geeignet. Es wird vorzugsweise im Laborbetrieb eingesetzt.

3.6.3 Isotopentrennung durch Thermodiffusion

Dieses ebenfalls physikalische Trennverfahren beruht auf dem Effekt der unterschiedlichen Diffusionsgeschwindigkeit leichter und schwerer Isotope. Eine Trennkolonne ist in ihrem Zentrum axial mit einem beheizten Draht bestückt, die Außenwand der Kolonne ist gekühlt. Die leichteren Isotope bewegen sich zur heißen Oberfläche, an der durch die Wärme auch eine Aufwärtsströmung entsteht. Die schweren Isotope konzentrieren sich an der kalten Oberfläche, wo die Konvektionsströmung nach unten führt. Dadurch entsteht ein Konzentrationsunterschied entlang der Kolonne; die Fraktionen werden oben (leichtere Isotope Protium und Deuterium) und unten (Tritium) abgesaugt (Abb. 3-11). Dieses Verfahren ist nur für Trennaufgaben im kleinen Maßstab (Labor) geeignet.

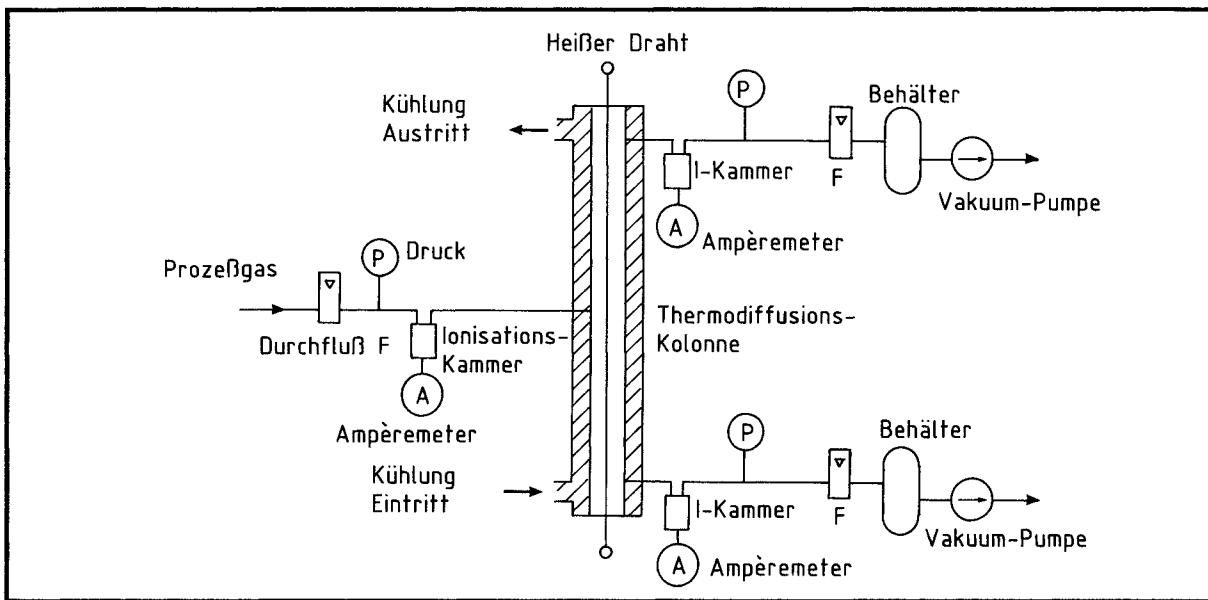


Abb. 3-11: Schema der Isotopentrennung durch Thermodiffusion

3.7 Dekontamination

3.7.1 Ausheizen und Evakuieren

Systeme und Komponenten des Primärsystems werden, je nachdem wie lange sie mit Tritium in Kontakt waren, verschieden stark kontaminiert sein. Die Parameter, die die Höhe der Kontamination bestimmen, sind die Wasserstofflöslichkeit und Diffusionskonstante des Materials, die Temperatur, die Höhe des Tritiumpartialdrucks und die Einwirkzeit. Die Kontamination ist auf und nahe der Oberfläche durch Physisorption und Chemisorption am größten [3-9, 3-10]. Mit zunehmender Wandstärke des Teils nimmt die Kontamination stark ab, da Tritiumatome nur durch Diffusion dorthin gelangen.

Eine physikalische Adsorption (Physisorption) liegt vor, wenn allein zwischenmolekulare Wechselwirkungskräfte wirksam sind. Die Teilchen werden als Moleküle adsorbiert. Es ist eine multimolekulare Bedeckung möglich. Erreicht dagegen die Wechselwirkung Adsorbens-Adsorbat die Größenordnung chemischer Bindungskräfte, spricht man von Chemisorption. Innermolekulare Bindungen werden stark deformiert und teilweise gelöst. Es ist nur eine monomolekulare Bedeckung möglich.

Um die Kontamination bei intakten Komponenten, wie z. B. Rohrleitungen des Primärsystems, zu senken, werden die Rohre nach Evakuierung mit Heizbändern auf eine Temperatur von 150 °C erhitzt. Durch die dadurch erhöhte Diffusion kann ein Teil des Tritiums wieder in das Rohr ausgetrieben werden. Nicht verges-

sen werden darf, daß ein - wenn auch geringer - Teil durch diese Aktion tiefer in das Hüllrohr diffundiert.

Weiterhin wird die Dekontamination an ausgebauten Komponenten vorgenommen, zum Zweck der Verminderung des kontaminierten Abfalls, der Wiederverwendung der Komponente und zur Rückgewinnung gebundenen Tritiums. Der überwiegende Teil des Abfalls besteht aus Edelstahl wie die Anlage selbst. Bei Abfällen aus anderem Material handelt es sich in der Hauptsache um Molekulsiebe, Katalysatoren und Gettermaterialien, auf deren Probleme im nächsten Kapitel eingegangen wird.

Die Dekontamination von Edelstahlkomponenten, die aus den Anlagen ausgebaut werden, wird bei verschiedenen hohen Temperaturen vorgenommen [3-8 bis 3-15]. Dazu können die Komponenten in einem Ofen Temperaturen bis zu 900 °C ausgesetzt werden (Abb. 3-12). Die Menge des freigesetzten Tritiums wird mit ei-

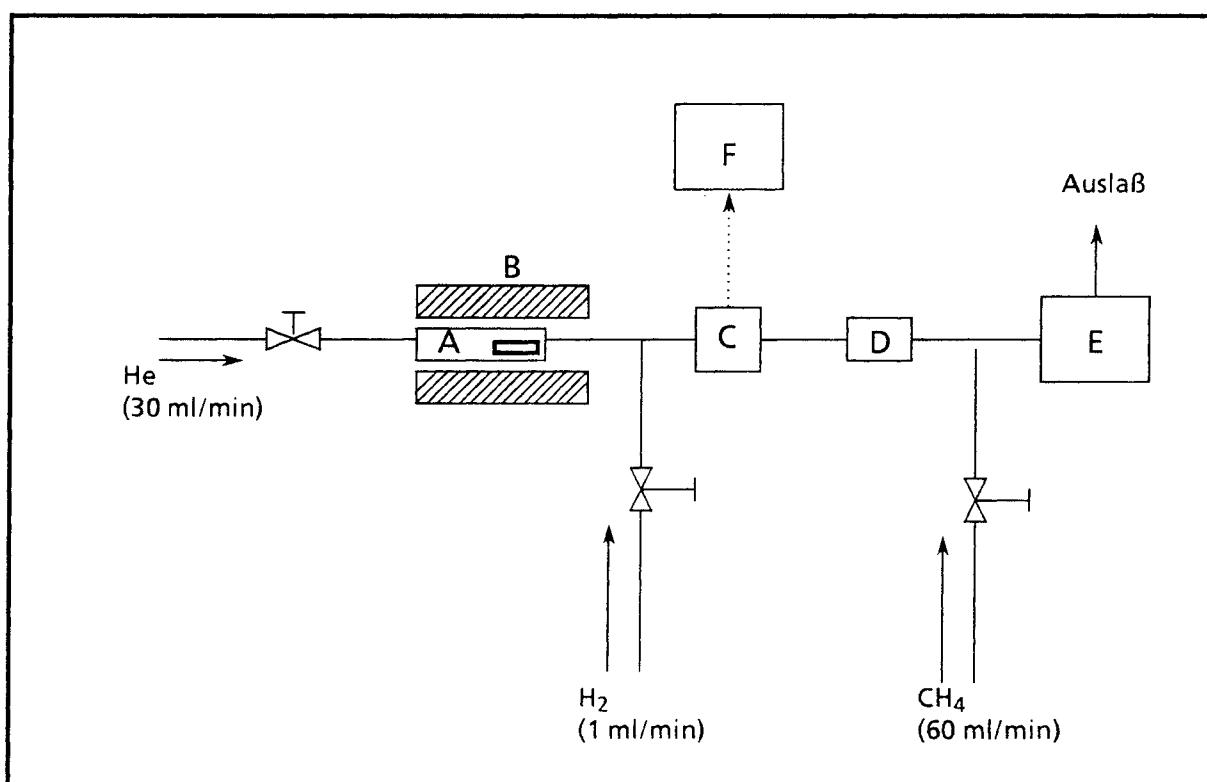


Abb. 3-12 Schema einer Desorptionseinrichtung, entnommen [3-11]

A: Desorptionsbehälter

B: Ofen

E: Gasproportionalzähler

C: H₂O-Bubbler

D: Trocknungskolonne

F: Szintillationszähler

nem Flüssigszintillationsmeßgerät, einer Ionisationskammer oder einem Gasproportionalitätszähler gemessen.

Nicht wieder zu verwendende Edelstahlkomponenten werden zur Verminderung des kontaminierten Abfalls auf hohe Temperaturen aufgeheizt, um das Tritium thermisch zu desorbieren [3-9 bis 3-13]. Dazu wird die Komponente mit einer Heizrate von 5 °C/min von Raumtemperatur auf 900 °C erhitzt und von Helium mit einem Durchfluß von 30 ml/min umspült. Nach 4 bis 5 Stunden ist die Dekontamination beendet. Bei der thermischen Desorption hängt die chemische Form des freigesetzten Tritiums von der Art der Sorption ab. Bei Edelstahl fällt 89 % des freigesetzten Tritiums als HTO an. Das restliche Tritium wird als HT bei unterschiedlichen Temperaturen freigesetzt, da es unterschiedlich stark an den verschiedenen Legierungsbestandteilen des Edelstahls adsorbiert ist. Nach Abschluß der Dekontamination wird die Komponente noch einige Zeit gelagert.

Komponenten aus Edelstahl, die nach der Dekontamination wieder verwendet werden sollen, dürfen keinen so hohen Temperaturen ausgesetzt werden, damit ihre Funktion nicht beeinträchtigt wird [3-14, 3-15]. Die maximal zulässigen Temperaturen müssen jeweils vorher ermittelt werden. Eine vollständige Dekontamination ist bei niedrigen Temperaturen nicht möglich. Je niedriger die erlaubte Temperatur ist, desto länger muß die Komponente dieser Temperatur ausgesetzt werden, um eine Abnahme der Kontamination zu erreichen. Eine Beschleunigung der Dekontamination bei niedrigen Temperaturen ist möglich, wenn man die Komponente nicht im Vakuum ausheizt bzw. statt mit Helium mit feuchter warmer Luft der gleichen Temperatur wie die erhitzte Probe umspült (Tab. 3-3).

Probe	Methode	Temperatur	Zeit	% Dekontamination
Stahl $3,7 \cdot 10^6$ Bq	Vakuum (ca. 10^{-5} bar)	300 °C	100 h 20 h	99,2 96
	feuchte 300 °C warme Luft 1,5 l/min. 65 g H ₂ O/h	300 °C	10h	99,6
	bzw. 0,2 l/min 7,2 g H ₂ O/h	300 °C	10h	99,3

Tabelle 3-3: Dekontaminationsgrad und Zeitspanne bei verschiedenen Dekontaminationsmethoden, entnommen [3-7]

Nach Abschluß der Dekontamination wird die Komponente noch einige Zeit gelagert und auf eventuelle Rekontamination der Oberfläche geprüft. Nach Boutot und Schipfer [3-14] nimmt die Kontamination der Oberfläche im Verlauf mehrerer Wochen wieder zu (Tab. 3-4).

Lagerzeit	Dekontaminationsmethode	
	Luft/Dampf 300 °C	Vakuum 300 °C
0	$0,84 \cdot 10^3$ Bq	$4,37 \cdot 10^3$ Bq
15 Tage	$1,02 \cdot 10^3$ Bq	$5,07 \cdot 10^3$ Bq
28 Tage	$1,07 \cdot 10^3$ Bq	$5,00 \cdot 10^3$ Bq
35 Tage	$1,13 \cdot 10^3$ Bq	$5,03 \cdot 10^3$ Bq

Tabelle 3-4: Rekontamination der Oberfläche, entnommen [3-13]

Die Erhöhung der Kontamination, die sich durch Rückdiffusion von Tritium aus dem Innern der Komponente an die Oberfläche ergibt, hängt ab von der Höhe der ursprünglichen Kontamination, der angewandten Dekontaminationsmethode und Lagerzeit.

Von einer Dekontamination mit Säuren wird Abstand genommen. Bei dieser Methode fallen größere Mengen an kontaminierten Säuren an, die entsorgt werden müssen. Eine Wiederverwendung der dekontaminierten Teile ist nicht möglich, da die Oberfläche durch die Säurebehandlung in Mitleidenschaft gezogen wird.

3.7.2 Isotopenaustausch

Bei den neben Edelstahl zusätzlich als Abfall anfallenden Anlagenteilen handelt es sich um Molekularsiebe, Katalysatoren (Uran, Kupferoxid, Palladium) und Gitter. Diese Teile besitzen, um ihre Funktion erfüllen zu können, sehr große spezifische Oberflächen. Dies bedeutet, daß die Kontamination hohe Werte erreichen kann [3-16 bis 3-18]. In diesem Fall ist eine vollständige Dekontamination nicht möglich.

Bei der thermischen Desorption mit hohen Temperaturen besteht die Gefahr der Versinterung (dies bedeutet eine Beeinträchtigung der weiteren Dekontaminati-

on). Wird bei niedrigeren Temperaturen ausgeheizt, so nimmt die Dekontaminationszeit beträchtlich zu, obwohl sich das Ergebnis verschlechtert.

Um eine zusätzliche Verbesserung der Dekontamination zu erreichen, benutzt man den Effekt des "Isotopic Swamping" [3-19, 3-20]. Die Komponente wird mit einem leichteren Wasserstoffisotop, z. B. Protium, durchspült. Dabei stellt sich ein Gleichgewicht zwischen den verschiedenen Isotopen im Gasraum sowie im Adsorbat ein [3-20]. Tritium, das im Adsorbat in hoher Konzentration und im Gasraum in geringer Konzentration vorhanden ist, wird in den Gasraum freigesetzt und kann mit dem Gasstrom abgeführt werden. Anstelle des Tritiums wird Protium adsorbiert. Die Gesamtmenge an gebundenem Wasserstoff bleibt gleich, aber durch die ständige Neueinstellung des Gleichgewichts zwischen Tritium und Protium im Adsorbat und in der Gasphase durch Isotopenaustausch wird die Kontamination durch Freisetzung von Tritium verringert.

Ein entsprechender Isotopenaustausch setzt ein, wenn die Komponente mit Wasserdampf behandelt wird [3-19] . In diesem Fall stellt sich ein Gleichgewicht zwischen adsorbiertem Tritium bzw. Tritiumwasser und dem Wasserdampf ein.

Eine vollständige Dekontamination kann mit dieser Methode nicht erreicht werden, da die Einstellung des Isotopengleichgewichts eine asymptotische Kurve beschreibt.

Die einfachste Methode, die Komponente zu waschen oder in Wasser zu legen, ist nicht sehr erfolgreich [3-9, 3-14, 3-15]. Selbst nach 5 Tagen in Wasser sind noch 10 % der ursprünglichen Kontamination vorhanden. Durch Waschen ist es nur möglich, schwach an die Oberfläche gebundenes Tritium zu entfernen. Stärker gebundenes Tritium bzw. in die Tiefe diffundiertes Tritium ist dieser Methode nicht zugänglich.

3.8 Entsorgung von tritiumhaltigen Abfällen

Das Ziel der Entsorgung von radioaktiven Abfällen ist der Schutz der Bevölkerung vor der ionisierenden Strahlung, die von den Radionukliden in diesen Abfällen ausgeht und über hinreichend lange Abklingzeiträume von der Biosphäre isoliert werden soll. Für tritiumhaltige Abfälle liegt dieser Zeitraum in der Größenordnung von 100 Jahren.

In den meisten Ländern wird dieses Schutzziel durch das Mehrbarrierenkonzept erfüllt, das die folgenden Barrieren einsetzt:

- Einbindung der Radionuklide in ein festes Matrixmaterial,
- Verpackung in stabile Behälter und
- Endlagerung der Abfallgebinde entweder in oberflächennahen Deponien oder in Hohlräumen des tiefen geologischen Untergrundes.

Eine geordnete Beseitigung der radioaktiven Abfälle in einem Endlager, wie es das deutsche Atomgesetz vorschreibt, kann z. B. auch die Versenkung tritiumhaltiger Abwässer in Porenspeichern des tiefen Untergrundes sein, wie sie z. B. für die WAW (die inzwischen aufgegebene Wiederaufarbeitungsanlage in Wackersdorf, Bayern) geplant wurde [3-21].

Teilweise wird auch bei tritiumhaltigen Abwässern das Verdünnungspotential des Meerwassers als Barriere ausgenutzt, wenn die Standortanalyse diesen Entsorgungsweg radiologisch vertretbar ausgewiesen hat.

Einen guten Überblick über heute praktizierte und untersuchte Behandlungsverfahren und Verpackungen für tritiumhaltige Abfälle gibt F. Mannone in [3-22] und [3-23].

Der folgende Beitrag behandelt die geordnete Beseitigung (Entsorgung) tritiumhaltiger Abfälle nach deutschem Atomgesetz, die sich in die folgenden Schritte aufgliedert:

- Einteilung der radioaktiven Abfälle,
- Abfallvorbehandlung (= Konzentrierung der Abfälle),
- Abfallbehandlung (= Verfestigung der Abfallkonzentrate),
- Verpackung als endlagergerechte Abfallgebinde,
- Übertägige Zwischenlagerung in einer Landessammelstelle,
- Transport,
- Endlagerung.

3.8.1 Einteilung tritiumhaltiger Abfälle

Die Sammlung und Einteilung tritiumhaltiger Abfälle erfolgt nach Kriterien, die von Anlage zu Anlage variieren und durch die besonderen Behandlungswege diktiert werden.

Folgende Kriterien finden dabei häufig Anwendung:

- Aggregatzustand (fest, flüssig und gasförmig),
- verbrennbar und nicht verbrennbar,

- komprimierbar, zerkleinerbar,
- spezifische Tritiumaktivität (potentiell kontaminiert, schwach-, mittel- und hochaktiv) wobei es keine einheitlich definierte Grenzen gibt. In einigen Fällen richtet sich die Einteilung nach den Analysenmethoden oder nach der Herkunft, z.B. aus der Handschuhbox, vom Primärsystem usw.

Grundsätzlich gilt, daß alle Gegenstände aus einem Bereich, in dem mit Tritium umgegangen wird, potentiell mit Tritium kontaminiert sind und bei Wiederverwendung außerhalb dieses Bereiches freigegeben oder sonst als radioaktive Reststoffe behandelt werden müssen.

Für die Annahme radioaktiver Reststoffe aus Einrichtungen des Kernforschungszentrums Karlsruhe wurden von der Hauptabteilung Dekontaminationsbetriebe folgende maximal zulässigen Aktivitätskonzentrationen für Tritium definiert [3-24], die sich an dem zugelassenen Abluftplan und an den "Anforderungen für endzulagernde radioaktive Abfälle" für die Schachtanlage Konrad [3-25] orientieren:

- Feste anorganische (nicht verbrennbare) Stoffe: $< 10 \text{ Bq/m}^3$
- Feste organische (verbrennbare) Stoffe: $< 12 \text{ Bq/m}^3$
- Flüssige anorganische (nicht verbrennbare) Stoffe: $< 5 \text{ E } 11 \text{ Bq/m}^3$
- Flüssige organische (verbrennbare) Stoffe: $< 3 \text{ E } 11 \text{ Bq/m}^3$

Tabelle 3-5 enthält beispielhaft die Einteilung der Rohabfallmengen einer technischen Anlage zur Tritiumgewinnung aus kontaminiertem D₂O (Tritium Removal Facility in Darlington/Kanada), die im stationären Zustand eine Nennausbeute von 2 kg/a (= 7,2 E17 Bq/a) Tritium hat.

3.8.2 Abfallvorbehandlung

Die Reinigung der tritiumhaltigen Abgase wurde in Kap. 3.2.3 beschrieben. Die resultierenden Abfälle fallen in Form von beladenen Molekularsieben und ausgedienten Katalysatoren an, die als Festabfälle entsorgt werden.

Die folgenden Verfahren zur Abfallbehandlung dienen hauptsächlich zur Volumeneinengung der flüssigen und festen Rohabfälle:

- Isotopenanreicherungsverfahren (s. Kap. 3.6) für Abwässer mit dem Ziel, die von Tritium abgereicherte Fraktion auf Vorfluterspezifikation zu bringen oder zu rezirkulieren (z.B. D₂O). (Als Vorfluter bezeichnet man das Gewässer, in das die Abwässer einer Anlage eingeleitet werden).

Abfallart	Spez. Aktivität	Max. Mengen	Aktivität
Flüssige Abfälle	Bq/kg	m ³ /a	Bq/a
(a) Abwasser	3,7 E04	200	7,4 E09
(b) Elektrolyt, (25% KOD, D=Deuterium)	1,8 - 3,7 E10	0,025	9,3 E11
(c) Pumpenöl	< 1,8 E12	0,075	< 1,4 E14
Festabfälle	Bq/m ³	m ³ /a	Bq/a
(a) schwachaktiv	< 7,4 E09	132	< 9,8 E11
(b) mittelaktiv	7,4 E09 - 3,7 E12	0,4	1,5 E12
(c) hochaktiv	> 3,7 E12	1,3	> 4,8 E12

Tab 3-5: Tritiumkontaminierte Betriebsabfälle der TRF Darlington aus [3-26]

- Verbrennung von flüssigen und festen verbrennbaren Abfällen.
Das sind Pumpenöle oder Lösungsmittel sowie Papier, Putzmaterial, Einweghandschuhe, Kleidung u. a., die beim Betrieb mit Handschuhboxen anfallen oder für Reinigungsarbeiten verwendet werden. Bei den Verbrennungsverfahren sind höchstzulässige Aktivitätskonzentrationen zu beachten, die standortabhängig sind.
- Zerkleinern und Pressen von nicht verbrennbaren Festabfällen.
Das sind z.B. kontaminierte Großkomponenten wie ausgediente Handschuhboxen, die auf Endlagerbehälter-Dimensionen gebracht werden müssen, bzw. Blechdosen, Flaschen u. a. zum Verpressen.

3.8.3 Abfallbehandlung

Das Ziel der Abfallbehandlungsverfahren ist, das Tritium in den Abfallkonzentrationen in einer solchen chemischen oder physikalischen Form zu immobilisieren, daß es zusammen mit den anderen o. g. Barrieren für eine hinreichend lange Abklingzeit von der Biosphäre isoliert wird.

In das deutsche Endlager Konrad dürfen z.B. grundsätzlich nur Abfallgebinde eingelagert werden, die keine frei beweglichen Flüssigkeiten enthalten. Diese müs-

sen unter Verwendung von Bindemitteln in vollständig abgebundener Form vorliegen.

Gefragt ist die chemische und mechanische Stabilität der Abfallprodukte, die man bei tritiumhaltigen Abwässern mit folgenden Matrixmaterialien untersucht hat [3-22]:

- Molekularsiebe,
- Vermiculit oder andere Absorbermaterialien in Verbindung mit hydraulischen Bindern,
- Hydratisierte Kalzium-Orthophosphate, -Aluminate, -Sulfate,
- Hydraulische Zemente, z. B. Portlandzement.

Die meisten Arbeiten hierzu gehen von einer in Frankreich und England praktizierten oberflächennahen Deponie (shallow land disposal) aus, die im Vergleich zu den deutschen quasi trockenen geologischen Endlagerprojekten einem erhöhten Angriff von Auslaugmedien ausgesetzt ist.

Aschen aus Verbrennungsanlagen werden meist in Blechbehältern zu Presslingen eingeengt, bevor sie in Standardfässer eingeladen werden.

3.8.4 Verpackung von tritiumhaltigen Abfällen

Für tritiumhaltige Abfallgebinde, die in das deutsche Endlager Konrad eingelagert werden sollen, werden in [3-25] Vorschriften über die Behälterqualität und Dichtigkeit ausgewiesen, die aus der Sicherheitsanalyse für bestimmungsgemäß Betrieb und aus der Störfallanalyse entwickelt wurden.

Danach werden Aktivitätsgrenzwerte in Bq pro Gebinde nach der Dichtigkeit (z.B. jährlicher Durchlässigkeitsfaktor) und nach der chemischen Form (HT als Metallhydrid oder HTO in sonstigen Abfallprodukten) gemäß Tab. 3-6 definiert, deren Einhaltung die Abnahme des Abfallgebindes garantiert.

Im Rahmen einer Produktkontrolle wird überprüft, ob die Abfallgebinde den Endlagerbedingungen entsprechen. Hierzu führt das Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) Stichprobenprüfungen an Abfallgebinden oder vorzugsweise Inspektionen in qualifizierten Konditionierungsanlagen durch [3-27].

3.8.5 Zwischenlagerung in einer Landessammelstelle

Bis zur Inbetriebnahme des Endlagers Konrad müssen die radioaktiven Abfallgebinde mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung übertätig in einer Landessam-

Durchlässigkeit	Chemische Form		
	HT	HTO	unspezifiziert
unspezifiziert	1,9 E11	7,4 E10	3,0 E09
1 %/a	1,9 E11	4,2 E12	3,3 E09
0,1 %/a	1,9 E11	8,4 E12	3,3 E09
0,01 %/a	1,9 E11	9,3 E12	3,3 E09

Tabelle 3-6: Aktivitätsgrenzwerte in Bq pro Abfallgebinde

melstelle zwischengelagert werden. Die Landessammelstelle für das Land Baden-Württemberg befindet sich auf dem Gelände des Kernforschungszentrum Karlsruhe. Sie wird von der Landesanstalt für Umweltschutz (LfU) verwaltet, die mit KfK einen Entsorgungsvertrag abgeschlossen hat. Die Lagerkapazität der Landessammelstelle wurde ausgelegt für das Aufkommen von schwach- und mittelaktiven Abfallgebinden von ca. zehn Jahren. Es werden dort nur Abfallgebinde eingelagert, die den in [3-25] spezifizierten Behältergrundtypen entsprechen. Zwei große Lagerhallen wurden für rechteckige Container ($3 \times 1,7 \times 1,4 \text{ m}^3$) ausgelegt, die in acht Lagen gestapelt werden, so daß insgesamt ca 50. 000 Standardfässer untergebracht werden können.

In den alten Bundesländern stehen Zwischenlagerkapazitäten von ca. 125.000 m^3 Abfallgebindevolumen zur Verfügung, die Ende 1990 zu 40 % ausgelastet waren. Obwohl es in Einzelfällen zu Engpässen kommen kann, reicht diese Kapazität und der geplante Zubau für das bis zum Jahr 2000 prognostizierte Abfallgebindevolumen [3-28].

3.8.6 Transporte von radioaktiven Abfallgebinden

Die Regeln für einen sicheren Transport von radioaktivem Material sind von der Internationalen Atomenergiebehörde (IAEA) zusammengestellt worden [3-48]. Sie dienen als Grundlage für nationale Vorschriften, wie z.B. in Deutschland das Atomgesetz, die Strahlenschutzverordnung und die Gefahrgutverordnung Straße.

Grundsätzlich sind die Abfallgebinde, die die Anforderungen in [3-25] erfüllen, auch für den Transport auf öffentlichen Verkehrswegen geeignet.

3.8.7 *Endlagerung*

Der für die Endlagerung von Abfallgebinden vorgesehene Hohlraum von etwa 1.000.000 m³ soll südlich des Schachtes Konrad 1 bei Salzgitter aufgefahren werden. In den einzelnen Einlagerungskammern, die einen Querschnitt von 40 m² aufweisen und bis zu 1.000 m lang sein können, werden die Abfallgebinde im Rückbau gestapelt und der verbleibende Resthohlraum mit aufbereitetem Abraum, der beim Auffahren weiterer Kammern entsteht, versetzt. Insgesamt ist die Endlagerung von etwa 650.000 m³ Abfallgebindevolumen im Rahmen einer 40-jährigen Betriebszeit geplant.

Die Einleitung des atomrechtlichen Planfeststellungsverfahrens für das Endlager Konrad wurde am 31.8.82 bei der zuständigen niedersächsischen Landesbehörde beantragt. Aufgrund einer Weisung des Bundesministers für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit wurden die Antragsunterlagen im Mai 1991 öffentlich ausgelegt. Die öffentliche Anhörung ist im 1. Quartal 1992 vorgesehen. Drei Jahre nach einem positiven Planfeststellungsbeschuß, die für die Umrüstung des ehemaligen Eisenerzbergwerkes Konrad zum Endlager benötigt werden, kann dann mit dem aktiven Einlagerungsbetrieb gerechnet werden.

Bezüglich Tritium soll am Ende der Betriebszeit desendlagers eine kumulierte Aktivität von 6 E17 Bq (= 1680 g) in den eingelagerten Abfallgebinden nicht überschritten werden. In der aktiven Betriebsphase des Endlagers Konrad werden voraussichtlich auch größere Fusionsexperimente oder kommerzielle Anlagen als Erzeuger tritiumhaltiger Abfälle in Erscheinung treten. Die o. g. Aufnahmekapazität für Tritium wird wahrscheinlich durch Abfallgebinde des Brennstoffkreislauftes für Spaltungsreaktoren abgedeckt werden, so daß bis dahin neue Endlagerkapazitäten geschaffen werden müssen.

3.9 Analytische Meßtechnik

Die sichere Tritiumhandhabung bis hinauf in den Kilogrammbereich macht die Anwendung und Weiterentwicklung einer Reihe spezieller analytischer Techniken erforderlich.

3.9.1 *Methoden zur Tritiumsaktivitätsmessung*

Die erste Aufgabe der Tritiumanalytik ist eine möglichst genaue Messung der Tritiumaktivität über einen großen dynamischen Bereich. Die verschiedenen Methoden dieser Messungen beruhen auf der durch den Zerfall des Tritiums bedingten Strahlung und Energiefreisetzung (vgl. Kap. 1.1). Die Messung der Tri-

tiumaktivität in größeren Anlagen ermöglicht die aktuelle Erfassung ("real time") aller Inventare an tritiumhaltigen Gasen und die Kontrolle von Prozessen. Aus Sicherheitsgründen ist außerdem eine umfassende strahlenschutztechnische Überwachung möglicher Freisetzung von Tritium in die verschiedenen Schutzhüllen bzw. in die Umgebung erforderlich.

Es existieren heute zur Tritiumaktivitätsmessung vier "Standardmethoden":

Flüssigszintillationszählung (LSC)

Bei der LSC-Methode werden durch Absorption der Tritium- β -Strahlen in einer aromatischen organischen Flüssigkeit Photonen im sichtbaren Bereich erzeugt. Die Methode ist besonders für die Messung der Tritium- β -Strahlung geeignet. Wegen der kurzen Reichweite finden praktisch alle Zerfallsereignisse innerhalb der Flüssigkeit statt und können damit zur Emission von Photonen beitragen. Die Zahl der entstehenden Photonen ist der Energie der zu messenden Strahlung proportional. Die Photonenpulse werden in Elektronenpulse verwandelt, über einen Vervielfacher verstärkt und schließlich gezählt. Die Wahrscheinlichkeit der Erzeugung eines registrierbaren Pulses ist bei der Anwendung dieser Methode etwa 50 %. Die Umwandlungswahrscheinlichkeit von β -Strahlen inzählbare Impulse kann zusätzlich durch interne Lichtabsorption - auch "Quencheffekt" genannt - weiter herabgesetzt werden. Moderne Geräte korrigieren automatisch für diesen Effekt.

Die Flüssigszintillationsmethode ist bei geeigneter Probenvorbereitung universell verwendbar. Beispielsweise kann gasförmiges Tritium oder tritiertes Methan durch katalytische Oxidation mit Sauerstoff zu HTO umgesetzt werden. Die Methode gestattet außerdem, sowohl sehr niedrige als auch - nach Verdünnung - sehr hohe Tritiummengen zu bestimmen. Zur Messung wird die wässrige Probe mit einem zur Tritiumbestimmung optimalen "Szintillationscocktail" homogen vermischt. Der "Cocktail" enthält einen primären Fluoreszenzemitter, z. B. PPO (2,5 Diphenyloxazol), und einen sekundären Fluoreszenzemitter, z. B. POPOP [2, 2'- p-Phenylen-bis (5-Phenyloxazol)], der für die bessere Anpassung an das Empfindlichkeitsmaximum des Photomultipliers sorgt. Als "Lösungsvermittler" zwischen wässrigen Proben und dem Lösungsmittel (meist Xylol) des Szintillators kann noch Alkohol zugefügt werden.

Die heutigen LSC-Geräte sind mit einem Probenwechsler ausgerüstet, der einige hundert Proben aufnehmen kann. Proben und Meßraum sind zur Unterdrückung der thermischen Emission von Elektronen in den "Photomultiplier"-Röhren ge-

kühlt. In der Probenkammer befinden sich zwei in Koinzidenz geschaltete "Photomultiplier" (d. h. nur gleichzeitig auftretende Ereignisse werden gezählt), so daß im wesentlichen nur Impulse aus der Probe registriert werden. Mittels Diskriminatoren werden aus dem Impulsspektrum die Pulse selektiert, die mit größter Wahrscheinlichkeit durch einen β -Zerfall ausgelöst wurden. Die Geräte arbeiten rechnergesteuert. Ein eingebauter externer Standard (ca. E05 Bq ^{226}Ra) gestattet die automatische Berechnung von Quenchkurven. Eichkurven lassen sich speichern. Bei der Messung der Proben wird eine 4-π -Geometrie angestrebt. Die Berechnung der Aktivität (Bq) erfolgt automatisch, wobei auch der Nulleffekt automatisch abgezogen werden kann.

Die mit der LSC-Methode erzielbare Nachweisgrenze liegt bei $1,2 \times 10^{-3}$ Bq/g Wasser [3-29]; sie kann durch vorausgehende elektrolytische Anreicherung noch weiter herabgesetzt werden.

Ionisationskammer

Bei der Verwendung von Ionisationskammern zur Tritiummessung wird die Eigenschaft der Tritium- β -Strahlung genutzt, aus Gasatomen oder -molekülen durch Elektronenstoßionisation positive Ionen und Elektronen zu bilden. Ist das Gas in einer Ionisationskammer eingeschlossen, die im allgemeinen eine zylindrische Form hat, ist es durch Anlegen einer Spannung zwischen einer axial angeordneten, elektrisch isolierten stabförmigen Sammelelektrode und der inneren Wand des metallischen Zylinders möglich, die gebildeten Ladungsträger zu trennen. Wenn die Sammelelektrode positiv polarisiert ist, wird durch die Elektronen ein Strom erzeugt, der der Tritiumkonzentration proportional ist. Hierbei müssen Druck, Temperatur und Gasart konstant gehalten werden. Üblicherweise werden die Strommessungen im sog. Plateaubereich vorgenommen, d. h. in einem Bereich, in dem der gemessene Ionisationsstrom von der angelegten Spannung unabhängig ist. Experimentell ist gezeigt worden, daß eine Ionisationskammer geeigneter Dimensionierung und unter Wahl geeigneter Materialien ein Verhältnis des Ionisationsstromes zur Tritiumkonzentration liefert, das mit theoretischen Überlegungen gut übereinstimmt. Die Empfindlichkeit der Kammer für tritiertes Methan lag z. B. bei 20 Bq/cm^3 [3-30].

Für die Messung des Tritiumgehaltes in Prozeßsystemen wurde eine Ionisationskammer mit sehr kleinem Volumen ($1,9 \text{ cm}^3$) vorgeschlagen. Sie zeigte einen zufriedenstellenden Sättigungsstromverlauf oberhalb einer Sammelspannung von 20 Volt und lieferte außerdem eine lineare Beziehung zwischen Ionisationsstrom und Tritiumkonzentration in einem weiten Bereich von $3,7 \times 10^4$ bis $1,1 \times 10^5 \text{ Bq/cm}^3$.

Über eine Ionisationskammer mit einem effektiven Volumen von 17 cm³, die speziell für die Messung hoher Tritiumkonzentrationen im Bereich von 9,25 E06 bis 9,25 E10 Bq/cm³ verwendbar ist, ist berichtet worden [3-32]. Allerdings treten sowohl im Bereich hoher als auch niedriger Grenzkonzentrationen der Messungen Abweichungen vom theoretisch vorausgesagten Ionenstrom auf.

Proportionalzähler

Die Methode der Proportionalzählung beruht - wie die der Messung mit Ionisationskammern - auf der Ionisation von Gasen durch die β -Strahlung des Tritiums. Jedoch wird bei dem Proportionalzähler als Sammelelektrode ein positiv polarisierter, in einem Zylinder axial angeordneter dünner Draht verwendet. Die angelegte Gleichspannung ist höher als in einer Ionisationskammer und liegt im kV-Bereich. Durch die hohe elektrische Feldstärke in der Nähe des Sammeldrahtes sind die beim Ionisationsprozeß entstandenen Elektronen in der Lage, etwa 10³ - 10⁵ Sekundärelektronen im Gas zu erzeugen, die als Elektronenlawine am Zähl draht einen Puls pro Tritiumzerfall auslösen, der verstärkt und mit praktisch 100 % Wirkungsgrad gezählt werden kann.

Proportionalzähler sind durch ihre kurze Ansprechzeit und hohe Empfindlichkeit auch als Durchflußzähler geeignet. Die Methode ist für die Bestimmung von Tritium und Kohlenstoff-14 anwendbar, wobei man zwischen beiden Isotopen diskriminieren kann. Wegen der mit steigender Tritiumkonzentration zunehmenden Koinzidenzverluste ist der dynamische Bereich nach oben begrenzt.

Kalorimetrie

Die Bestimmung der Tritiumaktivität mittels der Kalorimetrie bietet eine Reihe von Vorteilen gegenüber anderen Methoden:

- sie ist für jede chemische Form des Tritiums anwendbar,
- sie arbeitet zerstörungsfrei,
- inhomogene Verteilung des Tritiums beeinträchtigt die Messung nicht,
- Probenahme und die dadurch entstehenden Fehler entfallen.

Ein isotherm arbeitendes Kalorimeter besteht im wesentlichen aus einer äußeren Wärmeisolierung, einem Wassermantel, dessen Temperatur konstant gehalten wird, einer Wärmeisolierung zwischen dem Wassermantel und dem Kalorimeter-

gefäß, in das die Probe eingesetzt wird. Der Temperaturunterschied zwischen dem zentral angeordneten Kalorimetergefäß mit der Wärmequelle und dem umgebenden Wasser wird nach Einstellung des Temperaturliegengewichtes meist mit Widerstandsthermometern gemessen. Die Eichung kann mit einer eingesetzten elektrischen Heizquelle durchgeführt werden.

Die beim radioaktiven Zerfall von Tritium freiwerdende Energie kann wegen der geringen Reichweite der β -Strahlung und aufgrund der Tatsache, daß keine γ -Quanten emittiert werden, vollkommen im inneren Kalorimetergefäß absorbiert und in thermische Energie umgewandelt werden. Die thermische Leistung, Q, pro Tritiumszerfallrate, A, kann aus den Daten der Tabelle 1-1 berechnet werden; sie ergibt sich zu

$$Q/A = 9,11 \text{ E-16 [W/Bq].} \quad (3-1)$$

Die Kalorimeter sind auch besonders für die Tritiumbilanzierung geeignet, wenn ihre Empfindlichkeit und Genauigkeit hierzu ausreicht. Zum Beispiel wird im KfK, Karlsruhe, mit einem bisher für andere Zwecke gebrauchten Kalorimeter nach projektierter Adaption für den Gebrauch mit Tritium eine Empfindlichkeit von 1,11 TBq erreicht [3-33], was ausreichend ist zur Bilanzierung der Tritiummenge in Lagerbehältern. Besonders hohe Empfindlichkeit mit einem von 12 in Betrieb befindlichen Kalorimetern wurde im Mound Laboratory, USA (3,7 E09 [Bq],[3-34]) bzw. mit einem Mikrokalorimeter in JAERI, Japan (1,1 E10 [Bq], [3-35] erreicht.

Weitere Methoden

Außer den genannten Standardmethoden sind weitere Methoden entwickelt worden, deren Verwendung weniger verbreitet ist. U. a. wurde ein in-line Detektor mit Elektroniksystem für den Nachweis kleiner Tritiumkonzentrationen gebaut. Die Tritium- β -Strahlung wird mit einer europiumdotierten Kalziumfluorid-szintillator/Photomultiplier-Kombination nachgewiesen. Das System weist folgenden Meßbereich auf: 13 - 2,52 E05 [Bq/cm³]. Die kleinste nachweisbare Aktivität beträgt 1,78 [Bq/cm³] [3-36].

Die Anwendbarkeit der Bremsstrahlungszählmethode für die in-situ Messung des Tritiumpartialdruckes in isotopen Wasserstoffgasen wurde im Bereich von 6,67 bis 1,013 E05 Pa Tritiumpartialdruck mit einem neu entwickelten, für Bremsstrahlung besonders empfindlichen Proportionalzähler gezeigt [3-37].

3.9.2 Methoden zur Identifizierung tritiumhaltiger Verbindungen

Die bisher diskutierten Methoden zur Tritiumanalytik geben keine Auskunft über die chemische Form, in der das Tritium vorliegt; sie liefern lediglich Daten über die Gesamtaktivität an Tritium. Da aber Tritium fast immer im Gemisch mit anderen Gasen vorliegt, in denen auch Tritium gebunden sein kann (z. B. DT oder CH₂T₂), besteht die zweite Aufgabe darin, die im Gasgemisch enthaltenen einzelnen Spezies zu identifizieren und quantitativ zu erfassen. Hierzu haben sich zwei Standardmethoden etabliert:

Massenspektrometrie

Die Massenspektrometrie ist eine Methode zur Analyse von Gasen [3-38]. Die Gas- teilchen werden zunächst in einer sog. Ionenquelle durch Stoßprozesse mit Elektronen ionisiert. Die Energie der Elektronen muß die Ionisationsschwelle des zu ionisierenden Gases übersteigen. Die entstandenen positiv geladenen Ionen werden aus der Ionenquelle durch eine negative Ziehspannung extrahiert und entsprechend ihrem Masse/Ladungs-Verhältnis, m/e, durch magnetische und/oder elektrische Felder unterschiedlich stark abgelenkt und schließlich auf einen Detektor übertragen. Hierzu kann ein Faraday-Käfig, ein Elektronenvervielfacher oder ein sog. Daly-Detektor mit einer Photovervielfacherröhre verwendet werden. Die auf einen Detektor auftreffenden Ionen werden nach Verstärkung entweder mit einem Ionenzählgerät gezählt, oder es wird der in einem Spannungs- abfall über einen Hochohmwiderstand erzeugte Ionenstrom mit einem Elektrometer gemessen. Der Teil der Apparatur, der der Erzeugung, Trennung und dem Nachweis der Ionen dient (vom Gaseinlaß bis zum Detektor), wird durch Turbomolekularpumpen oder Ionizerstäuberpumpen evakuiert.

Das typische Massenspektrum einer tritiumhaltigen Probe von 3,7 E09 [Bq], die einen T₂-Gehalt von 85 % hat und mit anderen isotopen Wasserstoffen sowie ³He vermischt ist, wird in Abb. 3-13 gezeigt. Das Spektrum wurde mit einem einfachfokussierenden Massenspektrometer unter Verwendung eines Daly-Detektors, der speziell für die Messung von tritiumhaltigen Proben entwickelt wurde, erhalten [3-39]. Die gewählte Auflösung $m/\Delta m = 1000$ ist ausreichend, um alle auftretenden Peaks bis auf die der Massen von ³He⁺ und T⁺ aufzulösen. Die Beiträge dieser beiden Ionen können durch Rechnung berücksichtigt werden.

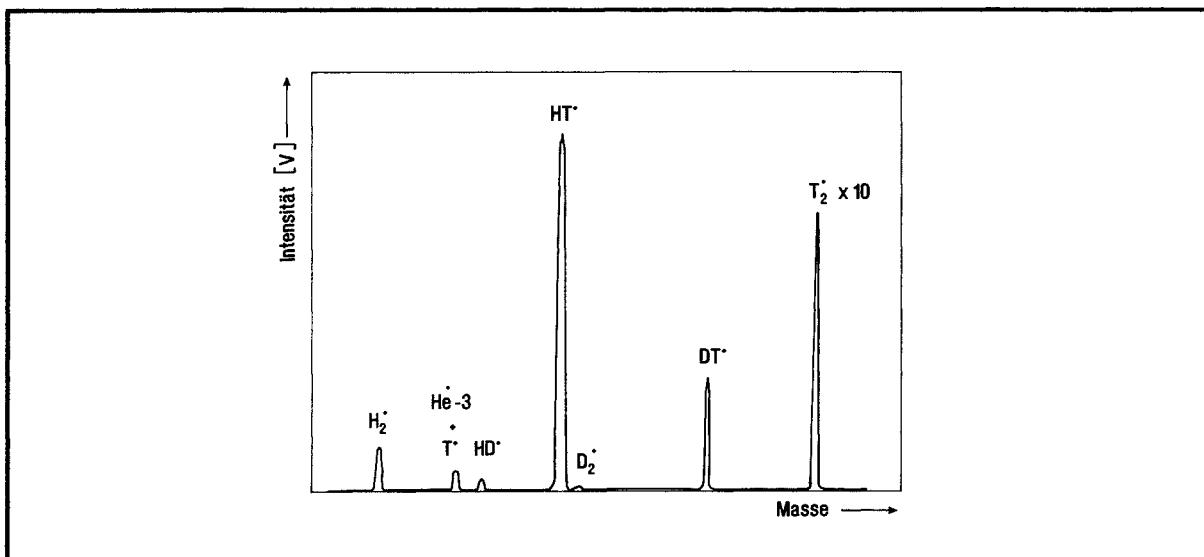


Abb. 3-13: Massenspektrum eines isotopen Wasserstoffgemisches von der Massenzahl 2-6.

Gaschromatographie

Die chromatographische Trennung von Gasgemischen und die quantitative Bestimmung ihrer Komponenten beruht auf den Unterschieden in den Adsorptionsenergien der Gaskomponenten an einem Adsorptionsmaterial, das sich in einer sog. chromatographischen Säule befindet. Die Probe wird in einen Trägergasstrom dosiert und durch die Säule geleitet. Die Komponenten des Gasgemisches wandern durch die Säule mit einer Geschwindigkeit, die durch die Adsorptionsenergie bestimmt ist. Nach Verlassen der Säule werden die einzelnen Komponenten durch einen Detektor nachgewiesen (s. Abb. 3-14). Dort wird eine elektrische Spannung erzeugt, die zur Auswertung verwendet wird. Durch Messen der Retentionszeiten und der Signalflächen, die durch Integration erhalten werden, kann nach Eichung mit bekannten Gasgemischen die Zusammensetzung der Gasprobe quantitativ analysiert werden. Die örtliche Aufspaltung verschiedener Gaskomponenten vergrößert sich proportional zur Zeit, während die Signalverbreiterung proportional mit der Wurzel aus der Zeit erfolgt. Daraus folgt, daß auch bei sehr kleinen Unterschieden in den Adsorptionsenergien von Gaskomponenten eine praktisch vollständige Trennung möglich ist, wenn die Trennung über genügend lange Zeit fortgesetzt wird.

Bei Verwendung einer Ionisationskammer kleinen Volumens ($2,5 \text{ cm}^3$) als Detektor kann eine Nachweisgrenze von $9,6 \cdot 10^4 \text{ [Bq/Normliter]}$ erzielt werden [3-40].

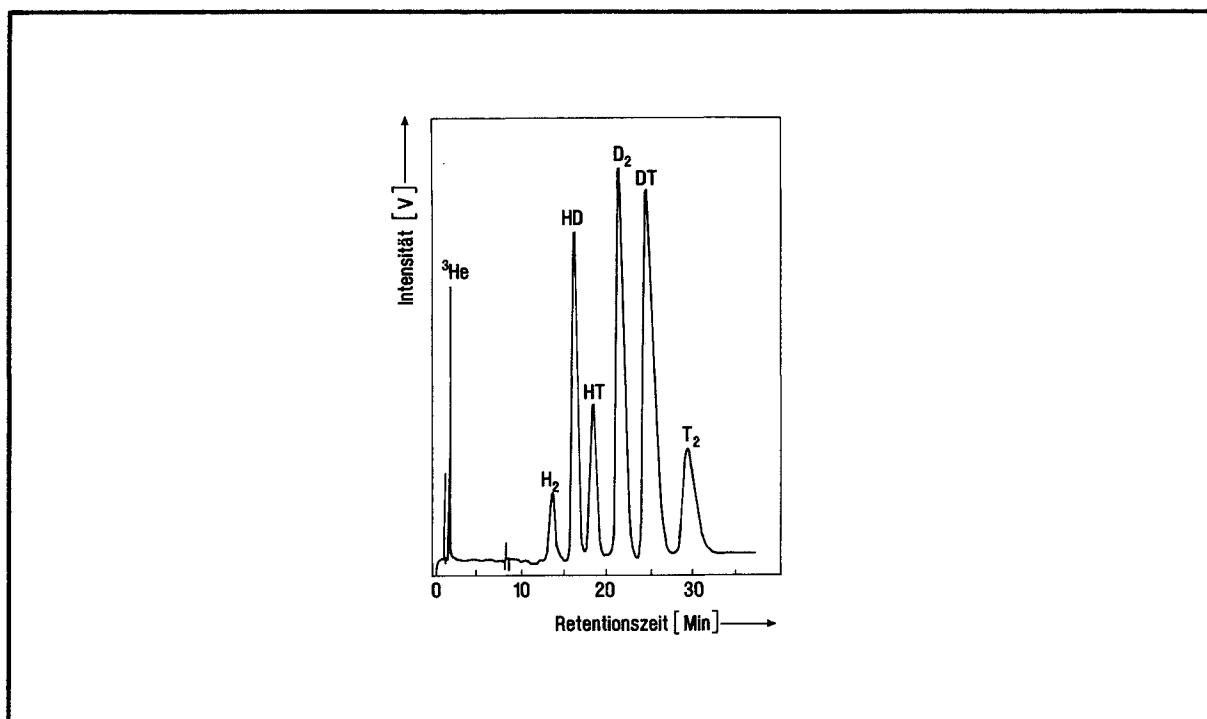


Abb. 3-14: Gaschromatographische Trennung von ^3He , H_2 , HD, HT, D_2 , DT und T_2 an einer 3 m langen Säule mit Ne als Trägergas bei 77 K [3-40].

Neben diesen beiden Standardmethoden können auch die folgenden Meßverfahren eingesetzt werden:

Omegatron:

Ein Massenspektrometer vom Typ Omegatron arbeitet auf der Basis der Ionenzyklotronresonanz. Ein an der Universität Essen konzipiertes und gebautes Omegatron wurde im Kernforschungszentrum Karlsruhe zur quantitativen Analyse aller isotopen Wasserstoffmoleküle und ^3He , ^4He eingesetzt [3-41]. Das Auflösungsvermögen dieses Gerätes ist gegeben durch 2500/m, weshalb es sich in erster Linie zur Messung leichter Isotope eignet. Diese Meßtechnik weist eine Reihe von Vorteilen auf:

- sehr geringe Probenmengen erforderlich,
- wegen des extrem niedrigen Betriebsdruckes Bildung dreiatomiger Molekülionen vernachlässigbar,

- sehr geringe Memoryeffekte durch Ausführung in UHV-Technik, Vergoldung aller relevanten Metalloberflächen sowie Ausheizbarkeit und max. Betriebstemperatur 300 °C,
- kleines Gesamtvolumen der Apparatur und daher Möglichkeit der Unterbringung in einer Handschuhbox.

Selbst bei der für das Omegatron kritischen Trennung von HT^+ und D_2^+ ist eine quantitative Analyse bei einem Verhältnis 1:100 möglich.

Laser-Raman-Spektroskopie

In der Raman-Spektroskopie werden Proben senkrecht zur Beobachtungseinrichtung eingestrahlt und die Wechselwirkung zwischen Photonen und Molekülen als Streulicht beobachtet.

Neben der Hauptlinie der anregenden Strahlung (Rayleigh-Strahlung) treten auch Linien auf, die gegenüber der Hauptlinie um ganz bestimmte Beträge verschoben sind (sog. Stokes- und Antistokes-Linien). Diese Frequenzverschiebungen entsprechen gewissen Schwingungs- oder Rotationsübergängen der betreffenden streuenden Moleküle. Zur Analyse von Gasen werden leistungsstarke Laser verwendet, wobei die Intensität der Erregerstrahlung durch Mehrfachreflexion noch weiter erhöht wird [3-42]. Für Messungen an tritierten Gasen sind UHV-dichte Probenzellen mit Fenstern (z. B. Quarzglas oder Saphir) hoher optischer Qualität erforderlich [3-43]. Senkrecht zum Laser befindet sich ein Monochromator mit Detektor (z. B. Photovervielfacher oder Photodiodenarray).

Ramanaktiv sind Rotationen und Schwingungen von Molekülen, bei denen sich die Polarisierbarkeit mit der Rotations- bzw. Schwingungsbewegung ändert. Aus diesem Grunde eignet sich die Methode nicht nur für die qualitative und quantitative Bestimmung von tritiumhaltigen Kohlenwasserstoffen, wie Ammoniak usw., sondern auch für die aller isotopen Wasserstoffe [3-42, 3-43].

Infrarotspektrometrie

Die bei der Absorption von infrarotem Licht in einem Gemisch zweiatomiger Wasserstoffspezies auftretenden Absorptionsspektren weisen Peaks auf, deren Schwingungsfrequenzen sich wegen der unterschiedlichen Massen der absorbierenden Spezies voneinander unterscheiden. Da die Flächen der Peaks direkt proportional den Molenbrüchen der sie hervorrufenden Spezies sind, kann eine quantitative Analyse des Gemisches durchgeführt werden.

Zweiatomige Wasserstoffmoleküle haben entweder keine oder sehr kleine permanente elektrische Dipolmomente und absorbieren daher infrarotes Licht nur wenig oder gar nicht. Durch Zusammenstöße der Moleküle entstehen jedoch induzierte Dipolmomente, die für eine ausreichende Absorption sorgen. Die Absorption ist proportional dem Quadrat der Dichte; die Messungen werden daher meist mit flüssigem oder festem Wasserstoff durchgeführt. Vergleichende Analysen an etwa äquimolaren D/T-Proben zeigen gute Übereinstimmung zwischen Infrarotspektrometrie und Massenspektrometrie. Die Methode arbeitet zerstörungsfrei, jedoch werden aus den oben genannten Gründen die Analysen in festem oder flüssigem Wasserstoff durchgeführt, wozu hohe Tritiumaktivitäten benötigt werden [3-44].

Bei Molekülen mit großem permanenten Dipolmoment, wie z. B. T₂O, NT₃, CD₃T usw., können wegen der hohen Absorptionskoeffizienten gasförmige Proben verwendet werden [3-45, 3-46].

Mikrowellenspektrometrie

Die Mikrowellenspektrometrie nutzt die Eigenschaft permanenter Dipolmoleküle, durch Rotationsanregung eine spezifische Wellenlänge zu absorbieren. Die hohe Selektivität der Methode ergibt sich dadurch, daß kleinste Änderungen in Masse oder Geometrie des zu analysierenden Moleküls zu anderen Anregungsfrequenzen führen.

Es ist noch zu prüfen, ob diese Methode für die Prozeßanalytik gewisser tritiumhaltiger Gase (z. B. tritiierter Wasser- bzw. Ammoniakmoleküle [3-47]) geeignet ist.

3.10 Tritiumbilanzierung

3.10.1 Einleitung

Das Ziel einer Materialbilanzierung in einer eindeutig definierten Bilanzierungszone ist eine möglichst genaue physikalische Bestandsaufnahme zu einem Zeitpunkt (t), die mit dem entsprechenden Buchbestand verglichen wird und mit diesem in einer Bandbreite übereinstimmen soll, die nur durch Meßfehler bei der Bestimmung der einzelnen Bilanzposten erklärbar gemacht werden kann. Insofern unterscheidet sich die Materialbilanz von der Bankbilanz, da letztere nur eindeutige Geldeinheiten verwendet und von daher eine genaue Übereinstimmung von Aktiv- und Passivposten fordern kann.

Im Rahmen des Europäischen Fusionstechnologieprogrammes ist z.B. für das Tritiumlabor Karlsruhe vorgesehen, daß EURATOM auf der Basis der jährlichen Bilanzierung Prüfungen durchführt. Art und Umfang der Prüfungen sind noch festzulegen. Aus der Sicht von EURATOM ist sicherzustellen, daß Tritium nur der friedlichen Nutzung im Rahmen des Fusionsprogrammes zur Verfügung steht und innerhalb der EURATOM-Staaten verbleibt (Stand: Ende 1991).

Auch die Strahlenschutzverordnung schreibt in § 78 vor, den Bestand an radioaktiven Stoffen jährlich einmal anzuzeigen sowie über Zu- und Abgänge Buch zu führen. Die zuständige Behörde ist darüber hinaus berechtigt, die Richtigkeit der Buchführung und der Anzeigen zu überprüfen.

In kerntechnischen Anlagen, z.B. Wiederaufarbeitungsanlagen, in denen Tritium als Abfallstrom anfällt, werden zwar genaue Angaben über nuklidspezifische Emissionen angezeigt und mit dem genehmigten Abluftplan verglichen, eine Tritiumbilanz ist aber allein schon mangels geeigneter Eingangsbestimmungen im bestrahlten Kernbrennstoff nicht erforderlich.

Der folgende Beitrag beschreibt die Möglichkeiten einer Tritiumbilanzierung in einer Anlage, wie z.B. dem Tritiumlabor Karlsruhe, in der ausschließlich Tritium als radioaktiver Stoff gehandhabt wird. Analysiert werden auch die physikalisch-chemischen Probleme, die bei der Messung und Handhabung dieses radioaktiven Gases mit seiner großen Absorptionsneigung an exponierten Oberflächen zu beachten sind.

3.10.2 *Die Bilanzposten einer Tritiummaterialbilanz*

Der Buchbestand (BI) in einer Materialbilanzzone zum Zeitpunkt t setzt sich aus folgenden Posten zusammen :

$$BI(t) = \text{Physikalischer Bestand}(t_0) + \text{Eingänge}(t-t_0) - \text{Ausgänge}(t-t_0) - \text{Zerfallsverluste}(t-t_0), \quad (3-2)$$

wobei t_0 der Zeitpunkt der letzten physikalischen Bestandsaufnahme ist.

Der Fehlbetrag in der Bilanz ($\Delta M(t)$) wird durch die abschließende physikalische Inventur PI(t) über Gl.(2-3) ermittelt:

$$\Delta M(t) = BI(t) - PI(t) \quad (3-3)$$

Der Erwartungswert dieses Fehlbetrages ist Null. Das Ziel der Tritiumbilanz ist es, signifikante Fehlbeträge in den definierten Materialbilanzzonen auszuwerten

und dadurch Anomalien (z.B. Fehlmessungen, Buchungsfehler, Leckagen, verborgenes Inventar, entwendetes Material) zu entdecken, die zu interpretieren sind.

- Physikalische Inventur

Die Bestandsaufnahme des physikalischen Inventars (PI) ist mit der Schwierigkeit verbunden, daß nur ein bestimmter Anteil des Tritiums mobil ist, der in verschiedenen chemischen Formen, z.B. elementar, einer Messung zugänglich gemacht werden kann. Die wichtigsten analytischen Meßmethoden hierzu sind in Kap. 3.9 beschrieben.

Ein Teil des Tritiums in einer technischen Anlage ist an den exponierten inneren Oberflächen adsorbiert oder in metallischem Strukturmaterial gelöst. Ein Teil ist chemisch gebunden, z.B. als Urantritid für Lagerzwecke, und bleibt auch nach der Austreibung des Tritiums durch Temperaturbehandlung als Restinventar zurück, das in der Größenordnung von 10^{10} Bq pro g Uran liegt.

Eine Möglichkeit, dieses immobile Tritium zu mobilisieren, ist der Isotopenaustausch, indem die kontaminierten Strukturmaterialien mit den Wasserstoffisotopen Protium oder Deuterium beaufschlagt werden, die mit dem gebundenen Tritium austauschen. Mit dieser Methode muß allerdings eine isotopische Verdünnung in Kauf genommen werden. Weitere Dekontaminationsmöglichkeiten sind in Kap. 3.7 beschrieben.

Da es technisch nicht möglich ist, alles Tritium bei einer physikalischen Inventur in eine meßbare Form zu überführen, muß man experimentelle Schätzwerte, z.B. der Oberflächenbelegung, zu Hilfe nehmen. Das gebundene Inventar wird sich in einigen Fällen auch einem Sättigungswert annähern, der als durchlaufender Posten in die Gesamtbilanz eingeht.

- Eingänge

Tritium ist kommerziell erhältlich, z.B. bei der Dekontamination von Schwerwasser, das in Schwerwasserreaktoren als Moderator und Kühlmittel verwendet und dabei durch Neutronenaktivierung mit Tritium kontaminiert wird. Die Tritiumanlieferungen erreichen den Verbraucher meist in Form von Transport-

Getterbehältern, in denen das Tritium chemisch, z.B. an Uran, gebunden ist (Urantritid).

Die konventionelle Methode, das Tritiuminventar und dessen Verunreinigungen zu verifizieren, ist die sog PVT - Messung in Kombination mit einer chemischen Analyse. Dabei wird das durch Temperaturbehandlung freigesetzte Tritiumgas in einem kalibrierten Behälter eingeschlossen und über die Messung der Gaszustände (Druck und Temperatur) das Molinventar ermittelt. Über die Gaschromatographie (s.Kap.3.9) wird der Tritiumanteil gemessen. Der Gesamtfehler einer Eingangsbestimmung liegt bei 3-5 %.

Alternativ hierzu wird auch die Kalorimetrie zur Tritiuminventarbestimmung untersucht, die den Vorteil hat, das Tritium integral in einem versiegelten Transportbehälter zu messen. Bei günstigen Randbedingungen, z.B.konstanter Umgebungstemperatur, lässt sich die Genauigkeit dieser Methode auf 1-2 % angeben [3-33]. Ein Präzisionskalorimeter mit einer Nachweisgrenze im mW-Bereich wäre damit in der Lage, auch das immobile Restinventar nach der thermischen Freisetzung des Tritiums aus dem Urgetterbehälter zu messen.

- Ausgänge

Unter Ausgängen sind hauptsächlich die Produktchargen und die gasförmigen, flüssigen sowie festen Abfallströme zu bilanzieren.

Produktchargen eines Tritiumlieferanten entsprechen in der Meßgenauigkeit den o.a. Ausführungen zu der Eingangsbestimmung.

Abgase werden in Tritiumrückhaltesystemen so weit dekontaminiert, daß die jährlichen Tritiumabgaben in der Abluft klein im Verhältnis zu flüssigen und festen Abfällen sind. Der Jahresemissionsgrenzwert für Tritium wurde für das Tritiumlabor Karlsruhe (TLK) mit $4 \cdot 10^{13}$ Bq/a festgelegt, der aber im Normalbetrieb voraussichtlich unterschritten werden wird.

Tritiumkontaminierte Abwässer eines Labors sind stark abhängig von dem dort durchgeführten Forschungsprogramm. Sie werden z.B. beim Tritiumlabor Karlsruhe mit max. 10^{11} Bq/a gegenüber dem Inventar von 10 g Tritium (= $3,5 \cdot 10^{15}$ Bq) nicht ins Gewicht fallen.

Dahingegen kann die Tritiumkontamination in den Festabfällen 5-10% des beantragten Tritiuminventars im TLK pro Jahr ausmachen.

In großtechnischen Anlagen, z. B. TRF (Tritium Removal Facility in Darlington/Kanada) liegen die Tritiumverluste in flüssigen und festen Abfallströmen bei 10^{-4} der Jahresproduktion von ca. 2,0 kg Tritium [3-22] und können daher in einer Tritiumbilanz vernachlässigt werden.

- Zerfallsverluste

Ein nicht unerheblicher Posten in der Materialbilanz sind die radioaktiven Zerfallsverluste, die wegen der relativ kurzen Halbwertszeit des Tritiums von 12,323 Jahren 5,5 % pro Jahr betragen. Um diese Verluste richtig zu bilanzieren, müssen der physikalische Anfangsbestand (P_{I_0}) und alle Bestandsänderungen im Zeitraum $t-t_0$ zeitlich zugeordnet und auf den Bilanzierungszeitpunkt t durch Rechnung korrigiert werden.

- Zusammenfassung

Bei einer Tritiumbilanzierung sind zwei Tritiuminventarkomponenten zu erfassen, deren Bestimmung unterschiedliche Methoden erfordern:

- das mobile Tritiuminventar, das meist in elementarer Form einer Messung (PVT-Messung) zugänglich gemacht werden kann, und
- das immobile Tritiuminventar, das infolge Adsorption an exponierten Oberflächen oder Löslichkeit im Strukturmaterial der tritiumführenden Systeme oder chemisch gebunden an Gettermaterialien nur mit Hilfe geeigneter Schätzmethoden erfaßt werden kann.

Die Hauptschwierigkeit liegt in der Erfassung des immobilen Inventars. Lediglich die Kalorimetrie gestattet eine integrale Messung, sofern das Tritiuminventar in einem Behältnis vorliegt, das in ein Kalorimeter eingeführt werden kann. Die Nachweisgrenze eines Präzisionskalorimeters liegt bei wenigen mW Wärmeleistung bzw. 10^{12} Bq Tritium.

Im praktischen Betrieb des Tritiumlabors Karlsruhe werden alle Tritiumbewegungen und Inventaraufnahmen sorgfältig registriert und die radioaktiven Zerfallsverluste durch Rechnung berücksichtigt. Alle Daten werden über EDV-Programme erfaßt, archiviert und einer Tritiumverlustanalyse unterworfen.

3.11 Forschungsprogramme zur Tritiumtechnologie

Wie in den Kapiteln 3.2 bis 3.10 beschrieben, stehen für die Handhabung von Tritium im Labormaßstab eine ganze Reihe von bewährten Methoden und Verfahren zur Verfügung. Für den Einsatz in künftigen großen Fusionsanlagen müssen diese Verfahren für die dortigen Randbedingungen weiterentwickelt bzw. optimiert werden.

Im folgenden werden einige Beispiele für technische Entwicklungen und Fragestellungen bei der Handhabung von Tritium in großen Fusionsanlagen beschrieben. Sie betreffen

- die erforderlichen Eigenschaften von Pumpsystemen,
- die Entwicklung von Einzelkomponenten für den Brennstoffkreislauf sowie
- die Entwicklung von integralen Prozessen zur Brennstoffreinigung.

3.11.1 Pumpsysteme (vgl. Kap. 3.4)

Für die Plasmabrennkammer eines Fusionsreaktors (Torus) wird ein Pumpsystem benötigt, um alle beim Betrieb und bei Wartungsarbeiten anfallenden Gase abpumpen zu können. Da diese Gase in der Regel Tritium enthalten, werden sie entweder der Brennstoffprozessierung oder der Abgasreinigung zugeführt. Ihr Druck liegt im Bereich von etwa 1 Pa bis 1 bar; das erforderliche Saugvermögen reicht bis in die Größenordnung von 1000 m³/s. Für die unterschiedlichen Anforderungen kommen mehrere Pumpentypen bzw. Pumpenkombinationen in Frage. Dazu gehören sowohl mechanische Pumpen (z.B. Membran-, Turbomolekular- und Spiralpumpen) als auch mehrere Arten von Kryopumpen (Getterpumpen).

Große ölfreie Spiralpumpen werden als Vorpumpen für die Absaugung von Luft, Helium, Argon und Wasserstoffisotopen benutzt. Hierfür kommen vor allem Pumpen der Fa. Normetex zum Einsatz, die mit einem Saugvermögen bis über 1000 m³/h gebaut werden, über deren Eigenschaften im Hinblick auf fusionsrelevante Gase jedoch nur wenige Informationen vorliegen. Bei KfK wurden daher Pumpen verschiedener Größe sowohl mit reinen Gasen (N₂, Ar, He, CH₄, C₃H₈, H₂ und D₂) als auch mit deren Mischungen getestet [3-49]. Dabei zeigte es sich, daß das nominale Saugvermögen zwar für Luft und Argon gilt, daß es aber in der Reihenfolge der Gase He, D₂, CH₄, H₂ stark abnimmt. Es erwies sich ferner als erforderlich, die Pumpen nicht gegen Normaldruck, sondern gegen maximal 400

mbar pumpen zu lassen, um das Saugvermögen für die zuletzt genannten Gase zu erhöhen.

Ähnliche Versuche wurden in Japan mit 4-stufigen Hubkolbenpumpen durchgeführt [3-50], wobei diese Pumpen z.T. auch mit magnetgelagerten Turbomolekulpumpen kombiniert wurden. Auch dabei ergaben sich unerwartet große Unterschiede im Saugvermögen für N₂ einerseits und H₂, D₂ und He andererseits, so daß weitere Versuche zur Optimierung der Systeme erforderlich sind.

Kryosorptionspumpen sind geeignet, die beiden Hauptbestandteile des Plasmaabgases, nämlich Helium und die Wasserstoffisotope, mit hohem Saugvermögen abzupumpen und beide Elemente bei der stufenweise erfolgenden Erwärmung (Regenerierung) zu trennen. In Los Alamos/USA wurden Kryosorptionspumpen unterschiedlicher Konstruktion bzgl. ihres Saugvermögens und ihrer Beladungskapazität verglichen [3-51]. Die erzielten Ergebnisse für die reinen Gase entsprachen dabei den Spezifikationen für die in Planung befindlichen Großexperimente NET/ITER. Bei H₂/He- bzw. D₂/He-Mischungen kam es jedoch nach relativ kurzen Betriebszeiten zu einem starken Abfall der Saugleistung [3-52], dessen Ursache bisher noch unklar ist. Verbesserungen werden von einem veränderten Pumpenkonzzept erwartet [3-53], bei dem während der Regenerierungsphase verschiedene Pumpenbereiche durch einen Absperrschieber voneinander getrennt werden können.

Parallel zu diesen Arbeiten wird bei KfK eine systematische Untersuchung verschiedener Sorptionsmaterialien durchgeführt. Diese werden thermisch zykliert und bezüglich ihres Saugvermögens und ihrer Heliumspeicherkapazität getestet. Außerdem geht es um die Auswahl geeigneter Trägerwerkstoffe und Bindemittel für die Fixierung des Sorptionsmaterials auf dem Trägermaterial. Bisher wurden bereits 412 solcher Materialkombinationen untersucht [3-54] und einige der geeigneten unter realistischen Bedingungen in einer Kryopumpe getestet [3-55].

3.11.2 Einzelkomponenten für den Brennstoffkreislauf (vgl. Kap. 2.3.4)

Ein wesentlicher Aspekt des Brennstoffkreislaufes von Fusionsreaktoren besteht darin, tritiumhaltige Gasströme aus den verschiedenen Betriebsphasen des Reaktors so zu rezyklieren, daß möglichst geringe Verluste an Deuterium und Tritium in Form von gasförmigen Emissionen oder fest/flüssigen Abfällen auftreten. Dabei soll aus Sicherheitsgründen in jedem Einzelprozeß nur eine bestimmte Maximallmenge an Tritium gehandhabt werden. Die folgenden Ausführungen beschränken sich auf die Beschreibung einiger Komponenten des Brennstoffreini-

gungssystems, die auch im Abschnitt über integrale Prozesse eine wichtige Rolle spielen.

Wie bereits in Kap. 3.5.3 erwähnt, werden Pd/Ag-Permeatoren verwandt, um elementaren Wasserstoff und seine Isotope in ultra-reiner Form aus Gasen verschiedener Zusammensetzung abzutrennen. Für fusionsrelevante Verunreinigungen wie N₂, CO, Q₂O oder CQ₄ (Q = H, D, T) wurde festgestellt, daß diese die Wasserstoffpermeation nicht beeinflussen, wenn die Betriebstemperatur des Permeators mindestens 300 °C beträgt [3-56]. Ein gewisser Anteil des Wasserstoffs verläßt den Permeator jedoch, ohne abgetrennt zu werden. Ein wichtiges Ziel weiterer Entwicklungsarbeiten besteht daher in der Reduzierung dieses sog. Bleed-Anteils. Außerdem sind Langzeitversuche durchzuführen, um die Einflüsse des Tritiumzerfalls und einer möglicherweise "schleichend" auftretenden Vergiftung durch Verunreinigungen zu ermitteln. Solche Versuche werden z.Z. bei JAERI in Japan [3-57] durchgeführt und ab 1992 mit einem anderen Permeatortyp auch im TLK, dem Tritiumlabor Karlsruhe [3-58].

Die Verwendung von Getterbetten (Vergl. Kap. 3.5.2) bietet die Möglichkeit, gasförmige Verunreinigungen durch Adsorption und Chemiesorption am Gettermaterial direkt aus dem Gasstrom zu entfernen. Bei Temperaturen im Bereich von 400 - 900 °C werden nicht nur die Moleküle der Gaskomponenten O₂, N₂, CO und CO₂ zurückgehalten, sondern auch die wasserstoffhaltigen Verbindungen wie Q₂O, NQ₃ und CQ₄ zersetzt. Die O-, N-, C-Anteile dieser Verbindungen werden dabei an das Gettermaterial gebunden, während die Wasserstoffisotope zusammen mit dem molekularen Wasserstoff und Helium im Gasstrom verbleiben.

Für das TLK wurde ein Tritiumreinigungssystem aus drei Urangetterbetten entwickelt, die bei 500, 700 und 900 °C arbeiten [3-59]. In Experimenten mit Wasserstoff und simulierten Verunreinigungen konnte gezeigt werden, daß sich letztere bis auf Restkonzentrationen < 1 ppm reduzieren lassen. Weitere Untersuchungen haben zum Ziel, Gettermaterialien zu finden, die ähnlich gute Reinigungseigenschaften schon bei geringeren Temperaturen aufweisen [3-60]. Ferner geht es darum, Getter auch zur Rückgewinnung von Tritium aus tritiertem Wasser zu verwenden [3-61].

Zur Rückhaltung von Verunreinigungen können auch Molekularsiebe (Typ 5A Zeolith) bei Temperaturen im Bereich von 70 - 160 K verwendet werden. Hierzu sind Versuchsprogramme bei der CEA in Frankreich [3-62] sowie bei TSTA in USA [3-63] und KfK im Gange.

Wie in Kapitel 3.6 beschrieben, haben die Systeme zur Isotopentrennung die Aufgabe, die Wasserstoffisotope zu trennen, um sie für die Brennstoffversorgung

und die Neutralteilcheninjektion verfügbar zu machen. Als Trennmethoden für den Einsatz in Fusionsanlagen kommen in Frage:

- die gaschromatographische Verdrängungsmethode und
- die Kryodestillation.

Bei JET sollen beide der Methoden zum Einsatz kommen [3-64]. Die Kryodestillation wird bereits seit längerem bei Ontario Hydro in Kanada angewendet [3-65], um Tritium aus D₂O zu entfernen (vgl. Kap. 2.2.2). Sie ist auch für die Isotopen-trennung bei ITER geplant, nachdem sie bei TSTA inzwischen mit Tritiummengen bis zu 100 g erprobt wurde. Für beide Methoden sind jedoch weitere Entwick-lungsarbeiten zur Handhabung von Gasströmen unterschiedlicher Zusammenset-zung und zur Vermeidung von Störeinflüssen durch Verunreinigungen erforder-lich.

3.11.3 Entwicklung integraler Prozesse zur Brennstoffreinigung

Im Rahmen der ITER-Planung werden zur Zeit zwei Prozesse als wichtigste Alter-nativen angesehen:

- Das in Kapitel 3.5.1 beschriebene TSTA-Verfahren [3-63], bei dem Molekular-siebbetten zur Adsorption der Verunreinigungen und Membranreaktoren zur katalytischen Oxidation verwendet werden, und
- das KfK-Verfahren, das mit einer Kombination von Permutationsfiltern und Ka-talysatoren arbeitet (vgl. Kap. 3.5.3) [3-66].

Beide Prozesse wurden auf der Basis langjähriger Grundlagenuntersuchungen entwickelt und in allen Einzelheiten mit Wasserstoff getestet.

Eine abschließende Bewertung dieser Verfahren wird erst möglich sein, wenn sie im Tritiumlabor mit Tritium ausgetestet sind. Entsprechende Versuche haben im TSTA begonnen und werden im TLK voraussichtlich Ende 1992 aufgenommen.

3.12 Zusammenfassung

Die in diesem Kapitel beschriebene Tritiumtechnologie bezieht sich im wesentli-chen auf die typischen verfahrenstechnischen Prozesse des Brennstoffkreislaufes von Fusionsreaktoren. Spezielle Technologien, wie sie im militärischen Bereich oder im zivilen Bereich (Uhrenindustrie) Verwendung finden, werden nicht be-schrieben.

Wichtige Aspekte des Fusionsbrennstoffkreislaufes sind sicherer Einschluß, Lagerung und Transfer von Tritium, Reinigung und Trennung tritiumhaltiger Isotopengemische sowie Dekontamination und Entsorgung tritiumhaltiger Abfälle. Das Kapitel zur Tritiumtechnologie wird ergänzt durch Ausführungen zur Tritiummeßtechnik und -bilanzierung, die erforderlich sind, um den Verbleib des Tritiums innerhalb verfahrenstechnischer Systeme aus betriebstechnischen Gründen, aus Gründen der Wirtschaftlichkeit, des Strahlenschutzes und auch der Proliferation festzuhalten.

Das Kapitel schließt mit einem Ausblick auf die notwendige Weiterentwicklung und Skalierung von Komponenten und Systemen im Rahmen laufender Forschungsprogramme zur Tritiumtechnologie der Kernfusion.

3.13 Literatur zu Kapitel 3

- [3-1] International Atomic Energy Agency,
Safe Handling of Tritium, Review of Data and Experience,
IAEA Technical Reports Series No. 324, Vienna, 1991.
- [3-2] R. D. Penzhorn, M. Devillers, E. Willin, M. Sirch,
Evaluation of Getter for the Interim Storage of Tritium,
Fusion Technology, Proc. 16th Symp. on Fusion Technol.,
London, September 3-7, p.694 1990.
- [3-3] E.C. Kerr, J.K. Bartlit, R.H. Sherman,
Fuel Cleanup System for the Tritium System Test Assembly: Design and Experiments,
Proceedings: Tritium Technology in Fission, Fusion and Isotopic Application,
ANS National Topical Meeting, Dayton, Ohio, April 29 - May 1, 1980.
- [3-4] G. Neffe , E. Hutter,P. Schira , U. Tamm,
Development Work for the Tritium Cleanup System of the Tritium Laboratory Karlsruhe,
Proceedings of the 15th Symposium on Fusion Technology, Utrecht 19-23 September, 1988.
- [3-5] M. Glugla , R.-D. Penzhorn , R. Rodriguez., D. Herbrechter,
Design of a Catalytic Plasma Exhaust Gas Clean-up Facility for NET II,
NET-Report Nr. 88/173, June 1990.
- [3-6] G. P. Pautrot, J.P. Arnauld,
The Tritium Extraction Plant of the Laue Langevin Institute,
American Nuclear Society 20 (1975) 202.
- [3-7] W.J. Holtslander, T. E. Harrison, J. D. Gallagher,
The Chalk River Tritium Extraction Plant; Construction and Early Commissioning,
Proceedings: 3rd Topical Meeting for Tritium Technology in Fission, Fusion and Isotopic
Applications, Toronto, Ontario, May 1-6,1988.
- [3-8] J. R. Bartlit, W. H. Denton, R. H. Sherman ,
Hydrogen Isotope Distillation for the Tritium Systems Test Assembly,
Proceedings: 3rd Topical Meeting on the Technology of Controlled Nuclear Fusion, vol. 2,
Santa Fe, New Mexico, May 9-11 1978.

- [3-9] T. Hirabayashi, M. Saeki,
Sorption of Gaseous Tritium on the Surface of Type 316 Stainless Steel,
Journal of Nuclear Materials 120 (1984) 309 - 315.
- [3-10] T. Hirabayashi, M. Saeki, E. Tachikawa,
Chemical Decontamination of the Tritium-Sorbing Surface of Type 316 Stainless Steel,
Journal of Nuclear Materials 136 (1985) 179.
- [3-11] T. Hirabayashi, M. Saeki, E. Tachikawa,
A Thermal Desorption Study of the Surface Interaction between Tritium and Type 316
Stainless Steel,
Journal of Nuclear Materials 126 (1984) 38.
- [3-12] T. Hirabayashi, M. Saeki, E. Tachikawa,
Effect of Surface Treatments on the Sorption of Tritium on Type 316 Stainless Steel,
Journal of Nuclear Materials 127 (1985) 187.
- [3-13] N. M. Masaki, T. Hirabayashi, M. Saeki,
Study on Sorption of Tritium on Various Material Surfaces and its Application to Deconta-
mination of Tritium-Sorbing Materials,
Fusion Technol. 15 (1989) 1337.
- [3-14] P. Boutot, P. Schipfer,
Essais de decontamination de material contamine par du tritium,
Rapport CEA-R 3312, December 1967.
- [3-15] A. Tesini, R. A. Jalbert,
Experimental Contamination and Decontamination Studies on Jet Remote Handling Tools
and Materials when exposed to Tritium,
Unpublished report, JET Joint Undertaking, Fusion Technology Division, Remote Hand-
ling Application Group, 19
- [3-16] R. E. Ellefson, C. N. Lindsay, E. E. Johns,
Measurement and Prediction of Tritium Holdup,
Fusion Technol. 14 (1988) 1036.
- [3-17] R. E. Ellefson, J. T. Gill,
Tritium Inventory Differences: I. Sampling and U-Getter Pumps Holdup,
Nucl. Mater. Manag. 15 (1986) 89.
- [3-18] J. T. Gill, R. E. Ellefson, W. M. Rutherford,
Tritium Inventory Differences: II. Molecular Sieve Holdup,
Nucl. Mater. Manag. 15 (1986) 94 .
- [3-19] S. Tanaka, F. Ono, Y. Takahashi, R. Kiyose,
Removal of Tritiated Water Vapor by Adsorption on Molecular Sieves - Effects of Co-
Existing H₂O,
Fusion Technol. 8 (1985) 2196.
- [3-20] S. Tanaka, R. Kiyose,
Catalytic Oxidation of Tritium-Effect of Isotopic Swamping,
Proceedings: Tritium Technology in Fission, Fusion and Isotopic Applications, American
Nuclear Society National Topical Meeting, , CONF-800427, 404 - 410, Dayton, Ohio, 1980.
- [3-21] Deutsche Gesellschaft zum Bau und Betrieb von Endlagern für Abfallstoffe mbH (DBE),
Planung und Bau einer Demonstrationsanlage zur Versenkung tritiumhaltiger Abwässer,
(KWA 5230 9) Abschlußbericht 1986.

- [3-22] F. Mannone,
Fusion Technology and Safety Management of Tritium-Contaminated Wastes. A Survey of Alternative Options,
EUR-12526 EN, 1989.
- [3-23] International Atomic Energy Agency,
Handling of Tritium-Bearing Wastes,
IAEA Technical Reports Series No. 203, Vienna 1981.
- [3-24] Kernforschungszentrum Karlsruhe,
Bedingungen für die Abgabe von radioaktiven Stoffen an die Hauptabteilung Dekontaminationsbetriebe,
KfK Bericht, Ausgabe 6 vom 1. Juli, 1991.
- [3-25] Bundesamt für Strahlenschutz,
Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle - Schachtanlage Konrad -
(Vorläufige Endlagerungsbedingungen, Stand April 1990),
BfS Bericht ET-3/90-REV-1, Juli, 1991.
- [3-26] L.S. Krochmalnek,
Conditioning and Handling of Tritiated Wastes at Canadian Nuclear Power Facilities,
Am. Chem. Soc. Annual Meeting, Denver, Colorado, April 5-10, 1987.
- [3-27] P. Brennecke, B. R. Martens,
Endlagerungsbedingungen und Produktkontrolle,
Bundesamt für Strahlenschutz, Bericht ET-10/91, Juli, 1991.
- [3-28] P. Brennecke, J. Schumacher,
Radioaktive Abfälle in der Bundesrepublik Deutschland,
Atomwirtschaft, November 1990.
- [3-29] T. Florkowski,
Low Level Tritium Assay in Water Samples by Electrolytic Enrichment and Liquid Scintillation Counting in the IAEA Laboratory,
IAEA SM.255/63, Berlin, 6-10 April, 1981.
- [3-30] C. A. Colmenares,
Bakeable Ionization Chamber for Low-Level Tritium Counting Nuclear Instr. & Methods 114 (1974) 269.
- [3-31] M. Matsuyama, K. Watanabe,
A Small Ionization Chamber Appropriate to Tritium Processing Systems,
Fusion Eng. & Design 18 (1991) 91.
- [3-32] D. H. W. Carstens, W. R. David,
An Ionization Chamber for Measurements of High-Level Tritium Gas,
Proceedings: Tritium Technology in Fission, Fusion and Isotopic Applications,
CONF - 800 427, Dayton, Ohio, April 29 - May 1, 1980.
- [3-33] H. Kapulla, R. Kraemer, R. Heine,
Tritium Inventory Measurements using Calorimetry,
Fourth Topical Meeting on Tritium Technology in Fission, Fusion and Isotopic Applications, Albuquerque, New Mexico, USA, Sept. 29 - Oct. 4, 1991.
- [3-34] Tritium Control Technology,
Wash - 1269, Monsanto Research Corporation, Mound Laboratory, December 1973.

- [3-35] T. Genka, K. Kobayashi, S. Hagiwara,
A Calorimeter for the Measurement of the Activity of Tritium and other Pure β -Emitters,
Appl. Radiat. Isot. 38, 10 (1987) 845.
- [3-36] C. A. Colmenares, E. G. Shapiro, P. E. Shapiro, P. E. Barry, C. T. Prevo,
A Europium-Doped, Calcium-Fluoride Scintillator System for Low Level Tritium Detection,
Nuclear Instr. & Methods 114 (1974) 277.
- [3-37] M. Matsuyama, H. Nakatani, K. Watanabe,
In-situ Measurement of Tritium Partial Pressure by Bremsstrahlung Counting Method,
Fusion Eng. Design 10 (1989) 405.
- [3-38] R. E. Ellefson,
Isotopic Analysis of Hydrogen - Helium Mixtures,
Proceedings: Tritium Technology in Fission, Fusion and Isotopic Applications, WNF-800
427, Dayton, Ohio, April 29 - May 1, 1980.
- [3-39] VG Gas Analysis, Cheshire, England.
- [3-40] C. Genty, R. Schott,
Quantitative Analysis for the Isotopes of Hydrogen - H₂, HD, HT, D₂, DT and T₂ - by Gas Chromatography,
Anal. Chem. 42 (1970) 7.
- [3-41] U. Engelmann, M. Glugla, R.-D. Penzhorn, H. J. Ache,
Application of an Operation Type High Resolution Mass Spectrometer for the Analysis of Mixtures of Hydrogen and Helium Isotopes,
Nucl. Instruments and Methods in Phys. Res. A 302 (1991) 345.
- [3-42] D. K. Veirs, G. M. Rosenblatt,
Raman Line Positions in Molecular Hydrogen: H₂, HD, D₂, DT and T₂,
J. Molecular Spectroscopy 121 (1987) 401.
- [3-43] U. Engelmann, M. Glugla, R.-D. Penzhorn, H. J. Ache,
Laser Raman Spectroscopy and Omegatron Mass Spectrometry Applied to Investigations of the Radiochemical Reactions between Methane and Tritium,
4th Topical Meeting on Tritium Technology in Fission, Fusion and Isotopic Applications, Albuquerque, New Mexico, Sept. 29 - Oct 4, 1991.
- [3-44] P. C. Souers, E. M. Fearon, R. K. Stump and R. T. Tsugawa,
Infrared Analysis of Liquid and Solid D-T,
Fusion Technol. 14 (1988) 850.
- [3-45] I. Kanesaka, M. Tsuschida, K. Kawai, T. Takeuchi,
The IR Spectrum of T₂¹⁸O,
I. Molec. Spectroscopy 104 (1984) 405.
- [3-46] V. B. Addepalli, n. R. Rao,
Infrared Intensity Analysis of Molecules: Part I CH₂D₂, CH₂T₂ & CD₂T₂ and CH₄, CD₄ & CT₄,
Indian Journal of Pure and Applied Physics 14 (1976) 117.
- [3-47] P. Helminger, F. C. de Lucia, W. Cordy
Millimeter- and Submillimeter-Wavelength Spectra and Molecular Constants of HTO and DTO,
Phys. Rev. A 10 (1974) 1072.

- [3-48] International Atomic Energy Agency,
Regulations for the Safe Transport of Radioactive Materials, Revised Edition,
IAEA Safety Series No. 6, Vienna, 1979.
- [3-49] U. Berndt, T. L. Le, E. Kirste, M. Glugla, R.-D. Penzhorn,
Performance Characteristics of Large Scroll Pumps,
Fusion Eng. Design, 18 (1991) 73.
- [3-50] T. Hayashi, S. Konoshi, M. Yamada, Y. Matsuda, M. Inoue, T. Nakamura, T. Tanaga,
Y. Naruse, K. Okuyama,
Development of a large Oil-free Roughing Pump for Tritium Service,
9th Topical Meeting on Technol. of Fusion Energy, Oak Brook, III. Oct. 7-11, 1990.
- [3-51] J. L. Anderson, E. M. Jenkins, C. R. Walthers,
Tritium Handling Experience in Vacuum Systems at TSTA
Vacuum 41 (1990) 1983.
- [3-52] C. Walthers, D. Sedgey, T. Batzer, D. Lang, D. Hathaway, H. Fukai, K. Okuno,
N. Enoeda, T. Ide, Y. Naruse,
Co-Pumping of Deuterium-Helium and Tritium-Helium Mixtures at TSTA,
13th Symposium on Fusion Engineering, Knoxville, TN, Oct. 2-6, 1989.
- [3-53] M. Enoeda, H. Fukai, T. Ide, K. Okuno, Y. Naruse, J. L. Anderson, J. R. Bartlit, R. H. Sherman, R. S. Willms,
Separation of Helium and Hydrogen Isotopes,
13th Symposium on Fusion Engineering, Knoxville, TN, Oct. 2-6, 1989.
- [3-54] H. Haas, A. Mack, D. Perinic,
Experimental Investigations into Helium Cryosorption on Porous Solids,
16th Symposium on Fusion Technol., London, Sept. 3-7, 1990.
- [3-55] D. Perinic, H. Haas, A. Mack,
Development of Cryosorption Panels for Plasma Exhaust Cryopumping,
Fusion Eng. Design 18 (1991) 79.
- [3-56] M. Glugla, R. -D. Penzhorn, R. Rodriguez, D. Herbrechter, P. Dinner, D. Murdoch,
Evaluation of Concepts for a NET Plasma Exhaust Clean-up System,
KfK-Report 4742, 1990.
- [3-57] S. Konishi, M. Inoue, T. Hyashi, K. Okuno, Y. Naruse, J. Barnes, J. L. Anderson,
Development of the JAERI Fuel Clean Up System for Tests at the Tritium Systems Tests Assembly,
9th Topical Meeting on the Technol. of Fusion Energy, Oak Brook, III. Oct. 7-11, 1990.
- [3-58] R. -D. Penzhorn,
The PETRA Experiment: Description and Safety Assessment of a Long-Term Permeator Performance Test,
to be published.
- [3-59] U. Tamm, E. Hutter, G. Neffe,
Experiments on the Development of Tritium Clean-up System by the Getter Method for Use in the Tritium Laboratory Karlsruhe,
16th Symp. on Fusion Technology, London, Sept. 3-7, 1990.

- [3-60] H. Albrecht, U. Kuhnes, W. Asel,
Application of SAES and HWT Gas Purifiers for the Removal of Impurities from Helium/Hydrogen Gas Mixtures,
J. Less Common Metals 72-74 (1991).
- [3-61] J. L. Hemmerich, A. Dombra, C. Gordon, E. Groskopfes, A. Konstantellos,
The Impurity Processing Loop for the JET Active Gas Handling System,
Fusion Technol. 14 (1988) 557.
- [3-62] B. Hircq,
Tritium Tasks for the NET Fusion Technology Program,
Report CEA-N-2644, Oct.1990.
- [3-63] R. S. Willms,
Fusion Fuel Purification during the Tritium Systems Test Assembly 3-Week Loop Experiment,
13th Symp. on Fusion Engineering, Knoxville, TN, Oct.2-6, 1989.
- [3-64] F. Botter, J. Gowman, J. L. Hemmerich, B. Hircq, R. Lässer, D. Lèger, S. Tistchenko,
M. Tschudin,
The Gas Chromatographic Isotope Separation System for the JET Active Gas Handling Plant,
Fusion Technol. 14. (1988) 562.
- [3-65] C. H. Cheh,
Large Scale Gas Chromatographic Demonstration System for Hydrogen Isotope Separation,
Fusion Technol. 14 (1988) 567.
- [3-66] a) R.-D. Penzhorn, M. Glugla,
Behandlung der Abgase für NET II,
KfK-Nachrichten 21 (1989) 273.
b) M. Glugla, R.-D. Penzhorn, R. Rodriguez, D. Herbrechter,
Design of a Catalytic Plasma Exhaust Gas Clean-up Facility for NET II, Final Report
322/88-8/FU-D (NET No. 88-173) 1990.

4. Tritiumfreisetzung

W. Kramer

Bevor Aussagen über die zu erwartenden Freisetzung aus Fusionsanlagen gemacht werden, erscheint es angebracht, aus Vergleichsgründen zunächst einen Überblick über die Freisetzung von Tritium aus bestehenden kerntechnischen Anlagen zu geben. Von Interesse sind hierbei insbesondere Spaltungsreaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen.

4.1 Freisetzung aus bestehenden Einrichtungen im Normalbetrieb

Die bei Spaltungsreaktoren im Normalbetrieb produzierten Tritiummengen sind vom Typ des Reaktors abhängig (vergl. Kap. 2.1.3). Die Höhe der Produktion und die anlagentechnischen Gegebenheiten beeinflussen die in die Umgebung freigesetzten Tritiummengen. Zur Veranschaulichung sind in Tabelle 4-1 die auf die erzeugte Strommenge bezogenen Tritiumfreisetzung für verschiedene Reaktortypen dargestellt. Diese Daten sind [4-1] entnommen und basieren auf freigesetzten Tritiummengen in den Jahren 1978 - 1983.

Anlagentyp	Tritiumableitung [TBq/GW _(e) · a]	
	mit dem Abwasser	mit der Fortluft
Siedewasserreaktoren	4	1,1
Druckwasserreaktoren	20	1,5
Gasgekühlte Reaktoren	14	keine Angaben
Fortgeschrittene gasgekühlte Reaktoren	300	6,5

Tab. 4-1: Normierte Tritiumfreisetzung in TBq/GW(e) · a von Kernkraftwerken der EG [4-1]

Zu ähnlichen, jedoch etwas geringeren Werten gelangt man mit neueren Daten aus deutschen Kernkraftwerken nach [4-2]. Die Tabelle 4-2 zeigt diese Werte, gerundet und umgerechnet auf TBq/GW_(e) · a.

Anlagentyp	Tritiumableitung [TBq/GW _(e) · a]	
	mit dem Abwasser	mit der Fortluft
Siedewasserreaktor	1,1	0,3
Druckwasserreaktor	14	1

Tab. 4-2: Normierte Tritiumableitungen in TBq/GW_(e) · a von deutschen Kernkraftwerken als gerundete Mittelwerte in den Jahren 1984 - 1988 [4-2].

Aus den angegebenen Daten ist ersichtlich, daß bei Spaltungsreaktoren die Tritiumableitungen mit dem Abwasser deutlich größer sind als die Ableitungen mit der Fortluft. Dies trifft jedoch nicht zu für die hier nicht aufgeführten Schwerwasserreaktoren (CANDU).

Ebenfalls in [4-2] sind zum Vergleich jährliche Mittelwerte der Ableitungen für Kernkraftwerke mit Druckwasserreaktoren verschiedener Länder angegeben. Diese Werte sind - umgerechnet auf TBq/GW_(e) · a - in Tabelle 4-3 dargestellt.

Land	Tritiumableitung [TBq/GW _(e) · a] mit dem Abwasser	Jahr
BRD	14	1984 - 1988
Frankreich	26,3	1984 - 1987
Japan	20,2	1984 - 1987
Schweden	26,3	1984 - 1988
USA	24,6	1980 - 1982

Tab. 4-3: Normierte jährliche Mittelwerte der Tritiumableitung in TBq/GW_(e) · a für Druckwasserreaktoren in verschiedenen Ländern [4-2]

Ergänzend zu den Angaben in Tab. 4-1 bis 4-3 sind in Tab. 4-4 durchschnittliche normierte Tritiumableitungen für verschiedene Reaktortypen im Fünfjahreszeitraum von 1980 - 1984 dargestellt.

Anlagentyp	Tritiumableitung [TBq/GW _(e) · a]	
	mit dem Abwasser	mit der Fortluft
Siedewasserreaktoren	2,1 ± 0,5	3,4 ± 1,6
Druckwasserreaktoren	27 ± 1,8	5,9 ± 2,4
Gasgekühlte Reaktoren	96 ± 13	5,4 ± 0,9
Schwerwasserreaktoren	290 ± 68	670 ± 190

Tab. 4-4: Normierte Tritiumfreisetzung für unterschiedliche Reaktortypen aus verschiedenen Ländern im Zeitraum von 1980 - 1984 [4-3]

Diese Werte sind dem UNSCEAR Report 1988 [4-3] entnommen und beziehen sich im wesentlichen auf Anlagen in Belgien, Deutschland, Finnland, Frankreich, den Niederlanden, Schweden und den Vereinigten Staaten von Amerika für Druck- und Siedewasserreaktoren, Frankreich und Großbritannien für gasgekühlte Reaktoren sowie Argentinien und Kanada für Schwerwasserreaktoren.

Eine sehr detaillierte Übersicht mit neueren Zahlen über die Aktivitätsableitung von deutschen Kernkraftwerken in den Jahren 1988 und 1989 ist in Tabelle 4-5 zusammengestellt. Die Angaben sind [4-4] und [4-5] entnommen.

Die abgeleiteten Mengen liegen in der Regel deutlich unterhalb der Genehmigungswerte. So erreichte zum Beispiel die Tritiumableitung über das Abwasser im Jahr 1989 Werte für den Reaktor Biblis A von 13,3 TBq, Biblis B von 11,8 TBq bei einem Genehmigungswert von jeweils 29,6 TBq [4-6]. Für Philippsburg 2 wurden 21 TBq bei einem Genehmigungswert von ca. 47 TBq und bei GKN-2 Neckar 7,8 TBq bei einem Genehmigungswert von 70 TBq abgeleitet [4-7].

Werte für die Freisetzung von Tritium aus kanadischen Schwerwasser-Kernkraftwerken des CANDU-Typs sind in Tabelle 4-6 aufgelistet (entnommen aus [4-8] mit freundlicher Genehmigung des "Canadian Fusion Fuels Technology Project"). Hierbei sind die Ableitungen für vier Stationen über den Zeitraum 1978 - 1982 gemittelt. Wenn die Tritiumableitungen auf die erzeugte Strommenge bezogen werden (z.B. in TBq/GW_(e) · a), ist eine drastische Reduktion in der Ableitung der neueren großen Mehrblock-Anlagen festzustellen. Neuere Angaben und Vergleiche mit den 1984 bzw. 1985 in Betrieb genommenen Anlagen Pickering B und Bruce B zeigen eine weitere Reduktion der jährlichen Tritiumableitungen infolge der weiter entwickelten Technologie.

Die Ableitung von Tritium aus Wiederaufarbeitungsanlagen ist in Tabelle 4-7 für den Zeitraum 1976 - 1985 dargestellt. Diese Daten sind, soweit vorhanden, [4-1 und 4-3] entnommen.

Kernkraftwerk	Tritiumableitung [Bq]			
	mit dem Abwasser		mit der Fortluft	
	1988	1989	1988	1989
<u>Siedewasserreaktoren</u>				
Kahl a)	$3,3 \cdot 10^9$	$5,4 \cdot 10^8$	keine Angaben	keine Angaben
Gundremmingen A b)	d)	d)	$6,9 \cdot 10^9$	$3,5 \cdot 10^9$
Würgassen	$4,1 \cdot 10^{11}$	$9,6 \cdot 10^{11}$	$6,6 \cdot 10^{11}$	$9,2 \cdot 10^{11}$
Lingen b)	keine Angaben	keine Angaben	$7,7 \cdot 10^7$	$1,3 \cdot 10^8$
Brunsbüttel	$5,1 \cdot 10^{11}$	$2,7 \cdot 10^{11}$	$1,5 \cdot 10^{11}$	$1,4 \cdot 10^{11}$
Isar 1	$8,1 \cdot 10^{11}$	$5,1 \cdot 10^{11}$	$3,2 \cdot 10^{11}$	$4,1 \cdot 10^{11}$
Philippsburg 1	$5,5 \cdot 10^{11}$	$4,8 \cdot 10^{11}$	$5,1 \cdot 10^{10}$	$6,9 \cdot 10^{10}$
Krümmel	$8,8 \cdot 10^{11}$	$6,9 \cdot 10^{11}$	$2,3 \cdot 10^{11}$	$1,0 \cdot 10^{11}$
Gundremmingen (Block B und C)	$1,2 \cdot 10^{12}$	$1,5 \cdot 10^{12}$	$1,4 \cdot 10^{11}$	$2,2 \cdot 10^{11}$
<u>Druckwasserreaktoren</u>				
Obrigheim	$3,8 \cdot 10^{12}$	$4,4 \cdot 10^{12}$	$1,6 \cdot 10^{11}$	$1,6 \cdot 10^{11}$
Stade	$6,0 \cdot 10^{12}$	$4,6 \cdot 10^{12}$	$7,6 \cdot 10^{11}$	$8,2 \cdot 10^{11}$
Biblis A	$1,1 \cdot 10^{13}$	$1,3 \cdot 10^{13}$	$2,4 \cdot 10^{11}$	$6,4 \cdot 10^{11}$
Biblis B	$1,3 \cdot 10^{13}$	$1,2 \cdot 10^{13}$	$4,3 \cdot 10^{11}$	$3,3 \cdot 10^{11}$
Neckarwestheim 1	$7,4 \cdot 10^{12}$	$1,0 \cdot 10^{13}$	$6,1 \cdot 10^{11}$	$6,7 \cdot 10^{11}$
Unterweser	$1,2 \cdot 10^{13}$	$1,5 \cdot 10^{13}$	$1,3 \cdot 10^{12}$	$7,6 \cdot 10^{11}$
Grafenrheinfeld	$1,4 \cdot 10^{13}$	$1,4 \cdot 10^{13}$	$5,0 \cdot 10^{11}$	$4,7 \cdot 10^{11}$
Grohnde	$1,3 \cdot 10^{13}$	$1,3 \cdot 10^{13}$	$5,8 \cdot 10^{11}$	$4,5 \cdot 10^{11}$
Philippsburg 2	$1,3 \cdot 10^{13}$	$2,1 \cdot 10^{13}$	$1,1 \cdot 10^{12}$	$1,1 \cdot 10^{12}$
Mülheim-Kärlich	$1,0 \cdot 10^{13}$	$1,7 \cdot 10^{12}$	$5,2 \cdot 10^{11}$	$3,0 \cdot 10^{11}$
Brokdorf	$9,4 \cdot 10^{12}$	$1,3 \cdot 10^{13}$	$1,8 \cdot 10^{11}$	$1,4 \cdot 10^{11}$
Isar 2	$1,8 \cdot 10^{12}$	$7,1 \cdot 10^{12}$	$2,2 \cdot 10^{11}$	$4,3 \cdot 10^{11}$
Emsland	$1,7 \cdot 10^{12}$	$1,3 \cdot 10^{13}$	$2,3 \cdot 10^{11}$	$4,8 \cdot 10^{11}$
Neckarwestheim 2 c)	-	$7,8 \cdot 10^{12}$	-	$3,3 \cdot 10^{11}$
Hochtemperaturreaktor				
Hamm-Uentrop	$8,9 \cdot 10^{11}$	$2,2 \cdot 10^{10}$	$3,5 \cdot 10^{12}$	$3,0 \cdot 10^{12}$

a) Stillstand seit Nov. 1985

b) Stillstand seit Januar 1977

c) Inbetriebnahme 1989

d) Geringfügige Abgaben in Werten für Block B + C enthalten

Tab. 4-5: Tritiumableitung in Bq von deutschen Kernkraftwerken in den Jahren 1988 und 1989 [4-4, 4-5]

Kernkraftwerk	Inbetriebnahme	Leistung [MW _(e)]	Tritiumableitung [TBq/a]	
			mit dem Abwasser	mit der Fortluft
NPD Rolphton	1962	25	159,1	647,5
Douglas Point GS	1968	218	103,6	344,1
Pickering GS A	1971	4 x 542	740	814
Bruce GS A	1977	4 x 826	666	1665

Tab. 4-6: Über den Zeitraum 1978 - 1982 gemittelte Tritiumableitungen von CANDU-Kernkraftwerken [4-8]

Anlage	Grenzwert [TBq/a]	1976	1977	1978	1979	1980	1981	1982	1983	1984	1985
		Ableitung mit dem Abwasser [TBq]									
WAK	170 (a)	110	89	47	78	36	<3				
La Hague	37000 (b)	260	330	728	539	539	708	810	1160	1460	2590
Marcoule (c)	2500 (d)		120	269	297	414					
Dounreay (c)		3,9	1,1	13,2	1,1	13,0	2,8	6,7	2,3	0,8	
Sellafield		1200	920	1050	1180	1280	1966	1750	1831	1586	1062
Ableitung mit der Fortluft [TBq]											
WAK	37 (e)	3,8	7,0								
La Hague	2200 (b)	1,8	11,1	1,14	7,14	9,18	9,9	6,3	8,1	8,5	31,8
Marcoule	10000 (d)	4,4	2,8	63,3	70,7	80,4					
Sellafield	(f)	440	300	289	252	459	360	268	349	268	

- a) Seit 1983 für alle Ableitungen aus KfK incl. WAK
- b) Grenzwert eingeführt am 22.10.80
- c) Kann Beiträge von anderen Anlagen am Standort enthalten
- d) Grenzwert eingeführt am 20.5.81
- e) Genehmigungswert
- f) Kein quantifizierter Grenzwert

Tab. 4-7: Jährliche Ableitung von Tritium mit dem Abwasser und der Fortluft von Wiederaufarbeitungsanlagen [4-1, 4-3]

In [4-3] sind normierte Tritiumableitungen für die Anlagen Sellafield und Cap de la Hague im Zeitraum 1980 - 1985 angegeben. Sie belaufen sich auf folgende Werte:

- Sellafield: $579 \pm 35 \text{ TBq/GW} \cdot \text{a}$ mit dem Abwasser
 $120 \text{ TBq/GW} \cdot \text{a}$ mit der Fortluft
- Cap de la Hague: $285,6 \text{ TBq/GW} \cdot \text{a}$ mit dem Abwasser
 $3,18 \text{ TBq/GW} \cdot \text{a}$ mit der Fortluft.

Schließlich sollen noch Werte der Tritiumabgabe aus den Forschungszentren Jülich und Karlsruhe für die Jahre 1988 bis 1991 zum Vergleich herangezogen werden; siehe Tabelle 4-8, mit Angaben, soweit aus [4-4, 4-5, 4-10 und 4-17] vorhanden.

Zentrum	Tritiumableitung in [TBq]							
	mit dem Abwasser				mit der Fortluft			
	1988	1989	1990	1991	1988	1989	1990	1991
KFA incl. AVR	1,8	0,84			14	3,7		
KfK incl. WAK	55	58	31	16	19	10	10	13
WAK allein					4,16	2,16	2,18	0,25

Tab. 4-8: Tritiumabgabe aus den Forschungszentren Jülich und Karlsruhe in den Jahren 1988 bis 1991 [4-4, 4-5, 4-10, 4-17]

Für das Kernforschungszentrum Karlsruhe werden in [4-9 und 4-10] die zulässigen Ableitungen mit den bilanzierten Tritiumableitungen, im Falle der Abgabe in die Atmosphäre aufgeschlüsselt nach den einzelnen Emittenten, für die Jahre 1988 bis 1990 verglichen. Die Ableitungen liegen immer deutlich unterhalb der zulässigen Werte.

Sehr detaillierte Angaben über die Ableitung von Tritium mit dem Abwasser und mit der Fortluft über einen Zeitraum von 1954 - 1988 sind in einem neuen Bericht der Westinghouse Savannah River Company zu finden [4-11]. Dieser Anlagenkomplex dient der Produktion von Kernwaffenmaterial, hauptsächlich von Plutonium und Tritium. Er besteht aus mehreren Kernreaktoren, zwei chemischen Trennanlagen, einer Anlage für Brennstoff- und Target-Fabrikation sowie einer Schwerwasseraufarbeitung.

Die mit dem Abwasser freigesetzte Aktivitätsmenge schwankt zwischen dem einmalig niedrigen Wert von 13,5 TBq im Jahre 1954 und dem einmalig höchsten

Wert von 3848 TBq im Jahre 1965. Ein Großteil der jährlichen Ableitungen liegt in der Größenordnung von 740 TBq/a .

Für die Ableitung in die Atmosphäre liegen die Aktivitätsabgaben zwischen dem (einmalig) niedrigen Wert von 8 TBq im Jahre 1954 und dem maximalen Wert von $8,73 \cdot 10^4 \text{ TBq}$ im Jahre 1958. Die meisten jährlichen Werte sind im Bereich von $1,1 \cdot 10^4$ bis $2,6 \cdot 10^4 \text{ TBq/a}$ zu finden.

4.2 Freisetzung aus bestehenden Einrichtungen bei Störfällen

In der Literatur ist über die störfallbedingte Freisetzung von Tritium aus kerntechnischen Anlagen wenig zu finden. Detaillierte Angaben über unbeabsichtigte, kurzfristige Freisetzungen gibt es allerdings von der Savannah-River-Anlage [4-11]. Zwei Einzelfälle davon sind auch in [4-12] erwähnt. Bei diesen wurden am 2. Mai 1974 17700 TBq und am 31. Dezember 1975 6730 TBq Tritium überwiegend in Gasform freigesetzt. Gemessen an der jeweils freigesetzten Aktivitätsmenge, haben die Freisetzungen 1974 und 1975 die höchsten Werte erreicht. Der Anteil an oxidiertem Tritium lag dabei jedoch nur bei $\leq 1\%$. Demgegenüber sind in anderen Fällen deutlich höhere HTO-Anteile, in Einzelfällen sogar bis zu 100%, zu verzeichnen. Die größte störfallbedingte Freisetzung von HTO belief sich auf 1620,6 TBq (am 7. Sept. 1984).

4.3 Tritiumfreisetzung durch Kernwaffenexplosionen

Der bei weitem größte Anteil des heute in der Biosphäre vorhandenen Tritiums stammt aus den Kernwaffenexplosionen. Es wird geschätzt, daß bis zum Jahr 1970 ca. $1,7 \cdot 10^8 \text{ TBq}$ Tritiumaktivität der Biosphäre zugeführt worden sind [4-11]. Der allmähliche Verzicht auf oberirdische Explosionen in den Folgejahren hat dazu beigetragen, diese Art der Tritiumfreisetzung zu begrenzen. Um die Größenordnung dieser militärischen Freisetzung zu verdeutlichen, sei auf die jährliche Tritiumerzeugungsrate aufgrund natürlicher Wirkungsmechanismen verwiesen. Sie wird in der neueren Literatur [4-11] mit $7,2 \cdot 10^4 \text{ TBq/a}$ angegeben. Vergl. hierzu auch Kap. 2.1.1. Die dort nach [2.3] geschätzte Tritiumproduktionsrate von $0,4 \text{ kg/a}$ entspricht $14,2 \cdot 10^4 \text{ TBq/a}$.

4.4 Erwartete Tritiumfreisetzung bei Fusionsanlagen

Das Tritiuminventar eines Fusionsreaktors verteilt sich auf drei unterschiedliche Bereiche (vgl. Kap. 2.3.4): (1) die Komponenten der Tritiumerzeugung, also insbesondere das Brutblanket und die damit verbundene Tritiumextraktionsanlage; (2) der eigentliche Brennstoffkreislauf mit Plasma, Injektoren, Divertoren und den Komponenten für die Reinigung und Aufbereitung des Brennstoffgemisches; (3) das Tritiumspeichersystem.

Im Bereich der Tritiumerzeugung mit hohen Temperaturen, aber niedrigen Tritiumpartialdrücken überwiegt die Tritiumpermeation als Mechanismus für den Verlust von Tritium aus den Systemen in die umgebenden Räume. Durch spezielle Permeationsbarrieren sollen die Verluste begrenzt werden. Für weite Bereiche des Brennstoffkreislaufs liegt Tritium vorwiegend bei niedrigen Temperaturen und bei niedrigen absoluten Drücken vor. Für Tritiumverluste sind Leckagen verantwortlich. Die Abgabe von Tritium in die Umgebung kann durch konstruktive und fertigungstechnische Maßnahmen (z.B. Doppelwandigkeit mit Leckkontrolle, Schweißverbindungen, Einsatz von Detritierungssystemen) minimiert werden. Tritium mit großer Beweglichkeit und daher mit dem Potential für eine erleichterte Freisetzung befindet sich insbesondere im Evakuierungssystem für die Plasmakammer und in denjenigen Komponenten des Brennstoffkreislaufs, in denen Tritium in Gasform vorliegt. Durch Unterteilung der verschiedenen Systeme können die Tritiumteileinventare klein gehalten werden, um nicht nur im Normalbetrieb, sondern auch bei einem Störfall die maximal in die Umgebung freisetzbare Menge zu begrenzen. Ein großer Teil des Tritiuminventars eines Reaktors ist im Speicher vergleichsweise sicher gebunden. Auch in Strukturmaterialien kann über Permeationsvorgänge Tritium eingelagert sein.

Da die Kernfusion auf der Basis der Deuterium/Tritium-Reaktion noch nicht realisiert ist und die konstruktiven Details der dafür erforderlichen Systeme noch nicht festliegen, basieren alle derzeitigen Angaben über mögliche Tritiumfreisetzungen auf Schätzungen und Extrapolationen, z.B. aus der Technologie der Schwerwasserreaktoren.

Aus diesen großtechnischen Erfahrungen wird z.B. in [4-13] angenommen, daß im Normalbetrieb eines Fusionsreaktors etwa 2 Gramm Tritium pro Jahr (710 TBq/a) mit der Fortluft über den Kamin abgeleitet werden. Dies entspricht einer mittleren täglichen Ableitung von etwa 2 TBq/d. Die Tritiumableitung eines Fusionsreaktors über das Abwasser wird auf 0,15 g/a (ca. 50 TBq/a) geschätzt [4-14].

Die wohl aktuellsten Schätzungen über Tritiumfreisetzung liegen für das ITER-Projekt auf der Basis einer Tokamak-Maschine vor [4-15]. Die Angaben beruhen auf sicherheitstechnischen Studien des ITER-Teams zum derzeitigen ITER-Konzeptentwurf unter Berücksichtigung der tritiumführenden Systeme sowie sicherheitstechnischer Prinzipien, wie z.B. das Konzept der Mehrfachbarrieren.

In der ITER-Studie wird davon ausgegangen, daß im Normalbetrieb die Ableitung von Tritium in die Atmosphäre einen Wert von $3,7 \cdot 10^{11}$ Bq/d nicht überschreitet. Entsprechende Angaben über die Ableitung von Tritium über den Wasserpfad werden in der ITER-Studie nicht gemacht.

Den Aussagen über störfallbedingte Freisetzung von Tritium liegen bestimmte Störfall-Szenarien zugrunde, die eine Abschätzung erlauben. Es wird davon ausgegangen, daß durch konstruktive Maßnahmen, wie z.B. Art der Gestaltung von Komponenten und Systemen, Unterteilung der einzelnen Tritiuminventare und Berücksichtigung der Rückhaltefunktion eines mit Filtersystemen ausgerüsteten Reaktor-Containments, es möglich sein wird, die Tritiumableitung auf Mengen zu begrenzen, die unterhalb der Schwelle für eine Evakuierung der Umgebung liegen. Vorläufige Sicherheitsanalysen für ITER zielen darauf ab zu zeigen, daß der ITER-Konzeptentwurf auch unter hypothetischen Annahmen mit dem "design target" für Störfälle von 100 mSv vereinbar ist [4-15, 4-16].

Diese Vorgabe für den ITER-Entwurf ist nicht zu verwechseln mit einem Genehmigungsgrenzwert. Der Wert von 100 mSv liegt im unteren Bereich von Werten, wie sie in verschiedenen an ITER beteiligten Ländern als Dosisgrenzwerte eingeführt sind. (Der Bereich reicht z.B. von 50 mSv in der Bundesrepublik über 150 mSv in Frankreich bis zu 250 mSv in Kanada, USA und Japan).

4.5 Radiologische Auswirkung von Tritiumfreisetzung

Bei der rechnerischen Ermittlung der aus einer Tritiumfreisetzung resultierenden maximalen Strahlendosis wird konservativerweise davon ausgegangen, daß die ganze jeweils freigesetzte Menge nicht als HT sondern als HTO vorliegt. Diese Annahme führt aufgrund der größeren Radiotoxizität des Oxids zu höheren Dosen (vgl. Kap. 5 und 6).

Die Berechnungsvorschriften zur Abschätzung der Dosisbelastung sind in den einzelnen Staaten nicht einheitlich. Der Stand des Vorgehens in der Bundesrepublik Deutschland sowie der wissenschaftliche Stand bei der Dosisermittlung werden in Kap. 6 ausführlich beschrieben.

Grundsätzlich wird bei der Dosisberechnung unterschieden, ob es sich um die chronische Freisetzung im Normalbetrieb oder um eine kurzzeitige Freisetzung bei einem Störfall handelt.

Des weiteren erscheint es wichtig, darauf hinzuweisen, welche Expositionspfade bei der Berechnung einer Dosisbelastung berücksichtigt worden sind. Im einzelnen handelt es sich um die

- Aufnahme von Tritium über die Atemwege (Inhalation),
- Aufnahme von Tritium über die Haut (Hautabsorption),
- Aufnahme von Tritium durch den Verzehr von kontaminierten Nahrungsmitteln (Ingestion).

Generell kann festgestellt werden, daß die rechnerischen Werte für die Strahlenbelastung aus der Freisetzung von Tritium aus kerntechnischen Anlagen bei Normalbetrieb im Vergleich zur natürlichen Strahlenbelastung gering sind (vgl. Kap. 6.1.3). Um bei einer störfallbedingten Freisetzung den Vorschriften der deutschen Strahlenschutzverordnung Rechnung zu tragen, muß eine Anlage so ausgelegt werden, daß im ungünstigsten Störfall eine Körperdosis in der Umgebung der Anlage von 50 mSv nicht überschritten wird (§ 28 Strahlenschutzverordnung). Dies bedeutet, daß im ungünstigsten Störfall nicht mehr als ca. 25 g Tritium in Form von HTO in die Umgebung freigesetzt werden dürfen. Für Einzelheiten zur Berechnung der radiologischen Auswirkung einer Tritiumfreisetzung wird auf Kap. 6 verwiesen.

4.6 Zusammenfassung

Die Freisetzung von Tritium im Normalbetrieb aus bestehenden kerntechnischen Anlagen wird in Abhängigkeit vom Typ der Anlage anhand von Zahlenwerten in Form von entweder jährlichen Mittelwerten oder der Gesamtaktivität für den Zeitraum eines Jahres erläutert. Es zeigt sich, daß bei Leichtwasserreaktoren die Siedewasserreaktoren geringere Werte aufweisen als Druckwasserreaktoren und daß die Ableitung mit dem Abwasser jeweils höher ist als diejenige mit der Fortluft. Dies gilt auch für verschiedene Wiederaufarbeitungsanlagen. Demgegenüber ist bei Schwerwasserreaktoren die Tritiumableitung mit der Fortluft höher als mit dem Abwasser bei insgesamt höheren Abgabewerten, bezogen auf die erzeugte Strommenge. Soweit Grenzwerte bzw. Genehmigungswerte vorliegen oder bekannt sind, kann festgestellt werden, daß alle Werte für die Tritiumableitung deutlich unter den genehmigten Grenzwerten liegen.

Bei den kanadischen Schwerwasserreaktoren zeigt sich eine deutliche Reduktion der Tritiumableitungen mit dem Fortschritt der technologischen Entwicklung.

Störfallbedingte Freisetzung von Tritium aus kerntechnischen Anlagen sind in der Literatur nur wenige bekannt. Sie betreffen ausschließlich die Savannah-River-Anlage in den USA, die zu militärischen Zwecken genutzt wird.

Bei der Betrachtung der Tritiumfreisetzung aus kerntechnischen Anlagen darf ein Vergleich mit den Tritiummengen, die in früheren Jahren durch Kernwaffenexplosionen der Biosphäre zugeführt worden sind, nicht fehlen. Diese Menge von ca. $1,7 \cdot 10^8$ TBq ist, verglichen mit der natürlichen Erzeugungsrate von Tritium von $7,2 \cdot 10^4$ TBq/a, sehr hoch.

Bei Anlagen der Kernfusion ist bisher Tritium nicht eingesetzt worden, ausgenommen bei der erstmaligen Deuterium/Tritium-Fusionsreaktion mit einer kleinen Menge Tritium in JET im November 1991. In wenigen Jahren soll in den Versuchsanlagen JET und TFTR Tritium in für den Fusionsprozeß relevanten Mengen zum Einsatz gelangen. Es werden damit wichtige Erfahrungen im Umgang mit Tritium bei einer Fusionsanlage gesammelt werden können. Eine Extrapolation auf einen Fusionsreaktor bedingt jedoch die Einbeziehung weiterer anlagenspezifischer Komponenten im gesamten Brennstoffkreislauf.

Wenngleich die Erfahrungen aus der Tritiumtechnologie bei Schwerwasserreaktoren ein wesentliches Bindeglied in der Übertragung auf einen Fusionsreaktor darstellen, sind Aussagen über eine mögliche Tritiumfreisetzung eines derartigen Reaktors aufgrund des Entwicklungsstands von zusätzlichen Annahmen abhängig.

Insgesamt ist jedoch nach dem heutigen Kenntnisstand davon auszugehen, daß ein Fusionsreaktor auf der Basis einer Deuterium/Tritium-Reaktion so ausgelegt und gebaut werden kann, daß der sichere Einschluß von Tritium beherrscht wird und der Reaktor alle Anforderungen des Strahlenschutzes erfüllt.

4.7 Literatur zu Kapitel 4

- [4-1] F. Luykx, G. Fraser,
Tritium Releases from Nuclear Power Plants and Nuclear Fuel Reprocessing Plants.
Workshop on Environmental and Human Risks of Tritium, Karlsruhe,
KfK, CEC, Febr. 17-19, 1986.
- [4-2] A. Birkhofer, W. Thomas,
Schadstoffemissionen aus Kernkraftwerken im Normalbetrieb und unfallbedingte
Freisetzung,
Atomwirtschaft, Atomtechnik, V. 35 (1), S. 43-47, (Januar 1990).
- [4-3] Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation,
UNSCEAR, 1988 Report to the General Assembly, with Annexes.
- [4-4] Bericht der Bundesregierung über Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung für
das Jahr 1988,
Bundestagsdrucksache 11/6144 (20.12.89).
- [4-5] Bericht der Bundesregierung über Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung im
Jahr 1989,
Bundestagsdrucksache 12/69 (05.02.91).
- [4-6] Was vom Kernkraftwerk Biblis an Radioaktivität abgegeben wurde,
Schaublatt herausgegeben vom Kernkraftwerk Biblis.
- [4-7] ABE-Bericht,
Betriebsergebnisse der deutschen Kernkraftwerke 1989,
Atomwirtschaft, V. 35 (6), S. 298 - 311 (Juni 1990).
- [4-8] Canadian Tritium Experience,
Canadian Fusion Fuels Technology Project, 1984.
- [4-9] W. Koelzer, M. Urban (Red.),
Jahresbericht 1989 der Hauptabteilung Sicherheit,
KfK 4730, April 1990.
- [4-10] W. Koelzer, M. Urban (Red.),
Jahresbericht 1990 der Hauptabteilung Sicherheit,
KfK 4830, April 1991.
- [4-11] C.E. Murphy, Jr. et al.,
Tritium in the Savannah River Site Environment,
WSRC-RP-90-424-1,
Revision 0 (May 1990).
- [4-12] J.E. Phillips, C.E. Easterly,
Sources of Tritium,
NUCLEAR SAFETY, Vol. 22, No. 5, p. 612 - 626, Sept.-Oct. 1981.
- [4-13] W. Gulden u. J. Raeder,
Tritium im Fusionsreaktor,
Physikalische Blätter 46 (1990), Nr. 6.

- [4-14] G. Casini et al.,
Environmental Aspects of Fusion Reactors, 1985,
Technical Note I.04.B1.85.156,
JRC, Ispra (Dec. 1985).
- [4-15] J. Raeder et al.,
ITER Safety,
ITER Documentation Series, No. 36,
IAEA, Wien 1991.
- [4-16] J. Raeder et al.,
Safety Analysis and Radioactivity Confinement for ITER,
ISFNT2, Karlsruhe, 2. - 7.6.1991.
- [4-17] W. Koelzer (Red.),
Jahresbericht 1991 der Hauptabteilung Sicherheit,
KfK 5030, April 1992.

5. Radioökologie und Radiobiologie

H. Dertinger, S. Diabaté, S. Strack

Für die Genehmigung von Anlagen, in denen mit größeren Tritiummengen umgegangen wird, ist eine Abschätzung der Umweltbelastung und der Dosis durch Tritiumfreisetzung während des Normalbetriebs und für Störfälle erforderlich. Zu diesem Zweck werden mathematische Modelle eingesetzt, welche das Tritiumverhalten in der Umwelt beschreiben können. Wegen der Komplexität des Gesamtsystems Umwelt müssen dabei jedoch vereinfachte, aber auf der sicheren Seite liegende Annahmen getroffen werden.

Die einzelnen Komponenten der Umwelt, wie Atmosphäre, Boden, Pflanzen, Tiere und Menschen, werden bei der Modellierung jeweils als Einzelsysteme betrachtet, die miteinander verknüpft sind. Wichtige Parameter und Eingangsdaten für die Modelle basieren auf experimentellen Daten und auf der Auswertung von Messungen in der Umgebung von vorhandenen tritiumemittierenden Anlagen.

Die beiden Hauptformen, in denen Tritium freigesetzt werden kann, sind molekulares Tritium (HT , T_2) und Tritiumwasser oder -wasserdampf ($\text{HTO}, \text{T}_2\text{O}$). In vergleichsweise geringen Mengen werden auch tritierte organische Verbindungen, z.B. Methan, abgegeben. Um bei der Dosisberechnung auf der sicheren Seite zu liegen, wird häufig angenommen, daß Tritium nur in Form von HTO emittiert wird, weil dies die Verbindung mit der höheren Radiotoxizität ist. HT ist bei Inhalation etwa vier Größenordnungen weniger radiotoxisch als HTO [5-1]. In den letzten Jahren hat sich jedoch das Verständnis über das Verhalten von HT in der Umgebung aufgrund von Labor- und Feldexperimenten deutlich verbessert, so daß gute Modelle für eine realistischere Dosisabschätzung zur Verfügung stehen.

Für den Normalbetrieb wird bei der Modellierung eine ständige (chronische) Tritiumfreisetzung in die Atmosphäre angenommen, obwohl die Tritiumfreisetzungen in der Praxis unregelmäßig stattfinden und außerdem die Windrichtung ständig wechselt. Da HTO direkt in den Kreislauf des Wassers eingeht, ist anzunehmen, daß die Umgebung eines Tritiumemittenten mit der Konzentration in der Atmosphäre nahezu im Gleichgewicht steht. Messungen in der Umgebung von Anlagen, die seit vielen Jahren bestehen, konnten dies bestätigen [5-2, 5-3]. Für die Modellierung können relativ einfache Ansätze gewählt werden.

Bei einer kurzzeitigen Tritiumfreisetzung, z.B. bei einem Störfall, herrschen keine Gleichgewichtsbedingungen. Für die Modellierung müssen Aufnahme- und Abgaberaten der einzelnen Systeme berücksichtigt werden, die wiederum stark von Umweltparametern und von der chemischen Form des Tritiums abhängig sind.

Das Tritiumverhalten in den Einzelsystemen wird in den folgenden Kapiteln beschrieben, wobei auf die Unterschiede zwischen HT und HTO sowie zwischen chronischen und kurzzeitigen Freisetzungen an den entsprechenden Stellen eingegangen wird. Die strahlenbiologischen Wirkungen des Tritiums werden in 5.8 abgehandelt.

5.1 Tritium in der Atmosphäre

Im Rahmen von Sicherheitsuntersuchungen für NET (Next European Torus) wurde der aktuelle Kenntnisstand zum Verhalten von Tritium in der Atmosphäre und im Boden sowie zu wichtigen Schlüsselprozessen und Parametern beschrieben [5-4]. Das wichtigste hieraus zum Tritiumverhalten in der Atmosphäre wird in diesem Kapitel wiedergegeben.

5.1.1 Ausbreitung in der Atmosphäre

Der Transport von Tritium in der Atmosphäre erfolgt in der gleichen Weise wie die Ausbreitung von Gasen oder Partikeln durch Wind und turbulente Diffusion. Die Tritiumkonzentration in der Luft, die senkrecht zur Windrichtung in einer gewissen Entfernung zur Tritiumquelle gemessen wird, ähnelt im Idealfall einer Gauß'schen Kurve. Die Berechnung der Ausbreitung in der Atmosphäre erfolgt deshalb meistens nach einem einfachen Gauß-Modell, wobei Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Emissionshöhe, Emissionsdauer und Diffusionskategorie als Eingabeparameter dienen.

Obwohl die tatsächliche Situation wegen Unebenheiten im Gelände und wegen der räumlichen und zeitlichen Schwankungen der Wetterbedingungen recht komplex ist, hat sich das Gauß-Modell in der Praxis bisher gut bewährt. Die beschränkten Möglichkeiten des Gauß-Modells können teilweise kompensiert werden durch experimentell ermittelte Diffusionsparameter, die jedoch nur für den jeweiligen Standort gültig sind.

5.1.2 *Deposition aus der Atmosphäre*

Bei den Berechnungen muß weiterhin die Abreicherung von Tritium aus der Abluftfahne durch Ablagerung (Deposition) auf Boden, Vegetation und Oberflächengewässern sowie die Reemission von HTO vom Erdboden nach einer Deposition berücksichtigt werden. Im folgenden werden die Schlüsselprozesse aufgeführt, welche eine Abnahme der Tritiumkonzentration in der Atmosphäre bewirken:

Umwandlung von HT zu HTO

Die chemische Umwandlung von HT zu HTO in der Atmosphäre führt nicht direkt zu einer Reduktion der Tritiumkonzentration, sie kann jedoch die Austauschrate von Tritium zwischen Atmosphäre und Bodenoberfläche verändern. HT kann in der Gasphase durch Reaktion mit freien Radikalen aus photochemischen Reaktionen oder durch Austausch mit Luftfeuchte zu HTO umgewandelt werden. Ohne Mitwirkung von katalytisch wirksamen Oberflächen ist die Reaktionsgeschwindigkeit jedoch sehr gering. Basierend auf gemessenen globalen HT-Konzentrationen schätzten Mason und Östlund [5-5] eine Halbwertszeit von HT in der unteren Atmosphäre von 6,5 Jahren aufgrund chemischer Umwandlung. Rechnet man den radioaktiven Zerfall mit ein, ergibt sich eine effektive Halbwertszeit von 4,8 Jahren. In Modellen, welche die Ausbreitung in einem lokal begrenzten Gebiet berechnen, kann die HT-Oxidation in der Atmosphäre wegen der extrem geringen Reaktionsgeschwindigkeit vernachlässigt werden.

Nasse Deposition von HT und HTO

Unter nasser Deposition versteht man das Auswaschen von Tritiummolekülen aus der Atmosphäre durch kleine Wassermengen, wie z.B. Regentropfen oder Schneeflocken, und anschließende Sedimentation auf der Erdoberfläche. Man unterscheidet dabei zwei Prozesse nach dem Ort und der Dauer des Auswaschvorganges:

- Auswaschen innerhalb der Wolken (rainout bzw. snowout),
- Auswaschen unterhalb der Wolken durch Niederschlag (washout durch Regen oder Schnee).

Für Freisetzungen aus Anlagen kommen vor allem washout-Prozesse in Frage, d.h. nicht-kontaminierte Regentropfen fallen durch eine tritiumhaltige Abluftfahne und reißen HTO-Moleküle mit sich, bis sich eine Gleichgewichtskonzentra-

tion eingestellt hat. Je niedriger dabei die Temperatur ist, um so weniger HTO kann von den Regentropfen aufgenommen werden. Wegen der geringen Wasserlöslichkeit von Wasserstoff ($0,02 \text{ cm}^3 \text{ H}_2/\text{mlH}_2\text{O}$) wird der washout-Prozess von HT bei Modellrechnungen vernachlässigt.

Nebel und Tau

Unter bestimmten Bedingungen kommt es zu Kondensationsprozessen in der bodennahen Atmosphäre (Nebel) oder an Boden und Vegetation (Tau). Die Tritiumkonzentration der Nebeltröpfchen steht im Gleichgewicht mit der Luftfeuchte. In Abhängigkeit von der jeweiligen Situation kann es zu einer Ablagerung am Boden oder zur Verdunstung der Nebeltröpfchen kommen. Die Taubildung ist nach [5-6] ebenfalls ein wichtiger Pfad, bei dem HTO in den Boden gelangt. In den gängigen Modellen werden Nebel- und Taubildung nicht berücksichtigt.

Trockene Deposition von HT und HTO

Trockene Deposition von HT und HTO unterscheidet sich prinzipiell von der Ablagerung von Aerosolen, die am Boden liegen bleiben (fallout). Die tritiierten Gase diffundieren in Bodenporen bzw. in die Spaltöffnungen der Blätter. HT wird bei Kontakt mit dem Boden durch die Mikroorganismen zu HTO umgewandelt, das mit dem Bodenwasser austauscht. HTO wird aus der Atmosphäre durch Austauschprozesse ins Gewebewasser der Vegetation und ins Bodenwasser aufgenommen. Im Boden und in der Vegetation abgelagertes HTO gelangt durch Verdunstung wieder zurück in die Atmosphäre (Reemission). Die Einzelprozesse, die im Boden und in Pflanzen ablaufen, werden in den nächsten Kapiteln ausführlich beschrieben.

5.2 Tritium im Boden

5.2.1 Deposition von HT und HTO am Boden

Tritium gelangt von der Atmosphäre in den Boden durch Niederschläge und durch Diffusion von tritiierten Gasen in die Bodenporen. Vegetation und abgestorbene Pflanzenteile auf der Bodenoberfläche behindern die Diffusion der Gase in den Boden. Bei einer HTO-Emission wird daher der bewachsene Boden viel weniger kontaminiert als die Vegetation [5-7]. Unbewachsener Boden wird unter den gleichen Bedingungen stärker kontaminiert als bewachsener Boden.

HT bzw. HTO diffundieren aus der Atmosphäre entsprechend dem Konzentrationsgefälle in die Bodenporen. HTO kann direkt mit dem Bodenwasser austauschen und kontaminiert deshalb nur eine dünne Schicht der Bodenoberfläche (wenige cm). HT diffundiert tiefer in den Boden und wird dort durch die vorhandenen Bakterien zu HTO oxidiert, das ins Bodenwasser übergeht. Der Boden kann dann bis zu 10 cm Tiefe kontaminiert sein.

Das in den wasserstoffoxidierenden Bakterien enthaltene Enzym Hydrogenase ist für die HT-Oxidation verantwortlich. Die durch das Enzym katalysierte Reaktion ist reversibel, d.h. Wasserstoff kann sowohl gebildet als auch oxidiert werden, je nach Verfügbarkeit von Luftsauerstoff. Unter aeroben Bedingungen läuft die Reaktion immer in Richtung HTO ab (keine Rückreaktion zu HT).

Die Ablagerung von Gasen aus der Atmosphäre auf terrestrische Oberflächen, die von vielen Faktoren abhängig ist, wird als trockene Deposition bezeichnet. Um diesen Vorgang zu quantifizieren, wurde die Depositionsgeschwindigkeit v_d eingeführt. Sie wird experimentell bestimmt, indem die abgelagerte Aktivität pro Flächeneinheit durch das Integral der Konzentration in der Atmosphäre über der Oberfläche dividiert wird. Die Maßeinheit von v_d ist m/s. Im Falle von HT ist die Depositionsgeschwindigkeit ein Maß für die Oxidationsrate zu HTO.

Die Depositionsgeschwindigkeiten von HT wurden für typische Bodenarten experimentell bestimmt. Der Mittelwert liegt unter Normalbedingungen bei etwa $5 \cdot 10^{-4}$ m/s, der Maximalwert bei etwa $1,5 \cdot 10^{-3}$ m/s. Bei gefrorenem oder schneedecktem Boden ist die Depositionsgeschwindigkeit kleiner als $1 \cdot 10^{-6}$ m/s. Typische Werte für die Depositionsgeschwindigkeit von HTO liegen bei $5 \cdot 10^{-3}$ m/s bei einer kurzzeitigen Emission, etwa eine Größenordnung höher als bei HT. Das Konzept der Depositionsgeschwindigkeit ist jedoch nicht sinnvoll bei einer chronischen HTO-Exposition, da der Austauschprozess zwischen HTO in der Atmosphäre und im Boden zu einem Gleichgewichtszustand führt. Im Unterschied dazu wird HT im Boden irreversibel zu HTO umgewandelt oder bei Bodenverhältnissen, welche für eine HT-Oxidation ungünstig sind, zurück in die Atmosphäre reflektiert [5-4].

In gängigen Modellrechnungen wird die Depositionsgeschwindigkeit (oder Leitfähigkeit) als reziproker Wert eines Diffusionswiderstandes betrachtet, der sich aus drei Komponenten zusammensetzt [5-8]:

$$v_d = 1/(R_a + R_b + R_c) \quad (5-1)$$

R_a ist der aerodynamische Widerstand, der durch Eigenschaften der Atmosphäre (z.B. turbulenter Transport) bestimmt wird.

R_b ist der quasi-laminare Grenzschichtwiderstand, der die Diffusionsrate in der unmittelbaren Nähe der Oberfläche berücksichtigt. Hohe Windgeschwindigkeit erniedrigt z.B. den Grenzschichtwiderstand und erhöht damit die Depositionsgeschwindigkeit.

R_c ist der Widerstand, der die Eigenschaften des betrachteten Gases (z.B. Löslichkeit in Wasser) sowie Eigenschaften der Oberfläche (Boden oder Vegetation) bei der Deposition berücksichtigt.

Der Beitrag von R_a und R_b zum Gesamtwiderstand ist gewöhnlich gering, so daß der Widerstand zur Deposition am Boden vor allem von der Beschaffenheit des Bodens, dem Wassergehalt, dem Bewuchs und der Bodennutzung abhängt. Bei der Deposition von HT spielt außerdem die Aktivität der Mikroorganismen eine wichtige Rolle.

Laborversuche zeigten, daß der Wassergehalt des Bodens von entscheidender Bedeutung bei der Deposition von HT ist. Die Depositionsraten sinken rapide bei extrem hohem oder niedrigem Wassergehalt [5-6]. Bei hohem Wassergehalt ist das effektive Porenvolumen des Bodens (Luftanteil in den Poren) reduziert, so daß die Diffusion des HT und des für die Aufrechterhaltung aerober Bedingungen notwendigen Sauerstoffs in den Boden behindert wird. Bei zu niedrigem Wassergehalt fehlt den Bodenbakterien Wasser zur Aufrechterhaltung des Stoffwechsels. Temperaturen unter 5°C und über 40°C reduzieren ebenfalls die Stoffwechselaktivität der Bodenbakterien [5-9]. Die Depositionsgeschwindigkeit von HT wird demnach kleiner, wenn sich die Lebensbedingungen der Bodenbakterien verschlechtern oder auch wenn das natürliche Bodenprofil gestört wird, z.B. durch Umpflügen. Die vorwiegend in den tieferen Bodenschichten enthaltenen anaeroben Bakterien sind nicht in der Lage, HT zu HTO zu oxidieren [5-10]. Das effektive Porenvolumen ist auch von der Bodenart abhängig. Sandige Böden oder Böden mit hohem organischen Anteil haben ein größeres Porenvolume als z.B. lehmige Böden.

Der Einbau von Tritium in organische Bodenbestandteile (OBT = organically bound tritium) ist sehr gering bei kurzzeitigen HT- oder HTO-Expositionen. Bei längerfristigen Expositionen könnte der OBT-Anteil des Bodens durch abgestorbenes Pflanzenmaterial erhöht werden, wodurch die Verweilzeit des Tritiums im Boden verlängert wird.

Im Boden abgelagertes HTO kann wieder in die Atmosphäre verdunsten (Reemission), oder es diffundiert entsprechend dem Konzentrationsgefälle in tiefere Bodenschichten. Durch nachfolgende Niederschläge versickert HTO allmählich in

tiefere Bodenschichten, wobei die Geschwindigkeit hauptsächlich von der Niederschlagsmenge und von der Bodenbeschaffenheit abhängt.

5.2.2 *Reemission von HTO aus dem Boden*

Mit Reemission werden alle Verdunstungsprozesse des HTO von der Bodenoberfläche (Evaporation) und von der Vegetation (Transpiration) bezeichnet. Solange HTO im Wurzelbereich vorliegt, kann es in die Pflanzen gelangen und über die Blätter wieder abgegeben werden. Die Reemission von HTO von der Bodenoberfläche kann bereits während einer HT-Exposition beginnen. Bei einer HTO-Exposition ist eine Reemission erst feststellbar, wenn die Abluftfahne vorbeizogen ist oder wenn sich die Windrichtung geändert hat.

Die Reemissionsrate hängt im wesentlichen von den meteorologischen Bedingungen, wie z.B. Einstrahlung, Luftfeuchte und Windgeschwindigkeit, ab. Am Tage, wenn das Wasserdampfdruckdefizit in der Atmosphäre größer als im Boden ist, wurden Reemissionsraten von 1 bis 5 % des im Boden abgelagerten HTO pro Stunde gemessen. Nachts ist die Reemission von HTO geringer, weil die Strahlung fehlt und die Windgeschwindigkeit normalerweise reduziert ist. Bei Regen oder unter Taubedingungen findet praktisch keine Reemission statt.

Die Geschwindigkeit der Reemission hängt weiterhin von der Verteilung des HTO im Boden ab, die sich bei trockener HT- und HTO-Deposition sowie bei nasser HTO-Deposition unterscheidet. Da der Boden nach einer HT-Exposition in der Regel tiefer kontaminiert ist als nach einer HTO-Exposition (siehe 5.2.1), verbleibt Tritium länger im Boden und ist damit auch länger für die Pflanzen verfügbar. So wurden z.B. in Kiefernadeln aus der Umgebung einer Tritium verarbeitenden Anlage nach einer HT-Freisetzung im Mai 1974 erst nach 30 Tagen, nach einer HTO-Freisetzung im März 1981 bereits nach 3 Tagen wieder Backgroundwerte gefunden [5-7].

Bei der Modellierung der Reemission wird der Boden als Flächenquelle betrachtet. HTO wird also von einer Fläche in die Atmosphäre emittiert und kann an einer anderen Stelle am Boden und in Pflanzen wieder abgelagert werden [5-11].

Für die Dosisberechnung in der Umgebung des Emittenten ist die Berücksichtigung der Reemission von HTO wichtig, besonders bei einer HT-Freisetzung. Feldexperimente in Frankreich und Kanada haben gezeigt, daß die Strahlenexposition durch die vorbeiziehende HT-Wolke unter den gegebenen Bedingungen nur etwa 1 % der Inhalations- und Hautabsorptionsdosis betrug. 99 % wurden durch die nachfolgende Reemission von HTO verursacht [5-12, 5-13], da die Radiotoxizi-

tät von HTO um den Faktor 104 höher ist als die von HT. Modellrechnungen (vgl. Kap. 6.1.2) kommen zu ähnlichen Ergebnissen.

Bei HTO-Freisetzung ist der Einfluß der Reemission auf die Dosis geringer. Ausgehend von den Bedingungen, die während des HT-Ausbreitungsexperimentes in Frankreich herrschten, haben Täschner et al. die Inhalations- und Hautabsorptionsdosis für eine fiktive Tritiumfreisetzung in Form von HTO bei gleicher Aktivitätsmenge und unter gleichen Bedingungen wie dort abgeschätzt. Sie fanden, daß die Abluftwolke im ungünstigsten Fall bei einer HTO-Freisetzung zu etwa 2/3 und die Reemission zu 1/3 zur Gesamtdosis in Fahnenmitte beitragen würde [5-13]. Nach Rechnungen mit HTO-Ausbreitungsmodellen ist bei HTO-Freisetzung der Einfluß der Reemission auf die Dosis noch geringer (vgl. Kap. 6.1.2).

Wegen der starken Abhängigkeit sowohl der Depositionsgeschwindigkeit von HT als auch der Reemissionsrate von den meteorologischen Bedingungen kann die Dosis nach einer HT-Freisetzung stark schwanken. Für einen Vergleich mit einer HTO-Freisetzung gleichen Ausmaßes kann deshalb kein einheitlicher Faktor angegeben werden. Unter den Bedingungen der Freisetzungsexperimente war die Dosis durch die HT-Freisetzung etwa um den Faktor 100 niedriger als bei einer angenommenen Freisetzung der gleichen Tritiummenge als HTO. Eine 20-mal niedrigere Dosis nach HT-Freisetzung wurde von Bartels [5-80] durch Extrapolation aller Daten aus dem Frankreich- und dem Kanada-Experiment und einer einfacheren Dosisberechnung gefunden. Nach Modellrechnungen von Raskob (vgl. Kap. 6.1.2) unterscheiden sich die Dosen infolge einer HT-Freisetzung bei der Ingestion etwa um den Faktor 20 und bei der Inhalation und Hautabsorption etwa um den Faktor 200 von den Dosen einer HTO-Freisetzung.

5.3 Tritium im Grundwasser

Der Bodenbereich, der für den Tritiumtransport ins Grundwasser von Interesse ist, reicht bis zum festen Gestein. Die Wasserbewegungen im Boden erfolgen vor allem in flüssiger Form, weniger als Wasserdampf. Dabei wirken zum einen die senkrecht nach unten gerichtete Schwerkraft (Gravitations-Potential) und zum anderen Kräfte, die sich aus Unterschieden in der Bodensaugspannung in feuchten und trockenen Bodenzonen ergeben (Matrix-Potential), die in alle Richtungen wirksam sein können.

Bei Niederschlägen erfolgt zunächst eine Absättigung der oberen Bodenzonen. Wenn die maximale Haftwassermenge eines Bodens überschritten wird, ver-

sickert das Wasser durch die Grobporen in die Tiefe. Gleichzeitig kommt es zu Bewegungen des Haftwassers in Wasserfilmen und Kapillaren aufgrund der Bodensaugkräfte. Bei Trockenheit kann das Wasser durch die Saugspannungsdifferenz auch vom Grundwasser nach oben steigen. Die Geschwindigkeit aller Wasserbewegungen ist stark von den Bodeneigenschaften abhängig.

Tritium erreicht das Grundwassersystem nur in flüssiger Form. Die Verteilung erfolgt durch mechanische Mischung und molekulare Diffusion. Durch diese beiden Verteilungsprozesse wird das Tritium im Grundwassersystem über ein großes Gebiet ausgebreitet, wobei die Tritiumkonzentration stark verdünnt wird. Die Geschwindigkeit des Grundwassertransports schwankt normalerweise zwischen 1,5 m/Jahr und 1,5 m/Tag. In gut durchlässigen Schichten kann eine Geschwindigkeit bis zu einigen 100 m/Tag erreicht werden. Wegen der starken Schwankungen kann die Verteilung und die Verweilzeit im Grundwasser nur schwer vorhergesagt werden, ohne die Geologie des betreffenden Gebietes zu kennen.

In den meisten Fällen ist die Verweilzeit von Tritium in geologischen Systemen sehr viel größer als in atmosphärischen, terrestrischen und aquatischen Systemen. Sie beträgt oft ein Mehrfaches der Halbwertszeit von Tritium. Bis das Wasser auf natürlichem Weg wieder an die Oberfläche gelangt, ist das Tritium zum Teil zerfallen. Zu beachten ist jedoch die Nutzung des Grundwassers als Trinkwasser oder für die Beregnung.

5.4. Tritium in Pflanzen

Für das Verhalten in der Biosphäre ist die chemische Form des Tritiums von entscheidender Bedeutung. In molekularer Form, als HT oder T₂, stellt es ein relativ inertes Gas dar mit einer geringen Löslichkeit im Wasser. In oxidierten Form als HTO findet es mit dem Wasser leichten Eingang in alle biologischen Systeme. In gasförmigen organischen Verbindungen, z.B. Methan, Formaldehyd, Ammoniak, ist ein sehr unterschiedliches Verhalten in der Biosphäre zu erwarten, wobei es bis heute hierzu nur sehr wenige Untersuchungen gibt. In pflanzlichen und tierischen Organismen kann Tritium in andere organische Verbindungen eingebaut werden. Bei solcher Art organisch gebundenem Tritium (OBT - organically bound tritium) muß unterschieden werden zwischen nicht-austauschbarer Bindung (in kovalenter Bindung am Kohlenstoff), im Gegensatz zur Bindung an Sauerstoff, Stickstoff bzw. Schwefel, wo es leicht mit dem Wasserstoff im umgebenden Wasser austauscht.

5.4.1 Tritium im pflanzlichen Gewebewasser

Bei der Betrachtung der Aufnahme von Tritium in Pflanzen ist vor allem das HTO-Verhalten von Bedeutung. Terrestrische Pflanzen werden vom Boden her über den Transpirationsstrom mit Wasser versorgt. Abgesehen von einigen botanischen Sonderfällen, werden im allgemeinen während des Tages, wenn die Blattöffnungen (Stomata) geöffnet sind, große Mengen an Wasser von den Wurzeln in die Blätter transportiert und durch Diffusion an die Atmosphäre abgegeben. Treibende Kraft dafür ist das im Tagesgang sich ändernde Wasserdampfdruckdefizit, d.h. die Differenz zwischen dem Wasserdampfdruck in der Atmosphäre und dem in den substomatären Atemhöhlen der Blätter, der in der Regel ständig gesättigt ist (100 % relative Feuchte). Der Nettostrom von Wasser aus den Blättern in die Atmosphäre kann dabei praktisch nicht negativ werden, wenn man von einigen theoretisch denkbaren Extremfällen absieht. Aus diesen Überlegungen heraus wurde von früheren Autoren [5-15] erwartet, daß sich eine Tritiumkonzentration im Gewebewasser der Blätter einstellt, die etwa der Tritiumkonzentration im Bodenwasser entspricht. Jedoch wurde eine solche Gleichgewichtssituation bei Untersuchungen des Tritiumpegels in der Vegetation in der Regel nicht beobachtet.

Aus radioökologischer Sicht kann HTO sowohl über die Wurzeln als auch über die Blätter in die Pflanze gelangen. Da die Diffusion der Wassermoleküle beim Transpirationsvorgang nicht gerichtet ist, läuft der Vorgang in zwei Richtungen ab, d.h. Wassermoleküle gelangen ebenfalls von der Atmosphäre in die Blätter. Das HTO wird dabei entlang einem Konzentrationsgradienten zwischen Blatt und Atmosphäre transportiert, und es findet ein Nettofluß von Tritium aus der Atmosphäre in die Blätter statt, wenn die HTO-Konzentration dort höher als in den Blättern und somit auch im Boden ist.

Die Tritiumkonzentration, die sich im Gleichgewichtszustand in den Blättern einstellt, wird deshalb erwartungsgemäß zwischen den HTO-Konzentrationen in der Atmosphäre und dem Boden liegen. Ein solcher Gleichgewichtszustand lässt sich bei genauerer Betrachtung nicht durch eine feste Größe darstellen, sondern er ändert sich mit den klimatischen Bedingungen, d.h. in erster Linie mit dem Verhältnis des Wasserdampfdruckes in der Atmosphäre zum Wasserdampfdruck in den Atemhöhlen der Blätter, was wertmäßig etwa der jeweils in der Atmosphäre herrschenden relativen Luftfeuchte entspricht. Nach diesem Verhältnis (mit einer Schwankungsbreite unter normalen klimatischen Bedingungen von 1,0 in der Nacht und etwa 0,5 am Tage) mischen sich im Gleichgewichtszustand die Tritiumkonzentrationen in der Atmosphäre C_a und im Boden C_s zu einer im Tagesgang

variierenden HTO-Konzentration im Blatt C_l . Werden die Konzentrationen jeweils bezogen auf ein Gramm Wasser bzw. Feuchtigkeit angegeben, dann lässt sich diese Beziehung vereinfacht durch die Gleichung wiedergeben:

$$C_l = C_a \cdot RH + C_s (1 - RH) \quad (5-2)$$

mit RH für die relative Luftfeuchte in der Atmosphäre.

5.4.2 Dynamische und statische Modellierung des Verhaltens von HTO

Belot [5-16] hat diesen Zusammenhang zwischen HTO-Konzentrationen in Blatt und Atmosphäre modellmäßig beschrieben, wobei er noch einen konstanten Faktor von 1,1 einführte, um den sich die Gleichgewichtskonzentration aufgrund eines Isotopieeffektes verschiebt. Von Murphy [5-17] wurde später ein Modell mit den gleichen Konsequenzen beschrieben, wobei er allerdings noch die Auswirkungen einer Differenz zwischen Blatt- und Lufttemperatur berücksichtigte.

Dynamische Modelle

Für die dynamische Modellierung ist neben dem Gleichgewichtswert noch die Zeitkonstante k von Bedeutung, mit der dieser Wert erreicht wird. Die Beziehung zwischen HTO-Konzentration in der Luftfeuchte C_a ($\text{Bq} \cdot \text{ml}^{-1}$) und der des Gewebewassers C_l lässt sich in folgender Exponentialfunktion wiedergeben:

$$C_l = C_a \frac{\alpha}{p} (1 - e^{-kt}) , \quad (5-3)$$

worin α den Isotopieeffekt aufgrund unterschiedlicher Dampfdrücke von H_2O und HTO (1,1) und p die Dichte von Wasserdampf in gesättigter Luft ($\text{g} \cdot \text{ml}^{-1}$) bedeuten. Die Zeitkonstante k (s^{-1}) ergibt sich aus dem Produkt von Umrechnungskonstanten und dem Kehrwert eines Gesamtwiderstandes R :

$$k = \frac{p}{\alpha \mu} \cdot \frac{1}{R} \quad (5-4)$$

mit μ als dem Wassergehalt pro Blattflächeneinheit ($\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$). Typische Werte von k liegen tagsüber bei 10^{-4} s^{-1} . Für Tomatenblätter z. B. wurde ein k -Wert von $2,5 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ an Schönwettertagen ermittelt [5-18].

Entsprechend der Modellierung der Deposition von Tritium auf dem Boden lässt sich auch die Aufnahme in den Pflanzen durch das von Hicks et al. [5-8] vorgeschlagene Widerstandsmodell beschreiben. In der Summe von Einzelwider-

ständen, die den Gesamtwiderstand R ergeben, stellt neben dem aerodynamischen Widerstand R_a und dem Grenzschichtwiderstand R_b der Blattwiderstand R_c die pflanzenspezifischen Eigenschaften dar. Hierin sind der stomatäre Widerstand r_{st} , der Mesophyllwiderstand r_{mes} , die Löslichkeitskonstante des Gases s und ein Blattflächenindex LAI (leaf area index) zusammengefaßt:

$$R_c = (r_{st} + s \cdot r_{mes}) / LAI, \quad (5-5)$$

wobei der Blattflächenindex LAI das Verhältnis angibt, das die gesamte Blattoberfläche eines Bewuchses zur entsprechenden Bodenoberfläche einnimmt. Im Falle von HTO-Dampf ist der Mesophyllwiderstand vernachlässigbar.

Als Beispiele einer dynamischen Modellierung werden von Raskob [5-11] als typischer Wert für eine mitteleuropäische Feld-Wald-Landschaft ein Blattflächenindex von $3 \text{ m}^2/ \text{m}^2$ (Blattfläche/Bodenfläche) vorgeschlagen. Für die Aufnahme des HTO ins Gewebewasser und die Verteilung in der flüssigen Phase wird bei der Modellierung im allgemeinen angenommen, daß diese Vorgänge sehr viel schneller verlaufen als die in der Gasphase, so daß entsprechende Widerstandswerte vernachlässigt werden können. Der stomatäre Widerstand variiert im Tagesgang. Bei der Modellierung wird heute der Einfachheit halber oft nur zwischen Tages- und Nachtwerten unterschieden, wobei z.B. typische Werte von 4 und $60 \text{ s} \cdot \text{cm}^{-1}$ für Tag bzw. Nacht vorgeschlagen wurden [5-11].

Zur Quantifizierung der Aufnahme von HT in die Pflanzen werden wie beim Boden auch sog. Depositionsgeschwindigkeiten v_d verwendet, die - wie bereits oben erwähnt - dadurch experimentell bestimmt werden, daß das Verhältnis aus abgelagerter Aktivität zum Integral der Aktivität in der Atmosphäre über der Oberfläche gebildet wird. Bezogen jeweils auf eine bestimmte Fläche ergibt sich für v_d eine Maßeinheit von m/s .

Die direkte Aufnahme von HT in pflanzliches Gewebewasser ohne den Umweg über das HTO in Atmosphäre und Boden spielt nur eine untergeordnete Rolle wegen der sehr geringen Löslichkeit von Wasserstoff in Wasser. Für eine Reihe von ernährungsrelevanten Pflanzen wurden von Strack et al. [5-19] Depositionsgeschwindigkeiten für HT in das Gewebewasser der Blätter im Bereich von $0,8 \cdot 10^{-8}$ bis $2,3 \cdot 10^{-8}$ (m/s) unter Laborbedingungen bestimmt. Von Spencer et al. [5-20] wurden Werte im Bereich von $6 \cdot 10^{-7}$ bis $2,3 \cdot 10^{-8}$ m/s für verschiedene Pflanzen in Feldexperimenten gemessen. Bei Modellierungen zur Dosisabschätzung wird dieser Weg wegen der geringen Bedeutung allgemein vernachlässigt.

Statische Modelle

Zur Vereinfachung der Dosisabschätzung bei chronischen Tritiumemissionen werden häufig Modelle verwendet, die von Gleichgewichtsbedingungen zwischen Pflanzen und der Umgebung ausgehen, sog. statische oder "steady state" Modelle. Da die Verteilungsräume für Tritiumwasser in den Organismen bekannt sind und es nicht zu einer Anreicherung entgegen einem Konzentrationsgefälle kommen kann, werden solche Modelle auch "spezifische Aktivitätsmodelle" genannt. Die spezifische Tritiumaktivität im Gewebewasser der Pflanzen steht dabei in einem konstanten Verhältnis zur Tritiumaktivität in der Atmosphäre, wobei diese im allgemeinen über einen Zeitraum von einem Jahr gemittelt wird. Umfangreiche Messungen von Anspaugh in den USA [5-21] führten 1977 dazu, daß in den US-Regulatory Guidelines [5-22] dieses Verhältnis mit 0,5 beziffert wurde. Aufgrund jahrelanger Beobachtungen von Murphy [5-17] in der Umgebung der Savannah River Plant mit einem feuchten Klima empfahl er ein mittleres Verhältnis von 0,8. In der deutschen Allgemeinen Berechnungsgrundlage [5-23] war das Verhältnis bis vor kurzem mit 1,0 angegeben, d.h. eine Gleichverteilung von HTO in Luftfeuchtigkeit, Bodenwasser und pflanzlichem Gewebewasser wurde angenommen. Durch umfangreiche Messreihen in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe [5-24, 5-25, 5-26] konnte gezeigt werden, daß eine solche Modellvorstellung für Jahresmittelwerte durchaus realistische Werte für die praktische Dosisabschätzung liefert. Einzelne Messungen in Umgebungsproben hingegen können mit einem solchen Modell nicht erklärt werden, weil es saisonale und tageszeitliche Schwankungen der klimatischen Bedingungen (z.B. der relativen Feuchte) nicht berücksichtigt und weil wechselnde Windrichtungen nur statistisch erfaßt werden. In der neuen AllgemeinenVerwaltungsvorschrift [5-27] wurde das spezifische Aktivitätsmodell differenziert angewendet, indem das Gewebewasser der Pflanzen in unterschiedliche Anteile von 30 und 70 % aufgeteilt wird, die jeweils mit der Tritiumkonzentration in der Luftfeuchte bzw. in den Niederschlägen im Gleichgewicht stehen. Dabei ist eine Unterscheidungsmöglichkeit zwischen Blattgemüse und pflanzlichen Produkten ohne Blattgemüse (z. B. Wurzelgemüse) in den Berechnungsformeln grundsätzlich vorgesehen, von ihr wird bei der eigentlichen Berechnung allerdings kein Gebrauch gemacht.

5.4.3 Organisch gebundenes Tritium (OBT)

Beim Einbau von Tritium in die organische Substanz der Pflanzen sind speziell die Vorgänge bei der Bildung von "nicht-austauschbarem OBT" von Interesse, das kovalent an Kohlenstoff gebunden ist. Hierfür wird im allgemeinen der Begriff OBT

verwendet, während das in den Biomolekülen an Sauerstoff, Stickstoff und Schwefel gebundene "austauschbare OBT" in der Regel dem Gewebewasser-Kompartiment zugerechnet wird. In dieser Form und als HTO im Gewebewasser ist das Tritium in den Wasserumsatz einbezogen und kann die Pflanze auch entsprechend schnell wieder verlassen (Halbwertszeit etwa 30 Minuten bei normalem Wasserumsatz). Je nach Behandlung vor dem Verzehr und nach Art der Pflanzenteile ist mitunter mit einer Reduktion des Tritiumgehaltes aufgrund eines Austausches mit Wasser aus der Umgebung zu rechnen. Allerdings wurde von Spencer [5-28] festgestellt, daß es bei kontaminierten Tomatenfrüchten während der Lagerung in tritiumfreier Atmosphäre auch über 15 Tage zu keinem Verlust an HTO kommt.

Im Gegensatz dazu kann das OBT wegen seiner wesentlich längeren Verweilzeit im Organismus in Nahrungsnetzen transportiert werden und so in Form einer Ingestionsdosis zur Tritiumexposition des Menschen beitragen. Haupteintrittspforte für Tritium ins OBT ist die Photosynthese der Pflanzen. Hier wird im Chloroplasten das Wasser bzw. HTO aufgespalten, wobei der Wasserstoff über eine Reihe von Reaktionen an CO₂ gebunden wird. Wegen des Unterschieds der Bindung von T bzw. H an den Sauerstoff (zur Spaltung der Bindung zwischen Tritium und Sauerstoff muß eine höhere Energie aufgewendet werden) wird das HTO-Molekül gegenüber dem Wassermolekül etwas diskriminiert. Ein solcher Isotopieeffekt wurde von verschiedenen Autoren vor allem bei Grünalgen beschrieben, derart, daß die auf den Wasserstoff bezogene spezifische Aktivität im OBT um einen Faktor 0,5 bis 0,8 geringer ist als in dem umgebenden Wasser [5-29, 5-30, 5-31]. In terrestrischen Pflanzen wurden ähnliche Verhältnisse gefunden [5-52].

Die bei der Photosynthese gebildeten Assimilate werden zum Aufbau der Blätter verwendet und in diesen später auch temporär gespeichert. Durch Translokation werden sie aber auch vor allem in der Nacht in die übrigen Pflanzenteile transportiert und zum Aufbau z.B. der Wurzeln und Früchte verwendet. Zur dynamischen Modellierung der OBT-Bildung ist es notwendig, Photosynthese - und Translokationsraten der Pflanzen in Abhängigkeit vom Klima zur jeweiligen Tages - und Jahreszeit zu kennen. Mit solchen Untersuchungen steht man in der Tritium-Radioökologie erst am Anfang [5-18].

Ein direkter Einbau von HT ins OBT der Pflanzen wurde vor allem im Zusammenhang mit der Abgabe großer Mengen von HT an die Atmosphäre diskutiert. Sweet und Murphy [5-32] untersuchten diesen Weg an Kiefernnadeln und fanden Depositionsgeschwindigkeiten in der Größenordnung von 10⁻⁹ m/s. Zwar hat

man bisher über die Mechanismen dieses Einbaus keine Kenntnisse, Sweet und Murphy fanden jedoch, daß der Einbau im Dunkeln höher ist als im Licht und daß die Einbaurate bei steigender HT-Konzentration in der Atmosphäre sinkt. Dieses Verhalten wird als Hinweis auf einen enzymatischen Mechanismus der HT-Deposition ins nicht-austauschbare OBT diskutiert.

Bei Laborversuchen besteht allgemein die Schwierigkeit, daß bei hohen HT-Konzentrationen die Anwesenheit von HTO im Containment unvermeidbar ist und dieses unter solchen Bedingungen nur mit unzulänglicher Genauigkeit gemessen werden kann. Somit ist eine Aussage darüber, ob eine beobachtete OBT-Konzentration vom HT oder vom HTO herrührt, direkt nicht möglich. Bei vergleichenden Expositionsversuchen an verschiedenen Pflanzen bei gleichzeitiger Anwesenheit von HT und HTO im Vergleich zu ausschließlicher Anwesenheit von HTO ließ sich bisher jedoch kein relevanter Einbau von HT ins OBT beobachten [5-19]. Die gemessenen Depositionsgeschwindigkeiten von HT ins nicht-austauschbare OBT lagen zwischen $1,0 \cdot 10^{-11}$ und $2,3 \cdot 10^{-10}$ m/s.

In den letzten Jahren wurde dieser Punkt vor allem diskutiert, weil ein solcher direkter Einbau von Tritium ins OBT als Erklärung dafür in Frage kam, daß in Umgebungsproben weltweit in der Regel die spezifische Aktivität des OBT höher ist als die des Gewebewassers [5-32, 5-33]. Auch wenn sich ein direkter HT-Einbau experimentell nicht bestätigen ließ, so ist die Diskussion über diesen Punkt noch nicht abgeschlossen, da ein direkter Tritiumeinbau auch von organischen Verbindungen wie z.B. Methan oder Formaldehyd ausgehen könnte. Über die Mechanismen solcher Prozesse ist bisher allerdings nichts bekannt.

Seit man in der Lage war, in Umweltproben neben der HTO-Konzentration auch die OBT-Konzentration zu analysieren, wurde in der Regel immer eine höhere OBT-Konzentration in den Proben beobachtet, d.h. das Verhältnis R (engl. ratio) ist größer als 1 [5-34]. Zahlreiche Beispiele wurden zuletzt von Brown [5-35] zusammengestellt. In der Nähe von tritiumemittierenden Anlagen wurden für R Höchstwerte von 4-5 gemessen. Im Mittel liegen die R-Werte jedoch zwischen 1 und 2. R-Werte, die größer 1 waren, warfen von jeher die Frage auf, ob sich in die Umwelt emittiertes Tritium in der organischen Phase von biologischen Proben anreichern bzw. akkumulieren könne. Auf die Frage, ob sich Tritium in Nahrungsketten, d.h. beim Durchlaufen der Nahrungsstufen Pflanzen - Pflanzenkonsumennten - Tierkonsumenten, anreichern kann, wird im Kapitel 5.6.4 eingegangen. Bei der Frage, ob sich Tritium bereits in den Pflanzen anreichern könne, müssen die Zusammenhänge differenziert betrachtet werden.

Wie bereits erwähnt, wurde unter Gleichgewichtsbedingungen in Algenkulturen eine Diskriminierung von Tritium beim Einbau ins OBT festgestellt. Lediglich bei der Auftrennung einzelner organischer Komponenten aus dem Citronensäurecyclus von Blaualgen fanden Rambeck und Bassham [5-36] erhöhte R-Werte z.B. beim Citrat (1,8), die dadurch zustande kommen, daß es beim Metabolismus zum Rückstau tritiierter Verbindungen kommen kann, wenn beim Reaktionsschritt eine Wasserstoffbindung aufgespalten wird. Anteilig spielen solche Phänomene jedoch nur eine untergeordnete Rolle, so daß sie nicht für erhöhte R-Werte verantwortlich gemacht werden können. Bei einmaliger Injektion von HTO in kontinuierliche Algenkulturen, also unter Nicht-Gleichgewichtsbedingungen in bezug auf das Tritium, läßt sich zeigen, daß R-Werte in den Algen aufgrund unterschiedlicher Kinetik von HTO und OBT erheblich ansteigen können [5-37]. Das OBT verläßt in diesem Falle das System zwar ebenfalls exponentiell mit der gleichen Rate, jedoch zeitversetzt, wodurch die Spanne zwischen beiden Konzentrationen ständig größer wird.

Die Tritiumexposition von terrestrischen Pflanzen durch sog. "chronische Emissionen" erfolgt in der Praxis ebenfalls nicht immer unter Gleichgewichtsbedingungen. Zum einen liegen auch Emissionen beim bestimmungsgemäßen Betrieb selten konstant in der gleichen Höhe, zum anderen wird eine Pflanze in der Nähe eines Emittenten infolge wechselnder Windrichtungen nicht gleichmäßig exponentiert. Während sich die HTO-Konzentration im Gewebewasser der Pflanzen relativ rasch an die in der Feuchtigkeit der Umgebung anpaßt, verbleibt einmal inkorporiertes OBT in den Pflanzen mit längeren Verweilzeiten, wodurch die Wahrscheinlichkeit, R-Werte > 1 zu beobachten, ständig steigt, falls die Probenentnahme nicht gerade zu einem Zeitpunkt erfolgt, in dem erhöhte HTO-Konzentrationen in der Luftfeuchte vorliegen [5-26].

Erhöhte R-Werte bei Früchten sind darauf zurückzuführen, daß OBT, welches in Blättern und anderen Pflanzenteilen gebildet wird, durch Translokation zu den Früchten gelangt und dort gespeichert wird. Der Transport von HTO zu den Früchten erfolgt dagegen vergleichsweise langsam. Spencer [5-38] hat nach Exposition von Tomatenpflanzen mit HTO in der Atmosphäre R-Werte von 1,8 in den Früchten gemessen.

Die Frage, ob es bei der OBT-Bestimmung durch die Methodik bei der Probenaufarbeitung zu erhöhten R-Werten kommen kann, wurde oft angesprochen. Kim und Baumgärtner [5-39] brachten die Möglichkeit einer Anreicherung von Tritium bei der Gefriertrocknung von Proben in die Diskussion. Bei niedrigen Temperaturen sind die Dampfdruckunterschiede zwischen H_2O und HTO besonders

hoch. Dies könnte für den Fall, daß das Vakuum in der Gefriertrocknungsanlage nicht ausreichend hoch ist, zu einer HTO-Anreicherung an der Eis-Grenzschicht führen. Ein Austausch mit dem austauschbaren OBT der Probe kann dann theoretisch zu einem um 7 - 20 % scheinbar erhöhtem OBT-Wert führen. Ob dieser Effekt auch tatsächlich bei der üblichen Probenaufbereitung jemals eine Rolle gespielt hat, konnte jedoch nicht bewiesen werden.

Für erhöhte R-Werte in Pflanzen fernab aller bekannten Emittenten wurde als Erklärung noch die Möglichkeit in Betracht gezogen, daß bei stetig sinkenden HTO-Konzentrationen des in der Luftfeuchtigkeit global verteilten Tritiums das Tritium im Boden (auch organisch gebunden) wesentlich langsamer abnimmt. Aus diesem Reservoir könnten die Pflanzen OBT beziehen. Nachgewiesen werden konnte diese Erklärung allerdings bisher auch nicht, weshalb die Diskussion um diesen Punkt der erhöhten R-Werte in Umweltpolen bisher noch nicht als abgeschlossen betrachtet werden kann, auch wenn allgemein nicht an der Erklärbarkeit durch die bisher bekannten Phänomene gezweifelt wird. Möglicherweise kommen die beobachteten erhöhten R-Werte auch jeweils durch unterschiedliche Überlagerung verschiedener bekannter Effekte zustande.

5.5 Tritium in aquatischen Ökosystemen

Nahezu sämtliches Tritium, das in die Umwelt freigesetzt wurde, erreicht einmal die Hydrosphäre, sofern es nicht vorher durch den physikalischen Zerfall verschwunden ist. Das größte Reservoir für Tritium bilden dabei die Ozeane. Wie andere Gewässer auch, haben sie als Nahrungsquelle eine nicht unerhebliche Bedeutung. Freigesetztes Tritiumwasser findet allerdings in der Hydrosphäre sehr viel größere Verteilungsräume vor als in der Atmosphäre, in der nur im Mittel etwa 10 g Wasser pro Kubikmeter vorhanden sind, so daß es in der Atmosphäre in wesentlich konzentrierterer Form umgesetzt wird.

Die Verweilzeit des Tritiums in aquatischen Systemen wird einerseits bestimmt durch die Dauer der Einleitung, andererseits durch die Verdünnung bei der Durchmischung der Gewässer. In Flüssen ist der Durchsatz von Wasser in der Regel hoch, in Seen kann sich auch die Evaporation des Tritiumwassers auf die Verweildauer im System auswirken [5-2].

Als HTO hat Tritium in aquatischen Organismen nur eine verhältnismäßig kurze Verweilzeit, d.h. die HTO - Konzentration im Gewebewasser gleicht sich sehr schnell an die Konzentration im umgebenden Wasser an, bis sie im Gleichgewichtszustand die spezifische Tritiumaktivität des Umgebungswassers aufweist.

Die Halbwertszeiten für den exponentiell verlaufenden Austauschvorgang liegen bei Plankton-Algen bei etwa 0,5 Minuten [5-40]. Für das Gewebewasser von Fischen werden Halbwertszeiten im Bereich von < 0,5 Stunden [5-41] oder auch - bei einer Beschreibung des Austausches durch zwei Exponentialfunktionen - von 0,2 bis 0,5 h für das erste und von 0,9 bis 1,5 h für das zweite Kompartiment angegeben [5-42, 5-43].

Beim organisch gebundenen Tritium (OBT) sind die Verhältnisse wiederum komplizierter. Es läßt sich abschätzen, daß etwa 20 % des organisch gebundenen Wasserstoffes in den Organismen austauschbar sind und somit ebenfalls im Gleichgewicht mit der spezifischen Tritiumaktivität des Umgebungswassers stehen. Im folgenden wird daher nur der nicht-austauschbar gebundene Wasserstoff in der organischen Substanz (z.B. in Fischen ca. 13 % des gesamten Wasserstoffs) betrachtet.

Für Algen, die Primärproduzenten in den Gewässern, liegen zahlreiche experimentelle Untersuchungen vor, in denen beim photosynthetischen Einbau von HTO in die organische Sustanz Isotopieeffekte beschrieben wurden [5-29, 5-30, 5-31]. Wie bereits unter 5.4. erwähnt, wurde beobachtet, daß die spezifische Aktivität des OBT im Gleichgewicht etwa um einen Faktor 0,5 bis 0,8 kleiner ist als die des Umgebungswassers. Bei Aufzucht von Algen in Abwässern von kerntechnischen Anlagen fanden Kirchmann et al. [5-44] allerdings sehr viel höhere OBT-Werte als im Kulturmedium. Als Erklärung hierfür läßt sich anführen, daß in tritiumhaltigen Abwässern durchaus tritiummarkierte Biomoleküle, z.B. von pflanzlichen und tierischen Ausscheidungen bzw. von abgestorbenen und autolysierten Organismen, vorkommen können. Solche organischen Verbindungen können von Algen (wie auch z.B. von Muscheln und Fischen) selektiv aufgenommen werden, und mitunter beachtlich akkumuliert werden, wie bei zwei marinen Algen experimentell gezeigt werden konnte (siehe Tab. 5-1).

Alle angebotenen Verbindungen werden innerhalb von 30 Minuten aufgenommen, allerdings bleibt die intrazelluläre Konzentration in vielen Fällen unter der Konzentration im Kulturmedium. Bei einigen Substanzen übersteigt das Verhältnis der Konzentrationen (intrazellulär/extern) deutlich den Wert 1 (L-Leucin 11,4 bei *D. bioculata*, L-Arginin 5,1 und D-Glucose 5,7 bei *A. mediterranea*.) Adenin wird von beiden Algen gegenüber der Umgebung beträchtlich konzentriert, bei *D. bioculata* sogar um mehr als das Hundertfache, wie man es in Laborversuchen unter Verwendung von synthetisch markierten Biomolekülen mit hoher spezifischer Tritiumaktivität beobachten kann [5-45]. Das Verhalten des Tritiums ist in diesem Falle extrem abhängig von der chemischen Form des "Trägermoleküls".

Konzentrationsverhältnisse (intrazellulär / extrazellulär)		
	<i>Dunaliella bioculata</i>	<i>Acetabularia mediterranea</i>
Thymidin-methyl- ³ H	0,8	1,8
Adenin-2- ³ H	122,7	4,6
Uridin-5- ³ H	2,0	0,1
L-Leucin-4- ³ H	11,4	0,3
Glycin-2- ³ H	1,1	0,1
L-Arginin-3.4- ³ H	0,6	5,1
L-Asparaginsäure-2.3- ³ H	1,0	2,3
L-Phenylalanin-2.3- ³ H	0,5	2,6
D-Glucose-1- ³ H	0,4	5,7
D-Glucose-6- ³ H	0,9	2,7

Tab. 5-1: Aufnahme verschiedener tritiierter organischer Verbindungen durch die Meeresalgen *Dunaliella bioculata* und *Acetabularia mediterranea* [5-45]. Angegeben sind die Verhältnisse der Konzentrationen in den Zellen zur Konzentration im Kulturmedium nach einer Expositionszeit von 30 Minuten.

In den erwähnten Untersuchungen zum Verhalten von Tritium in Fischen zeigte sich, daß sich beim OBT dieser Fische in etwa die Verhältnisse widerspiegeln, wie sie in der organischen Substanz des Futters vorliegen. Kurzzeitige Expositionen durch Tritiumwasser in einem aquatischen Ökosystem wirken sich dabei auf die OBT-Fraktion kaum aus. Bei jungen Fischen stellt sich jedoch in diesem Kompartiment mit einer Halbwertszeit von 18 bis 32 Tagen in etwa die spezifische Tritiumaktivität ein, die entsprechend auch im Futter vorliegt [5-41].

Abgesehen von dem bekannten Phänomen, daß Algen organische Verbindungen konzentrieren können, wurden aus den Ergebnissen zahlreicher experimenteller Studien von künstlichen aquatischen Nahrungsketten, wie sie von Blaylock zusammengestellt wurden [5-40], keine Hinweise darauf gefunden, daß Tritium beim Transport in Nahrungsnetzen angereichert wird.

Für Dosisabschätzungen läßt sich ableiten, daß kollektive Dosen von Bevölkerungen mehr durch den direkten Konsum von kontaminiertem Wasser beeinflußt werden als durch den Verzehr von kontaminierte Nahrung [5-40]. Beim Verzehr von Fischen ist außerdem noch der Fall zu berücksichtigen, daß die Fische nach dem Fangen und vor dem Verzehr in tritiumarmer Umgebung gewässert werden, nur der OBT-Anteil verbleibt. Von diesem OBT werden mehr als 90 % bei der Ver-

dauung im Menschen wieder zu HTO umgewandelt. Maximal 10 % gehen in den Organismus als OBT ein.

5.6 Tritium in Tieren und Menschen

5.6.1 Aufnahme von Tritium

Wegen der geringen Reichweite der Tritium - β -Strahlung besteht eine radiologische Gefährdung durch Tritium nur durch Inkorporation. Tritiierte Substanzen können auf verschiedenen Wegen in den Körper gelangen, zum einen durch Ingestion und zum anderen durch Inhalation oder Hautabsorption. HTO kann im Trinkwasser oder im Wasseranteil der Nahrung enthalten sein, bzw. es entsteht bei der Energiegewinnung aus der Nahrung (Verbrennung). Dampfförmiges HTO wird aus der Atmosphäre durch Inhalation und durch Absorption über die Haut in den Körper aufgenommen. Im Ruhezustand sind die Aufnahmeraten von HTO über beide Pfade in etwa gleich groß. Bei körperlicher Aktivität ist die Aufnahme durch Inhalation etwa doppelt so hoch wie durch Hautabsorption. Wenn tritiertes Wasser mit der Haut in Kontakt kommt, durchdringt es die äußere Hautschicht und diffundiert anschließend in den Körper.

Befindet sich HT in der Atmosphäre, dann wird vor allem die Lunge exponiert, die Haut ist relativ undurchlässig für HT. Ein geringer Anteil des inhalierten HT von 0,004 % löst sich im Blut und wird im Körper verteilt. Hiervon wird wiederum ein geringer Anteil zu HTO umgewandelt, vermutlich durch hydrogenasehaltige Bakterien im Verdauungstrakt. Nach Abbruch der Exposition wird im Blut gelöstes HT wieder exhalirt.

OBT kann über pflanzliche oder tierische Nahrungsmittel aufgenommen werden. Ein Teil wird im Körper zur Energieerzeugung wieder zu HTO umgewandelt; der andere Teil wird direkt zum Aufbau körpereigener organischer Stoffe benutzt.

Befindet sich erst einmal Tritium in Form von HTO im Körper, wird es im Wasserstoffpool des Körpers verteilt. Die Verteilung des Wasserstoffs lässt sich am Beispiel einer Rattenleberzelle gut beschreiben [5-46] (Abb. 5-1).

Etwa 80 % des Gesamtwasserstoffs einer Zelle befinden sich im Zellwasser bzw. in den austauschbaren Positionen der organischen Substanz, wo der Wasserstoff in O-, S- und N-Bindungen vorliegt. Der Hauptanteil (> 95 %) befindet sich im Zellwasser. Tritium kann sich schnell (innerhalb weniger Minuten) und nahezu gleichmäßig in diesem Pool verteilen. Die restlichen 20 % befinden sich in einer stabilen Bindung an Kohlenstoff in den verschiedensten Biomolekülen, wobei

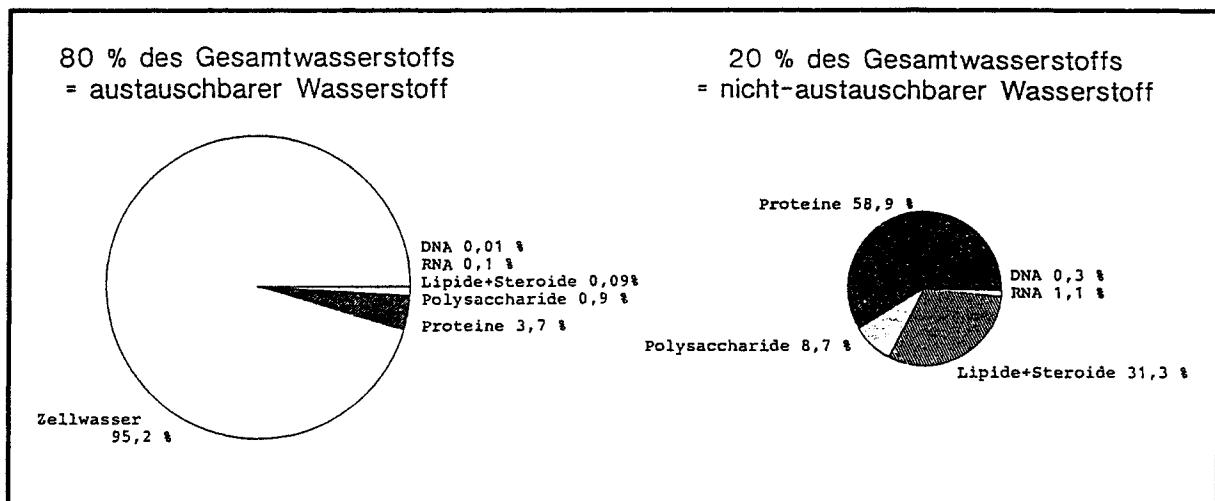


Abb. 5-1: Verteilung des Wasserstoffs in einer Rattenleberzelle in austauschbaren (80 %) und nicht-austauschbaren Wasserstoff (20 %) sowie in verschiedenen Biomolekülen [Werte aus 5-46].

sich der Hauptanteil in Proteinen und Fetten befindet. Nur 0,3 % des nicht-austauschbaren Wasserstoffs der Zelle können der DNA, dem besonders strahlensensiblen Erbmaterial, zugeordnet werden. Bei Stoffwechselreaktionen wird Tritium auch in diese Bindungen eingebaut. In welchem Ausmaß Tritium inkorporiert wird, hängt ab von der Expositionsdauer und von der Stoffwechselaktivität der einzelnen Organe und des ganzen Organismus.

5.6.2 Ausscheidung von Tritium

Tritium folgt dem Kreislauf des normalen Körperwassers, d.h. es wird durch die Neuaufnahme von inaktivem Wasser allmählich wieder ausgespült durch Exkretion, Transpiration und mit der Atemluft. Durch Messung der spezifischen Tritiumkonzentration im Urin kann man den Konzentrationsverlauf im Körperwasser nach einer Tritiumexposition verfolgen (siehe Abb. 5-2).

Die Kurve zeigt einen logarithmischen Verlauf, der sich mathematisch durch eine Exponentialfunktion mit drei Termen beschreiben lässt [5-48]:

$$A(t) = A \cdot e^{-\frac{\ln 2}{T_1} t} + B \cdot e^{-\frac{\ln 2}{T_2} t} + C \cdot e^{-\frac{\ln 2}{T_3} t} \quad (5-6)$$

Der erste Term entspricht dem Wasserumsatz im Körper; die Halbwertszeit T_1 ist daher abhängig von der Größe des Wasserkompartiments (entsprechend Körpergröße bzw. Alter) und dem täglichen Wasserumsatz. Für die Referenzperson [5-1]

wird ein Wassergehalt von 42 000 g und ein Umsatz von 3 000 g pro Tag angenommen. Daraus berechnet sich eine Halbwertszeit von ca. 10 Tagen. Bei einem 1-jährigem Kind beträgt diese Halbwertszeit nur 3,5 Tage. Aufgrund verschiedener Lebensgewohnheiten und Umgebungstemperaturen schwankt die biologische Halbwertszeit bei einem Erwachsenen jedoch zwischen 4 und 18 Tagen.

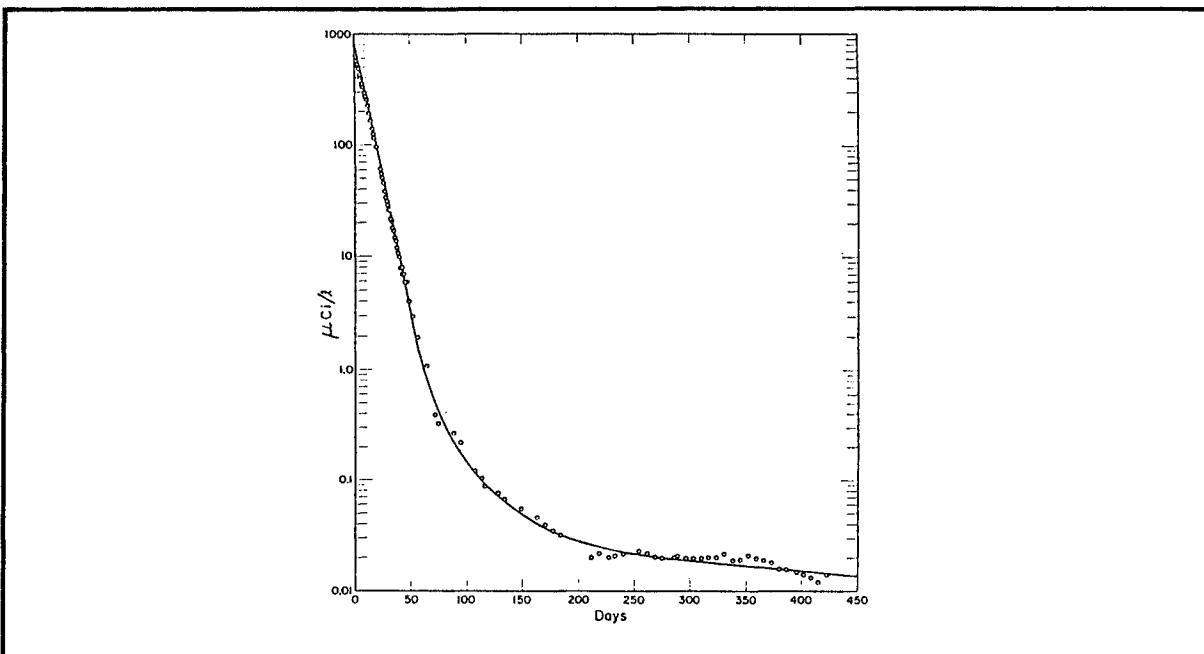


Abb. 5-2: Verlauf der Tritiumkonzentration im Urin eines Arbeiters nach kurzzeitiger Inhalation von HTO, mit einer durch Regressionsanalyse angepaßten Kurve (aus [5-47]).

In Tierversuchen (z.B.[5-46]) wurde ermittelt, daß 97 % der als HTO inkorporierten Tritiummenge entsprechend dem Wasserumsatz aus dem Körper wieder ausgeschieden werden. Etwa 3 % werden wesentlich langsamer ausgeschieden, weil dieses Tritium in organische Verbindungen eingebaut wurde. Dies wird mathematisch durch die beiden letzten Terme in der Gleichung 5-6 ausgedrückt. Die Retention dieses Anteils hängt von der metabolischen Aktivität der einzelnen Organe und von der Erneuerungsrate verschiedener Biomoleküle ab. So sind z.B die Halbwertszeiten von OBT in der Leber oder Niere kürzer als im Gehirn oder in der Haut. Proteine in Strukturmaterialien werden schneller erneuert als z.B. DNA-Moleküle.

Die relativ lange biologische Halbwertszeit von Tritium in der DNA (z. B. 318 Tage in der Leber-DNA von Mäusen) muß in Relation gesehen werden zu der geringen Menge an DNA (0,3 % des nicht-austauschbaren Wasserstoffs, siehe auch Abb. 5-1) und zu der niedrigen Einbaurate von Tritium in die DNA. Nicht-austauschbar

gebundenes Tritium kann in der DNA nur während deren Synthese gebildet werden und diese geschieht nur in proliferierenden (sich teilenden) Zellen. Das Tritium verbleibt dann in der DNA bis zum Zelltod. Beim Erwachsenen gibt es weniger proliferierende Zellen (z.B. im Knochenmark) als im Embryo oder im jugendlichen Organismus. Die Auswirkung des Tritiumeinbaus in die DNA auf die Dosis wird im nächsten Kapitel diskutiert.

Die Halbwertszeiten für das zweite Kompartiment liegen beim erwachsenen Menschen zwischen 20 und 36 Tagen und für das dritte Kompartiment zwischen 200 und 550 Tagen. Für die Dosisberechnung nach ICRP 56 [5-48] wird eine gleichmäßige Tritiumverteilung im Körper angenommen, und die beiden letzten Terme der Gleichung 5-6 werden zu einem zusammengezogen.

$$A(t) = 0,97 \cdot e^{-\frac{\ln 2}{T_1} t} + 0,03 \cdot e^{-\frac{\ln 2}{T_2} t} \quad (5-7)$$

Die im ICRP-Modell verwendete Halbwertszeit wird aus der Kohlenstoffmasse der Referenzperson [5-1] von 16 kg und dem Kohlenstoffumsatz von 0,3 kg pro Tag berechnet. Daraus ergibt sich die Halbwertszeit T_2 für OBT von ca. 40 Tagen für einen Erwachsenen; für ein 1-jähriges Kind dagegen errechnet sich ein Wert von 15 Tagen. Der Anteil des OBT an der Gesamtdosis nach Aufnahme von Tritium als HTO wird mit etwa 10 % veranschlagt.

Mit Hilfe der biokinetischen Daten lässt sich ein Dosisfaktor errechnen, mit welchem die Äquivalentdosis pro Bq aufgenommene Aktivität für verschiedene Organe abgeschätzt werden kann. Der 1979 in ICRP 30 [5-1] vorgeschlagene Dosisfaktor für Ingestion oder Inhalation von HTO von $1,7 \cdot 10^{-11}$ Sv/Bq für Erwachsene (Gesamtkörper) wurde nach Überarbeitung in ICRP 56 [5-48] auf $1,6 \cdot 10^{-11}$ Sv/Bq gesenkt, obwohl hier zusätzlich OBT berücksichtigt wird. Zum Vergleich, für ein 3 Monate altes Kind wird ein Dosisfaktor von $5,5 \cdot 10^{-11}$ Sv/Bq für die HTO-Aufnahme angegeben.

5.6.3 Einfluß des OBT auf die Dosis

OBT kann von der Bevölkerung, die in der Umgebung von Tritiumemittenten lebt, über pflanzliche oder tierische Nahrungsmittel aufgenommen werden. Ein gewisser Anteil des OBT, der nicht zur Energieerzeugung benutzt wird (z.B. essentielle Aminosäuren, Monosaccharide, Fettsäuren), wird direkt zum Aufbau körpereigener Proteine, Kohlenhydrate und Fette verwendet.

Der Einbau von Tritium in die verschiedenen Organe hängt von der metabolischen Aktivität der Organe und von der chemischen Form des aufgenommenen OBT, also Kohlenhydrate, Fette oder Proteine, ab. Bei Fütterungsexperimenten wurden hohe Einbauraten in Leber und Nieren und geringe Einbauraten in Gehirn, Muskel- und Fettgewebe gefunden [5-49].

Wenn Tritium als OBT aufgenommen wird, kommt dem OBT-Kompartiment relativ eine größere Bedeutung zu, da mehr Tritium in den Pool des nicht-austauschbaren Wasserstoffs inkorporiert wird als bei einer HTO-Aufnahme. In Tiersuchen, bei denen die gleiche Tritiumaktivität einmal als HTO und einmal als tritierte Nahrung über einen Zeitraum von vier Wochen an Kaninchen verabreicht wurde, war die spezifische Aktivität im OBT verschiedener Organe bei OBT-Fütterung 2 bis 9 mal höher als bei HTO-Fütterung [5-49]. Bei Versuchen mit Kälbern und Ferkeln [5-50], die ähnliche Ergebnisse erbrachten, wurde außerdem gezeigt, daß weniger als 1 % der als HTO verabreichten Aktivität im OBT der tierischen Gewebe wiedergefunden wurde. Nach Verabreichung von tritiertem Milchpulver oder tritierten Kartoffeln wurden ca. 4 bzw. 11 % der verabreichten Tritiumaktivität im OBT der Tiere gefunden.

Der Anteil des OBT an der Dosis bei kurzzeitiger und chronischer Exposition mit Tritium im Trinkwasser bzw. in der Nahrung wurde experimentell von Komatsu et al. [5-51] bestimmt. Dabei zeigte sich, daß die berechnete Dosis in der Leber von Mäusen nach einer chronischen Exposition mit gleichen Aktivitätsmengen an HTO und tritiierter Nahrung nahezu gleich groß war. Obwohl wesentlich mehr Tritium in die DNA eingebaut wurde als bei einer kurzzeitigen Exposition, trug das Tritium in der DNA nur zu 5 % zur Gesamtdosis bei.

Bei einer kurzzeitigen Tritiumexposition dagegen hatte der Einbau von Tritium in körpereigene organische Stoffe einen größeren Einfluß auf die Dosis wegen der relativ langen biologischen Halbwertszeit einzelner Komponenten, wie z.B. der DNA. Der Beitrag zur Gesamtdosis durch den Einbau von Tritium in die DNA war etwa 19 % nach HTO-Aufnahme und etwa 38 % nach OBT-Aufnahme. Insgesamt war die Dosis bei einer kurzzeitigen OBT-Aufnahme etwa doppelt so hoch wie bei einer HTO-Aufnahme [5-51].

Bei noch wachsenden Kindern und Jugendlichen, wo noch viele Zellen in Teilung begriffen sind und daher viel DNA synthetisiert wird, ist der Anteil des OBT an der Dosis möglicherweise noch etwas größer.

Für die Berücksichtigung des OBT in der Dosisberechnung wird in ICRP 56 [5-48] die Annahme gemacht, daß 50 % des als OBT aufgenommenen Tritiums in koh-

lenstoffgebundenes Tritium umgewandelt wird. Es wird daher folgendes Modell nach Aufnahme von OBT vorgeschlagen:

$$A(t) = 0,5 \cdot e^{-\frac{\ln 2}{T_1} t} + 0,5 \cdot e^{-\frac{\ln 2}{T_2} t} \quad (5-8)$$

Der erste Term beschreibt das Retentionsverhalten von Tritium im Gewebewasser mit der Halbwertszeit T_1 (10 Tage für Erwachsene) und der zweite Term das Verhalten im OBT mit der Halbwertszeit T_2 (40 Tage für Erwachsene). Die Halbwertszeiten beziehen sich wie oben bereits erwähnt, auf den Wasser- bzw. Kohlenstoffumsatz im Körper.

Der aus den biokinetischen Daten berechnete Dosisfaktor beträgt für die Ingestion von OBT bei Erwachsenen $4,0 \cdot 10^{-11}$ Sv/Bq und ist damit 2,5 mal höher als für die Ingestion von HTO [5-48]. Der höchste Dosisfaktor wird mit $1,1 \cdot 10^{-10}$ Sv/Bq für ein 1-jähriges Kind angegeben.

5.6.4 Tritiumanreicherung in den Nahrungsketten

Unter dem Begriff "Tritiumanreicherung" versteht man eine Erhöhung des Isotopenverhältnisses von Tritium zu Wasserstoff in zwei miteinander in Verbindung stehenden Systemen. Tritium hat wegen seiner höheren relativen Masse gegenüber Wasserstoff (etwa 3:1) ein anderes reaktionskinetisches Verhalten. Die langsameren Reaktionsgeschwindigkeiten von Tritium führen zu der Spekulation, daß Tritium in bestimmten Teilen biologischer Systeme zurückgehalten werden könnte. Das würde bedeuten, daß die Tritiumkonzentration in einem Organismus oder in einem bestimmten Organ höher wird als die Tritiumkonzentration im Trinkwasser, in der Nahrung oder in der Luftfeuchtigkeit.

Das Verhältnis der spezifischen Aktivitäten in der organischen und wässrigen Fraktion eines Organismus wird häufig als Indikator dafür benutzt, das Ausmaß der Tritiumrückhaltung eines biologischen Systems zu beurteilen. Bei der Anzucht von Luzerne in Hydrokultur mit HTO wurde ein Verhältnis OBT/HTO von 0,8 [5-52] und bei der Anzucht von Algen ein OBT/HTO-Verhältnis von 0,75 [5-31] gefunden, was eindeutig auf eine Diskriminierung von Tritium hindeutet.

Wenn Tritium bereits in organische Verbindungen eingebaut worden ist, wird es beim Abbaustoffwechsel wiederum diskriminiert, so daß es theoretisch zu einem Rückstau von Tritium kommen könnte. Diese Möglichkeit wurde nur bei einigen Zwischenprodukten des Citratzyklus bei Algen beobachtet [5-30]. Diese Verbindungen stellen jedoch nur einen sehr kleinen Anteil gegenüber denjenigen dar,

bei denen Tritium während der Synthese diskriminiert wird. Von theoretischen Überlegungen her kann es deshalb nicht zu einer Anreicherung von Tritium in einem Organismus oder in der Nahrungskette kommen.

Mit verschiedenen Tieren durchgeführte Experimente und Analysen von im Freiland lebenden Tieren, die erhöhten Tritiumkonzentrationen in ihrer Umwelt ausgesetzt waren, ergaben auch keinerlei Hinweise auf eine Tritiumanreicherung.

So wurden z.B. Kaninchen über 3 Generationen einer konstanten Tritiumkonzentration in der Nahrung und im Trinkwasser ausgesetzt. Das Verhältnis der spezifischen Tritiumkonzentration im OBT und im Gewebewasser lag bei den verschiedenen Organen zwischen 0,85 (Gehirn) und 1,02 (Leber). Diese Werte sind Mittelwerte über die verschiedenen Generationen, wobei die Schwankungsbreite sehr gering war. Der Mittelwert über alle Tiere und Organe war 0,98. Dieses Ergebnis belegt, daß die Tritiumkonzentrationen in den Tieren mit ihrer Umgebung im Gleichgewicht waren [5-53].

Der Einbau von Tritium in organische Bestandteile von Sekretionsprodukten wurde durch Analyse der Milch von Kühen und Ziegen untersucht [5-54, 5-55]. Nach 4-wöchiger OBT-Fütterung war die höchste Konzentration im Milchfett; das Konzentrationsverhältnis zur tritierten Nahrung (Heu) betrug 0,84. Nach chronischer HTO-Fütterung war die höchste Konzentration im Milchwasser, das etwa 86 % der Gesamtmilch ausmacht, und wesentlich weniger Tritium in den organischen Bestandteilen. Das bedeutet, auch in den Sekretionsprodukten, welche die mittlere OBT-Konzentration in den Organen widerspiegeln, wird Tritium nicht angereichert.

In den USA wurden die Organe von 52 Rehen analysiert, die auf einem abgeschlossenen Gelände lebten, auf dem sich mehrere tritiumemittierende Anlagen befanden. Die Tiere waren unterschiedlichen Tritiumkonzentrationen in der Atemluft, im Trinkwasser und in der Nahrung ausgesetzt, einmal wegen der schwankenden Tritiumabgaben aus den Anlagen und zum anderen, weil sich die Tiere über das gesamte Gelände bewegten [5-56]. Diese Situation einer chronischen Tritiumexposition wird auch bei einem Dosismodell für eine Referenzperson angenommen, die ständig am Ort einer erhöhten Tritiumkonzentration lebt und ihre gesamte Nahrung sowie ihr Trinkwasser von diesem Ort bezieht.

Die Analyseergebnisse zeigten, daß die Tritiumkonzentrationen im Körperwasser und in der organischen Substanz der einzelnen Tierorgane weitgehend den Tritiumgehalt ihrer Umgebung widerspiegeln. Die über die verschiedenen Organe (Herz, Leber, Milz, Nieren, Gehirn, Muskeln und Fettgewebe) gemittelten Konzentrationen im Gewebewasser lagen zwischen 0,16 und 2,0 Bq/ml. Bei etwa ei-

nem Drittel der Tiere war die mittlere Tritiumkonzentration im Gewebewasser und im OBT im Gleichgewicht. Dabei gab es jedoch Schwankungen in beide Richtungen (größer und kleiner 1) bei verschiedenen Organen im gleichen Tier.

Bei den Tieren mit hohen Konzentrationen im Gewebewasser war die Konzentration im OBT meist niedriger (Verhältnis OBT/HTO ist kleiner 1), d.h. die Tritiumaufnahme lag noch nicht sehr lange zurück; Tritium wurde noch vom Gewebewasser ins OBT eingebaut. Bei den Tieren mit niedrigen Konzentrationen im Gewebewasser wurde meist eine höhere Konzentration im OBT gemessen (Verhältnis OBT/HTO bis zu 2,37). Die höhere Konzentration im OBT bedeutet jedoch nicht, daß Tritium angereichert wurde, sondern nur, daß keine Gleichgewichtsbedingungen mehr vorlagen. Die Tritiumexposition dieser Tiere mußte schon längere Zeit zurückliegen, und da die Konzentration im Gewebewasser wesentlich schneller sinkt als im OBT, wurde zum Zeitpunkt der Analyse bereits wieder Tritium vom OBT ins Gewebewasser abgegeben.

5.7 Auswirkungen von Tritiumemissionen auf die Umwelt

Bei Dosisabschätzungen in der Umgebung von Anlagen, die zu genehmigen sind, wird vom Gesetzgeber verlangt, konservative Annahmen zu treffen, um sicherzustellen, daß die Dosis nicht unterschätzt wird. Dabei werden sogenannte "worst case"-Bedingungen angenommen. Das bedeutet, daß zum Zeitpunkt der Freisetzung pessimistische Bedingungen für die atmosphärische Ausbreitung, die Deposition an Boden und Vegetation sowie für die Reemission von Tritium herrschen. Die Dosis wird dann für eine Referenzperson ermittelt, bei der durch ständigen Aufenthalt an der ungünstigsten Einwirkungsstelle der Abluftfahne und durch Verzehr dort erzeugter Lebensmittel die höchste Strahlenexposition zu erwarten ist (vgl. [5-27] und Kap. 6).

Für risikoorientierte Abschätzungen der Konsequenzen unfallbedingter Tritiumfreisetzungen können darüber hinaus probabilistische Analysen mit realitätsnahen Berechnungsverfahren durchgeführt werden. Diese werden ebenfalls in Kap. 6 beschrieben.

5.7.1 Kurzzeitige Freisetzungen

Bei einer kurzzeitigen Freisetzung von Tritium (HT oder HTO) wird vor allem die nähere Umgebung des Emittenten in der jeweils vorherrschenden Windrichtung kontaminiert. Mit Ausbreitungsmodellen läßt sich die Tritiumkonzentration in der Atmosphäre in einer bestimmten Entfernung berechnen. Daraus wird die Tri-

tiumkonzentration im Boden und in der Vegetation abgeleitet. Bei der Dosisabschätzung durch Inhalation und Hautabsorption muß neben der Tritiumkonzentration in der bodennahen Luft während des Vorbeiziehens der Abluftwolke noch die Tritiumkonzentration nach dem Vorbeiziehen der Wolke infolge Reemission von HTO von Boden und Vegetation berücksichtigt werden.

In Abb. 5-3 sind die Schlüsselprozesse der Ausbreitung und des Transports von HT in der Umwelt, die bereits in den Kapiteln 5.1 und 5.2 beschrieben wurden, schematisch dargestellt. Der Hauptunterschied gegenüber einer HTO-Emission, für die viele dieser Prozesse auch gültig sind, besteht darin, daß die primäre HT-Wolke durch eine sekundäre HTO-Wolke überlappt wird, welche von der Oberfläche emittiert wird, wo HT mit dem Boden in Berührung gekommen ist. Wegen der etwa 104-fach höheren Radiotoxizität des HTO ist es offensichtlich, daß der Hauptteil der Strahlenbelastung nach einer HT-Emission von der sekundären HTO-Wolke zu erwarten ist. Die primäre HT-Wolke liefert dagegen nur einen geringen Beitrag zur Dosis.

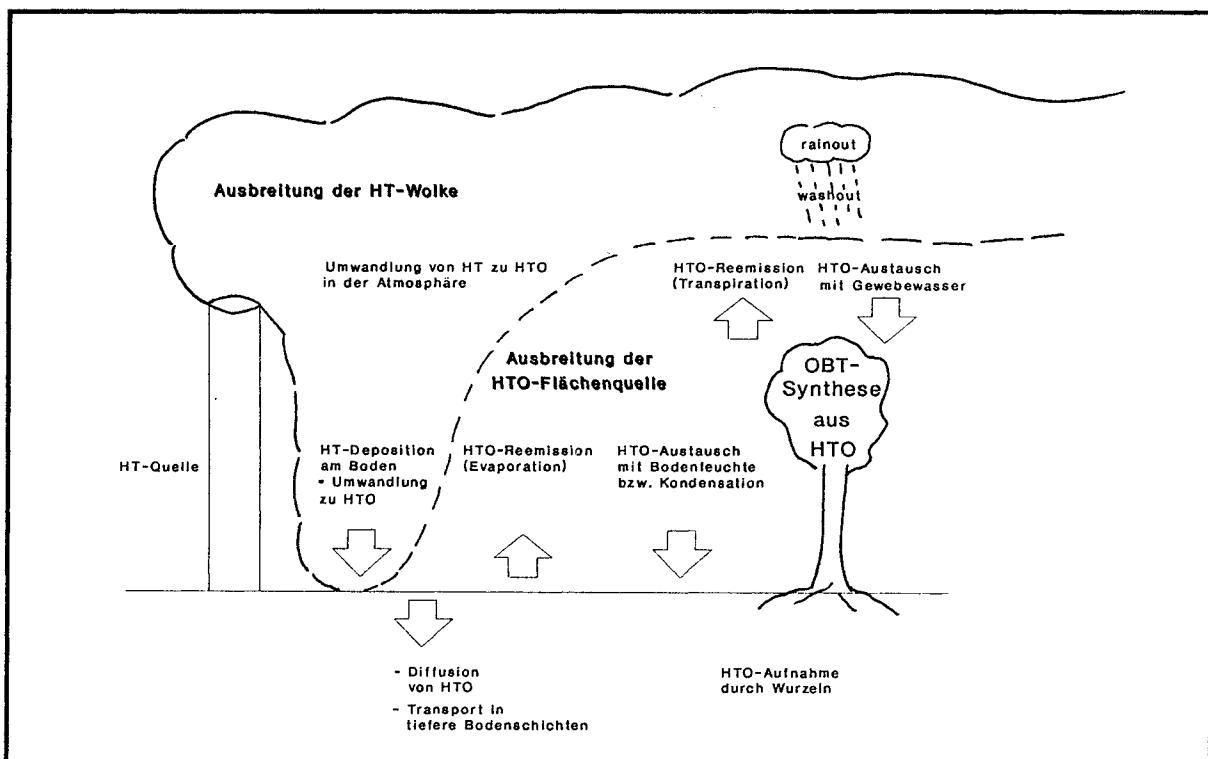


Abb. 5-3: Schematische Darstellung der Schlüsselprozesse bei der Ausbreitung und beim Transport von HT in der Umwelt.

Auch die Vegetation wird durch HT indirekt kontaminiert, indem das im Boden oxidierte HT über die Wurzeln aufgenommen wird oder indem atmosphärisches HTO, das durch Reemission dorthin gelangt, mit dem Gewebewasser der Blätter

austauscht. Das Ausmaß des OBT-Einbaues ist entscheidend von der Expositions-dauer mit HTO abhängig. Diese dauert bei einer HT-Freisetzung länger als bei einer HTO-Freisetzung (siehe Kapitel 5.2.2).

Die Dosis durch Ingestion von kontaminierten Nahrungsmitteln kann ebenfalls mit Hilfe geeigneter Modelle berechnet werden. In [5-57] wurde eine Auswahl von Modellen hinsichtlich ihrer Annahmen verglichen, die relevant sind für die Dosisberechnung über den Ingestionspfad. Einige Modelle sind nicht speziell für Tritium ausgelegt, d.h die Bildung von OBT in Lebewesen und die Aufnahme von Tritium als OBT werden nicht berücksichtigt. Dieser Pfad ist jedoch für eine realistische Dosisabschätzung notwendig, denn der Beitrag zur Dosis beträgt etwa 30-50 % [5-58]. Die sehr unterschiedlichen Annahmen in den Modellen sind zum Teil abhängig vom jeweiligen Standort (z.B. Anteil der Nahrung und des Trinkwassers aus nicht-kontaminierten Gebieten).

5.7.2 *Chronische Freisetzungen*

Bei der Modellierung von Tritiumemissionen während des Normalbetriebs wird angenommen, daß es bei chronischen Emissionen zu einem Gleichgewicht zwischen der Tritiumkonzentration in der Atmosphäre und der Tritiumkonzentration in den Einzelsystemen der Umgebung kommt. Für chronische HTO-Emissionen kann deshalb auf relativ einfache Weise mit dem "spezifischen Aktivitätsmodell" gerechnet werden.

In der Umgebung eines HTO-Emittenten sind die Mittelwerte der Konzentrationen im Bodenwasser ähnlich der Konzentration im Regenwasser, die wiederum etwas geringer ist als in der Luftfeuchte [5-3]. Die Konzentration im Gewebewasser der Pflanzen liegt generell zwischen der Konzentration in der Luftfeuchte und im Bodenwasser. Die Konzentration im OBT der Pflanzen sollte theoretisch etwas niedriger als im Gewebewasser sein. In der Praxis werden jedoch in der Umgebung von Tritiumemittenten oft etwas höhere Werte im OBT als im Gewebewasser gemessen. Mögliche Gründe hierfür werden im Kapitel 5.4.3 diskutiert.

In Tieren, die über Atmosphäre und Nahrung mit HTO exponiert sind, wird die Tritiumkonzentration im Körperwasser vor allem durch das Trinkwasser bestimmt, das zum Teil vom Regenwasser stammt. Tatsächlich wurden in der Umgebung der Savannah- River-Anlage ähnliche Tritiumkonzentrationen (Jahresmittelwerte) in der Kuhmilch und im Regenwasser gefunden [5-3]. Die Konzentration in der organischen Fraktion der Tiere ist etwas niedriger als im Körperwasser; bei überwiegendem Tritiumanteil im OBT der Nahrung kann die OBT-

Konzentration im Tier auch höher als im Körperwasser sein. Trotz großer Schwankungen in den Einzelmessungen kann man sagen, daß die mittlere Tritiumkonzentration in den Tieren der ihrer Umgebung entspricht [5-56].

5.7.3 Globale Ausbreitung von Tritium

Globale Ausbreitungsmodelle für Tritium basieren auf einer Beschreibung des globalen Wasserkreislaufes. Ein relativ einfaches Modell, das von NCRP 62 [5-59] vorgeschlagen wurde, enthält die 7 Wasserkompartimente Atmosphäre, Bodenoberfläche, fließende Oberflächengewässer (Flüsse und Ströme), stehende Oberflächengewässer (Inlandseen und Salzseen mit geringem oder keinem Zu- bzw. Abfluß), Grundwasser, die gut durchmischte obere Schicht der Ozeane (0-75 m) und das Tiefenwasser der Ozeane (unter 75 m). Das Modell ist ausschließlich für Tritiumfreisetzung als HTO konzipiert. Die Wasserinventare und die mittleren Verweilzeiten des Wassers in den einzelnen Kompartimenten sind in Tabelle 5-2 angegeben.

Kompartiment	Wasservolumen $1 \cdot 10^{14} \text{ m}^3$	mittlere Verweilzeit von Wasser
Atmosphäre	0,13	11 Tage
Bodenoberfläche	0,67	200 Tage
fließende Oberflächengewässer	1,26	4,1 Jahre
stehende Oberflächengewässer	1,04	210,0 Jahre
Grundwasser	83,50	330,0 Jahre
Ozeane (0-75 m)	270,00	13,8 Jahre
Tiefsee (unter 75 m)	12900,00	810,0 Jahre

Tab. 5-2: Wasserinventare der verschiedenen globalen Kompartimente und mittlere Verweilzeiten von Wasser [nach 5-59].

Auf der Grundlage des 7-Kompartiment-Modells wurde von Killough und Kocher [5-60] ein weiter verfeinertes Modell vorgeschlagen (siehe Abb. 5-4). Zunächst ist es nur für HTO konzipiert. Eine erweiterte Version für HT wurde jedoch von den Autoren angekündigt, da die Verweilzeit des HT in der Atmosphäre und damit die globale Mobilität beträchtlich höher ist. Die ermittelte Halbwertszeit von HT in der Atmosphäre beträgt 4,8 Jahre (siehe Kapitel 5.1.2); dagegen wurde für HTO nur eine mittlere Verweilzeit von 11 Tagen geschätzt [5-59].

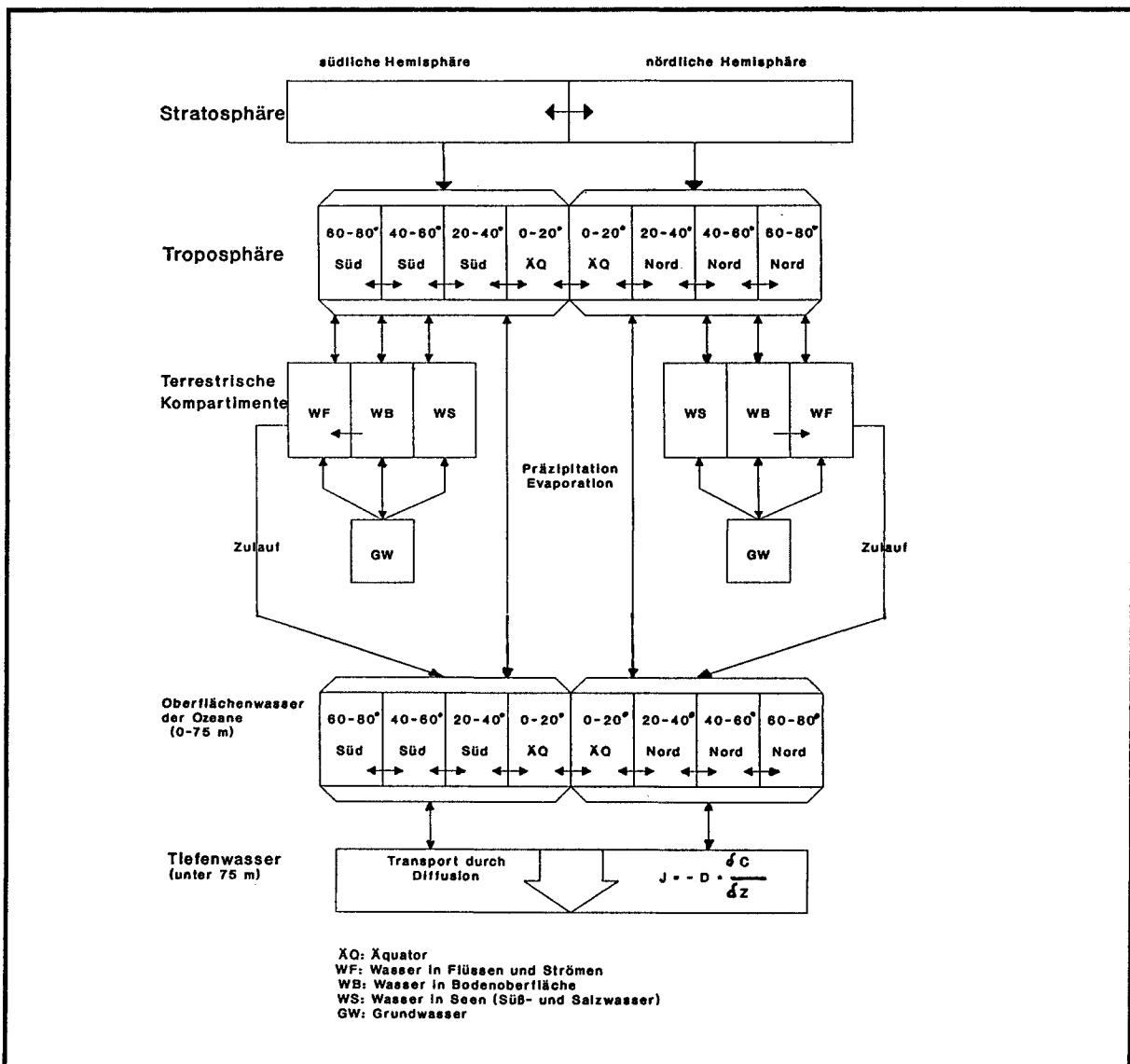


Abb. 5-4: Das globale Transportmodell für Tritium (HTO) nach Killough und Kocher [5-60].

In dem Modell wurde berücksichtigt, daß in Niederschlägen über den Ozeanen 3-4 mal niedrigere Tritiumkonzentrationen als über dem Land gefunden werden. Durch die Evaporation von Wasser mit relativ niedriger HTO-Konzentration aus den Ozeanen wird die Tritiumkonzentration in der Atmosphäre darüber verdünnt. In dem Modell erfolgte weiterhin eine Unterteilung der Atmosphäre in Stratosphäre und Troposphäre. Stratosphäre, Troposphäre, die terrestrischen Kompartimente und das Oberflächenwasser der Ozeane (0 - 75 m) wurden in nördliche und südliche Hemisphäre, die Troposphäre und das Oberflächenwasser der Ozeane zusätzlich in 8 Breitenzonen unterteilt. Dadurch wurde eine bessere Berücksichtigung einer ungleichmäßigen Bevölkerungsverteilung möglich. Das

Tiefenwasser der Ozeane (unter 75 m) wird als ein Kompartiment betrachtet, und der Austausch mit dem Oberflächenwasser wird durch ein Diffusionsmodell simuliert.

In [5-60] wurde gezeigt, daß das Modell die gemessenen Umweltkonzentrationen reproduzieren kann, unter der Annahme, daß etwa 50 % der bei den Kernwaffentests in der Atmosphäre freigesetzten Tritiummenge als HTO in die nördliche Stratosphäre gelangt sind. Für eine angenommene, gleichmäßig verteilte Freisetzung von 1 TBq HTO in die Troposphäre wurde eine Kollektivdosis von $7,8 \cdot 10^{-4}$ Personen-Sievert, bezogen auf eine Weltbevölkerung von $5 \cdot 10^9$ Menschen, errechnet.

5.8 Somatische und genetische Wirkungen von Tritium

Die beim Zerfall von Tritium im Körper entstehenden β -Strahlen können, ähnlich wie andere Formen ionisierender Strahlung, cancerogene und genetische Wirkungen induzieren. Die geringe Reichweite der β -Teilchen (5,7 keV mittlere Energie) von etwa 6 μm in Wasser (Weichgewebe) hat zunächst zur Folge, daß die Strahlenwirkung auf eine kleine Umgebung des Radionuklides beschränkt bleibt. Es ist experimentell gut abgesichert, daß für cancerogene und genetische Effekte ausschließlich das im Zellkern befindliche Erbmolekül DNA das relevante Strahlentarget ist und eine Bestrahlung des Zytosplasmas demgegenüber praktisch wirkungslos ist. Daraus folgt, daß nur im Zellkern oder in seiner unmittelbaren Nähe vorhandenes Tritium, d.h. die Zellkerndosis, für die Abschätzung der Strahlenwirkung relevant ist. Neben der Berechnung der absorbierten Dosis stellt die Bestimmung der Relativen Biologischen Wirksamkeit der Tritium- β -Strahlung ein weiteres zentrales Problem dar.

Für die Dosisermittlung ist die Gewebeverteilung des mit der Nahrung und dem Wasser aufgenommenen Radionuklides von Bedeutung. Von besonderem Interesse hierbei ist der Einbau von Tritium in nicht-austauschbare Positionen der DNA (Kohlenstoff-Wasserstoff-Bindungen), woraus eine asymmetrische Dosisbelastung bestimmter, mit dem somatischen und genetischen Risiko verknüpfter Zellpopulationen resultiert. Auf die hiermit verbundenen Probleme wird zunächst eingegangen.

5.8.1 Tritium in nicht-austauschbaren Wasserstoffpositionen der DNA

Wie in 5.6.1 spezifiziert, kann über metabolische Prozesse ein Teil des aufgenommenen Tritiums in nicht-austauschbare Positionen von Biomolekülen, insbesondere der DNA, gelangen. Der für die Risikoabschätzung wesentliche Aspekt ist hierbei einmal, daß der Einbau in die DNA nur im Zuge der DNA-Synthese erfolgen kann und somit nur bei bestimmten proliferierenden (sich teilenden) Zellen möglich ist. Zum anderen ist ein derartiger Einbau wegen der hohen metabolischen Stabilität der DNA sehr langlebig und kann zu einer Strahlenbelastung der Zelle während ihrer gesamten Lebensspanne führen. Eine besondere Situation tritt ein, wenn Tritium in Form markierter DNA-Vorstufen inkorporiert wird.

Kritische Zellpopulationen im Körper

Im adulten Organismus gibt es im Gegensatz zum jugendlichen nur wenige proliferierende Gewebe. Risikozellen für den Tritiumeinbau sind in erster Linie proliferierende Zellen, nach deren Exposition es vor allem zur Entstehung von Krebs oder zu genetischen Mutationen kommen kann. Solche Zellen sind beispielsweise die Stammzellen im blutbildenden Gewebe, im Gastrointestinaltrakt und in der Haut, wobei die Stammzellen des Knochenmarks besonders im Hinblick auf die Leukämieinduktion von Bedeutung sind. In den Fortpflanzungsorganen sind Risikozellen die Spermatozyten, Spermatogonien und die Oozyten, deren Schädigung zu genetischen Defekten in der Nachkommenschaft führen kann.

Tritiierte DNA-Vorstufen

Tritiierte Nukleoside der 4 DNA-Basen, z.B. ^3H -Thymidin, werden von proliferierenden Zellen in die DNA eingebaut und bewirken damit eine selektive Exposition des Zellkerns. Die Kerndosis pro Tritiumzerfall hängt unter diesen Bedingungen von der Zellkerngröße ab und schwankt für verschiedene Gewebe der Maus zwischen 1,9 und 6,1 mGy [5-61]. Die von 37 kBq (1 μCi) ^3H -Thymidin pro g Körperfugewicht im markierten Knochenmarksstammzellkern absorbierte Gesamtdosis beträgt bei Ingestion in Mäusen 57 mGy, gegenüber 280 mGy bei intravenöser Injektion [5-62]. Bezogen auf gleiche HTO-Aktivität führt die orale Aufnahme des markierten Nukleosids zu einer 10 mal höheren Stammzellexposition (bei Injektion 50-fach).

Der Transmutationseffekt

Beim Einbau des Tritiums in eine Kohlenstoff-Wasserstoff-Bindung der DNA, wie er beispielsweise nach Inkorporation von ^3H -Thymidin vorliegt, ist neben der Emission eines β -Teilchen auch die mögliche biologische Bedeutung der Transmutation von Tritium zu ^3He zu berücksichtigen. Hierbei kommt es zur Zerstörung dieser Bindung unter Bildung eines positiv geladenen und reaktiven Carbonium-Ions, welches molekulare Folgereaktionen und Strukturumwandlungen auslöst. Hinweise auf eine biologische Relevanz des Transmutationseffektes in Form positionsspezifischer Effekte resultieren vielfach aus Experimenten an bakteriellen Systemen, in deren DNA tritierte DNA-Vorstufen eingebaut wurden. So wurde an Coli-Bakterien eine höhere Mutationseffizienz beobachtet, wenn der Tritiumzerfall an der 5-Position des Pyrimidinringes stattfand, gegenüber einer Markierung der unmittelbar benachbarten 6-Position [5-62].

Im Hinblick auf die Bedeutung des Transmutationseffektes für das radiologische Tritiumrisiko ist zunächst zu berücksichtigen, daß das Experimentieren mit tritierten DNA-Vorstufen in erster Linie ein laborpraktischer Kunstgriff ist, um die Wirkung selektiver Tritiierung an der DNA zu studieren. Bei der für die Praxis relevanten Tritiumaufnahme mit der Nahrung oder mit dem Wasser ist die Wahrscheinlichkeit, daß das Nuklid in solche spezifischen und empfindlichen DNA-Positionen eingebaut wird, außerordentlich gering, etwa 0,0005 [5-62]. Ferner liegen die biologischen Wirkungen eingebauter Tritiumaktivität innerhalb des Bereiches, der auf Grund der absorbierten Kerndosis im Rahmen der inhärenten dosimetrischen Unsicherheiten zu erwarten ist [5-63]. Ein möglicher Transmutationseffekt läßt sich damit infolge des dominierenden Beitrages der pro Tritium- β -Zerfall an der DNA erzeugten 150 bis 200 Ionisationen nicht auflösen und ist deshalb ohne praktische Bedeutung für das Tritiumrisiko.

5.8.2 Tritiierte Aminosäuren und RNA-Vorstufen

Proteine und RNA sind im Gegensatz zur DNA über die gesamte Zelle verteilt, so daß die Kerndosis beim Einbau markierter Vorstufen, der auch in nicht-proliferierenden Zellen stattfindet, derjenigen von zufallsverteilter Tritiumaktivität entspricht. Tritiierte Aminosäuren können auch in Proteinkomponenten des Zellkerns (Histone) eingebaut werden, woraus dann eine ähnliche Kernbelastung resultiert, wie etwa nach ^3H -Thymidin-Einbau. Bei Mäuse-Embryonen waren tritierte Aminosäuren (^3H -Arginin), bezogen auf gleiche Tri-

tiumaktivität, sogar radiotoxischer als ^3H -Thymidin, was auf ihre höhere Einbau-rate zurückführbar war [5-64].

RNA-Vorstufen werden von der Zelle sehr effizient genutzt zur Neusynthese von RNA, die nach ihrer Synthese den Zellkern verläßt, ebenso aber auch zur DNA-Synthese. Die Dosis im Knochenmarksstammzellkern der Maus ist bei Ingestion von 37 kBq (1 μCi) RNA-Vorstufen pro g Körpergewicht im Mittel etwa halb so groß wie im Falle der ^3H -Thymidin-Ingestion [5-65].

5.8.3 Linearer Energie-Transfer (LET) und Relative Biologische Wirksamkeit (RBW) von Tritium- β -Strahlung.

Ein wesentliches Ziel der biologischen Experimente ist die Bestimmung der relati-ven biologischen Wirksamkeit, RBW, der emittierten β -Strahlung gegenüber an-deren Strahlenarten (meist 200-250 kVp-Röntgen- oder ^{60}Co -Gamma-Strahlung). Sie ist definiert als Verhältnis der Energiedosen von Referenzstrahlung zu Test-strahlung zur Erzielung des gleichen Effektausmaßes. Die RBW nimmt innerhalb eines bestimmten Bereiches mit dem Linearen Energie-Transfer (LET; Einheit keV/ μm) der verwendeten Strahlung zu. Die mittleren LET-Werte betragen für die Tritium- β -Strahlung ungefähr 5,5 keV/ μm ; für ^{60}Co - bzw. 200 kVp Röntgen-strahlung liegen sie bei 0,3 bzw. 2,5 keV/ μm [5-66]. Mit zunehmendem LET der Teststrahlung gegenüber der Referenzstrahlung steigt die RBW über den Wert 1. Demzufolge ist auch der erwartete RBW-Wert für Tritium- β -Strahlen größer als 1, wobei i.allg. für ^{60}Co -Referenzstrahlung höhere Werte resultieren als für Rönt-genstrahlen.

Mikrodosimetrische Berechnungen führen zu ähnlichen Schlußfolgerungen. Nach [5-65] ist die RBW der Tritium- β -Teilchen vergleichbar mit derjenigen von 65 kVp Röntgenstrahlen. Bezogen auf ein empfindliches Volumen vom Durchmesser 1 bzw. 5 μm (Zellkerndurchmesser ca. 8 μm) und auf ^{60}Co -Gamma-Referenz-strahlung beträgt die RBW der Tritium- β -Strahlung 3,8 bzw. 2,5. Legt man 65 kVp-Röntgen-Referenzstrahlung zugrunde, liegt die RBW bei 1.

5.8.4 Faktoren, die zu einer Erhöhung der RBW führen

Angesichts der Bedeutung der RBW bei der Beurteilung der Gefährlichkeit einer Strahlung müssen besonders Faktoren in Betracht gezogen werden, die zu deren Erhöhung führen können. Tatsächlich hängt die oben definierte RBW von ver-schiedenen experimentellen Gegebenheiten ab, so natürlich vom Testkriterium selbst, insbesondere aber von der Form der Dosis-Wirkungskurven, aus denen die

RBW-Werte in der Regel ermittelt werden. Nur wenn diese Kurven für beide Strahlungen von gleicher Kinetik sind, ist die RBW unabhängig vom Ausmaß des biologischen Effektes und damit von der Dosis. Dies ist jedoch i.allg. nicht der Fall, da sich Dosis-Wirkungskurven mit zunehmendem LET meist einem linearen Verlauf annähern, während diejenige der locker ionisierenden Referenzstrahlung, bedingt durch eine quadratische Dosiskomponente, gewöhnlich eine konkave Krümmung aufweist. Hierdurch ergibt sich der häufig beobachtete Trend zu höheren RBW-Werten bei geringeren Strahleneffekten und damit Strahlendosen.

Die RBW hängt außerdem von den Dosisleistungen der zu vergleichenden Strahlenarten ab. Da eine Reduktion der Dosisrate (Dosis-Protraktion) in der Regel eine Abflachung der Dosis-Wirkungskurve bedingt, die bei der Referenzstrahlung stärker ausgeprägt ist als bei der i.allg. dichter ionisierenden Teststrahlung, ergibt sich bei protrahierter Bestrahlung ebenfalls ein Anstieg der Tritium- β -RBW.

Auf diese Faktoren ist bei der Bewertung hoher RBW-Werte besonders zu achten, da sonst die Gefahr einer Fehlinterpretation des Tritium-Strahlenrisikos besteht. Grundsätzlich muß davon ausgegangen werden, daß, bezogen auf gleiche Energiedosen, dieses Risiko quantitativ vergleichbar ist mit demjenigen von 60-80 kVp-Röntgenstrahlen (s. oben).

5.8.5 Experimentelle RBW-Werte für kultivierte Zellen und Embryonen

An Zellkulturen und Embryonen lassen sich zahlreiche das somatische und genetische Tritiumrisiko betreffende Untersuchungen besonders vorteilhaft durchführen. So können an Mäuseembryonen *in vitro* neben anderen zytogenetischen Tests Zellproliferation und Entwicklungsprozesse analysiert werden. Der Vorteil des Experimentierens mit kultivierten Säugetierzellen liegt vor allem in der Übersichtlichkeit dieses Modells. So kann selektiv das Verhalten einer einheitlichen Zellpopulation studiert werden, und es entfallen komplizierende Faktoren, wie etwa die Gewebeverteilung von Tritium. Die Exposition erfolgt hier einfach durch Supplementierung des Nährmediums mit der gewünschten tritierten Verbindung. Da genetische und cancerogene Wirkungen auf DNA-Schädigungen individueller Zellen beruhen, bieten *in vitro*-Ergebnisse zugleich eine realistische Basis für die Beurteilung dieser Spätschäden.

Zum Test der Strahlenwirkung an Zellkulturen werden insbesondere Zellabtötung, Mutationsauslösung und Zelltransformation herangezogen. Aus solchen Untersuchungen an Zellen, die in HTO-haltigem Nährmedium kultiviert wurden, ergaben sich, je nach biologischem Test, RBW-Werte (bezogen auf 60-Co-

Strahlung) im Bereich zwischen 1 und 2,5 [5-67, 5-68]. Werte über 3 wurden bei einer Herabsetzung der Dosisleistung von ca. 1 auf 0,001 Gy/min erreicht [5-67] (siehe hierzu 5.8.4). Wurden dem Nährmedium tritierte Aminosäuren anstelle von HTO zugesetzt, so ergaben sich Dosis-Wirkungskurven, die nicht signifikant von denen der HTO-Exposition abwichen [5-68], so daß in beiden Fällen ähnliche RBW-Werte erhalten werden.

Auf der Basis der Blastozystenbildung von in vitro befruchteten Mäuse-Eizellen mit anschließender Kultivierung der Embryonen ergaben sich für HTO RBW-Werte zwischen 1,1 und 1,7, je nachdem in welchem Entwicklungsstadium die Exposition begann [5-69]. RBW-Werte zwischen 1,6 und 2 resultierten aus der Bestimmung von Chromosomenaberrationen in diesem System.

Experimente an kultivierten Präimplantationsembryonen nach ^3H -Thymidin-Einbau ergaben gegenüber einer HTO-Exposition ein 10000-fach erhöhtes Risiko [5-64]. Bezieht man solche Effekte allerdings auf gleiche Zellkerndosen, so bestehen keine signifikanten Unterschiede zwischen HTO-Exposition und DNA-inkorporiertem Tritium [5-63]. Ähnliches gilt für Zellkulturen nach ^3H -Einbau. Auch hier lassen sich die Effekte allein aufgrund der mittleren absorbierten Kerndosis vorhersagen [5-70].

5.8.6 Somatische und genetische Tritiumwirkungen im Tierexperiment

Bei Injektion von ^3H -Thymidin (ca. 37-370 kBq (1-10 μCi)/g Körpergewicht) in verschiedene Maus-Stämme wurde in einigen Experimenten eine Zunahme der Inzidenz verschiedener Tumoren beobachtet [5-71, 5-72]. Andere Studien ergaben keine Zunahme [5-73, 5-74], was möglicherweise mit unterschiedlichen Tumorsuszeptibilitäten der verschiedenen Maus-Stämme zusammenhängt. Das Auftreten von Tumoren unter diesen experimentellen Bedingungen scheint mit Blick auf die bei einer Aktivitätszufuhr von 37 kBq /g Körpergewicht resultierende Dosisleistung von 40 mGy/d in den kritischen Zellen plausibel (s.[5-75], Anhang VI).

Aus einer Reihe von Experimenten an Mäusen, denen Tritium als HTO und ^3H -Thymidin verabreicht wurde, ergaben sich RBW-Werte gegenüber Gamma-Strahlung zwischen etwa 1,3 und 2,5. Dabei wurden verschiedene Wirkungskriterien untersucht, wie Mortalität, Abtötung von Spermatogonien und Organ-Atrophien. (Näheres zu diesen Arbeiten und den damit verbundenen Problemen der Dosisabschätzung und RBW-Ermittlung siehe [5-75], Anhang III).

RBW-Werte zwischen 1 und 3 gegenüber Co- γ -Strahlung wurden für die Abtötung von Oocyten in Mäusen erhalten [5-76]. Hierbei wurde Tritium als HTO wäh-

rend der Schwangerschaft verabreicht. Die weiblichen Tiere des Wurfs wurden im Alter von 2 Wochen auf die Zahl ihrer Oocyten pro Ovar untersucht. Ähnliche Experimente wurden mit Affen durchgeführt. Die Strahlenempfindlichkeit für die Oocytenabtötung war, insbesondere bei den Affen, außerordentlich hoch. Ferner hatte die Tritiumüberlebenskurve einen rein exponentiellen Verlauf. Diese Faktoren dürften jedoch nicht ausschlaggebend sein für die beobachteten hohen RBW-Werte von bis zu 3, denn diese wurden mit den niedrigsten in dieser Arbeit verwendeten Gamma-Dosisleistungen erzielt (vgl. 5.8.4).

5.8.7 *Der Qualitätsfaktor*

Die Abhängigkeit der Strahlenwirkung von der Strahlenqualität wird im Bereich des Strahlenschutzes durch die Angabe der Äquivalentdosis berücksichtigt, die sich durch Multiplikation der absorbierten Dosis mit dem sog. Qualitätsfaktor Q ergibt. Der vom LET abhängige Q-Wert ermöglicht eine grobe Berücksichtigung der Wirkung der untersuchten Strahlung gegenüber einer Referenzstrahlung. Für LET-Werte kleiner als 10 keV/ μ m empfiehlt ICRP den Q-Wert 1 [5-77]. Dieser wurde von diesem Gremium auch für Tritium- β -Strahlen vorgeschlagen [5-78] und diente weltweit als Berechnungsgrundlage für Strahlenschutzzwecke, außer in der UdSSR, wo ein Q-Faktor von 2 verwendet wurde.

Nach Empfehlungen der ICRU [5-79] sollte der Q-Wert allerdings nicht auf den LET, sondern auf den sog. Linealen Energie-Transfer bezogen werden. Diese Zufallsvariable ist definiert als die in einem kleinen Volumen deponierte Energie, dividiert durch den mittleren Durchmesser des Volumens. Durch diese mikrodosimetrische Betrachtungsweise wird insbesondere die für die Dosisberechnung wichtige intrazelluläre Energieverteilung berücksichtigt. Für Tritium- β -Strahlung führt die Anwendung dieses Konzeptes zu einer Erhöhung des effektiven Q-Faktors auf 2 [5-79], was ungefähr dem Mittelwert der experimentellen RBW-Werte entspricht (vgl. 5.8.5 und 5.8.6).

Diesen Vorschlägen ist die ICRP in ihren Empfehlungen von 1990 nicht gefolgt [5-77]. Das Gremium ist insbesondere der Ansicht, daß die bisher benutzten formalen Q-LET-Beziehungen durch die Unsicherheiten in den verfügbaren strahlenbiologischen Daten nicht gerechtfertigt sind. Anstelle des Q-Faktors tritt nun der sog. Strahlen-Wichtungsfaktor, W_r , der auf einer Neubewertung der biologischen Informationen, insbesondere in bezug auf die Vielfalt der Bestrahlungsbedingungen, basiert. Für Photonen, Elektronen (außer Auger-Elektronen) und Muonen aller Energien hat sich die ICRP, sowohl für äußere Bestrahlung des Körpers als auch

für die Exposition durch innere Emittoren, auf den Wert $W_r=1$ festgelegt [5-77], der damit auch für die Tritium- β -Strahlung gilt.

5.9 Forschungsprogramme in der Radioökologie

In den großen Forschungszentren der Welt, in denen Fusionstechnologie bzw. Tritiumtechnologie betrieben wird, gibt es auch Forschungsgruppen auf dem Gebiet der Radioökologie von Tritium. Die experimentellen Arbeiten dienen dabei zur Schaffung einer Datenbasis für Computermodelle, welche die Ausbreitung von Tritium, das dynamische Verhalten von Tritium im Boden, in Vegetation und in Tieren sowie letztendlich die Dosis im Menschen berechnen. Während in den letzten 20 Jahren hauptsächlich grundlegende experimentelle Arbeiten durchgeführt wurden, haben die heutigen Forschungsprogramme vor allem zum Ziel, die vorhandenen Rechenmodelle zu verfeinern.

5.9.1 Ertüchtigung von Computermodellen

Um die Dosisberechnung in der Umgebung von Tritiumemittenten besser den ortsabhängigen Bodenparametern anzupassen, werden die Depositionsgeschwindigkeiten von HT an unterschiedlichen Bodenarten experimentell bestimmt. Diese Arbeiten werden in Frankreich bei CEA Fontenay-aux-Roses durchgeführt. Bei Ontario Hydro (Kanada) wird ein Rechenmodell entwickelt, um die aktuelle Depositionsgeschwindigkeit von HT aufgrund bekannter Bodenparameter zu berechnen.

Arbeiten zur Reemission von HTO vom Boden, einschließlich der Möglichkeiten zur Modellierung, laufen bei CEA Fontenay-aux-Roses (Frankreich) und im NIR Hannover (Bundesrepublik Deutschland).

Von Ontario Hydro und Chalk River (Kanada) wird ein Freilandexperiment geplant, bei dem ein Baum in einer oben offenen Kammer (open top chamber) für ca. 2 Wochen mit HT begast werden soll. Dieses Experiment soll eine chronische HT-Exposition der Umgebung, wie sie beim Normalbetrieb zu erwarten ist, simulieren.

Die Tritiumdeposition auf Pflanzen sowie der Einbau ins OBT von flüchtigen organischen Verbindungen, wie z.B. tritiertes Methan oder Formaldehyd, wird bei CEA Fontenay-aux-Roses untersucht.

Im Kernforschungszentrum Karlsruhe werden Experimente zur Translokation von OBT in eßbare Pflanzenteile durchgeführt. Dabei werden zusätzlich die tageszeit-

lich und saisonal abhängigen Pflanzenparameter untersucht, welche die Tritiumaufnahme beeinflussen. Außerdem wird an einem verbesserten Modell für die Dosisberechnung in der Umgebung durch Tritiumfreisetzung im Normalbetrieb gearbeitet.

Die Verbesserung der Modellierung von OBT in der Nahrungskette wird auch von SRD (England) angestrebt.

5.9.2 Dosimetrie von Tritium

Untersuchungen zur Dosimetrie von Tritium werden am Brookhaven National Laboratory (USA), in Chalk River (Kanada) und in verschiedenen Forschungseinrichtungen in Japan durchgeführt. Im Vordergrund stehen dabei Fragen zur Dosimetrie von OBT sowie zur Altersabhängigkeit des Dosisfaktors (z. B. fötale Dosen).

Im Zusammenhang mit der Fusionsforschung gibt es in Chalk River (Kanada) intensive Untersuchungen über die Folgen von Hautkontakt mit Oberflächen, die mit hohen Tritiumkonzentrationen in Berührung gekommen sind. Geplant sind Untersuchungen zum Hautkontakt mit tritiertem Pumpenöl, zur Inhalation von flüchtigen organischen Verbindungen und von tritiumhaltigen Aerosolen und Staub.

5.10 Zusammenfassung

Radioökologie

Die wichtigsten Tritiumverbindungen, die in die Umwelt freigesetzt werden, sind tritiierter molekularer Wasserstoff (HT) und tritiertes Wasser (HTO) in flüssigem oder gasförmigem Zustand. Beim direkten Vergleich ist HT bei Inhalation etwa 10 000 mal weniger radiotoxisch als HTO. In der Umwelt wird jedoch ein Teil des freigesetzten HT zu HTO umgewandelt.

Für Dosisberechnungen in der Umgebung von tritiumemittierenden Anlagen sind vor allem die Freisetzung in die Atmosphäre relevant. Mit Hilfe von mathematischen Modellen können die Auswirkungen einer HT- bzw. HTO-Freisetzung unter Berücksichtigung der verschiedenen Einzelprozesse und Einflußparameter rechnerisch vorhergesagt werden. Die wichtigsten Einzelprozesse sind:

- Ausbreitung in der Atmosphäre,
- nasse Deposition aus der Atmosphäre (rainout, snowout, washout),

- trockene Deposition auf Boden und Vegetation, wobei HT zu HTO umgewandelt wird,
- Reemission von HTO von Boden und Vegetation,
- Einbau von Tritium in organisches Material (OBT).

Der Transport von tritierten Verbindungen in der Atmosphäre wird i.allg. mit einem Gauß-Modell beschrieben. Die berechneten Tritiumkonzentrationen in der Luft sind die Ausgangsdaten für die Deposition am Boden und in Pflanzen. Die Anfangskonzentrationen im Boden und in Pflanzen werden entweder mit dem Konzept der Depositionsgeschwindigkeit oder mit dem sogenannten Widerstandsmodell errechnet, wobei die meteorologischen Bedingungen sowie die Boden- und Pflanzenparameter zum Zeitpunkt der Freisetzung eine wichtige Rolle spielen. Im Falle von HT ist die Depositionsgeschwindigkeit am Boden ein Maß für die Oxidationsrate zu HTO, die durch die Aktivität der Mikroorganismen im Boden bestimmt wird. Die Deposition von HT auf Pflanzen ist so niedrig, daß sie bei Dosisberechnungen vernachlässigt wird. Es erfolgt jedoch eine indirekte Kontamination durch HT, das im Boden zu HTO oxidiert wurde und über die Wurzeln oder als HTO-Dampf über die Blätter aufgenommen wird.

Die Verweilzeit von Tritium in einem terrestrischen System wird von den meteorologischen Bedingungen, den Boden- und Pflanzenparametern in der Zeit nach der Freisetzung bestimmt. Dies gilt insbesondere für die Reemission von HTO nach einer HT-Freisetzung, da in diesem Fall etwa 99 % der Inhalationsdosis durch die Reemission von HTO verursacht wird. Der Dosisanteil durch Exposition in der vorüberziehenden HT-Wolke ist vergleichsweise gering.

HTO wird in Pflanzen und in Tieren, zu einem geringem Anteil auch im Boden, in organische Verbindungen eingebaut, wobei ein Teil fest an Kohlenstoff gebunden wird. Bei Pflanzen geschieht dies vor allem durch die Reaktionen der Photosynthese, also während des Tages. Tritiertes organisches Material (OBT) hat eine längere Verweilzeit in der Biosphäre als HTO, da der Abbau nur über Enzymreaktionen erfolgt. Beim Menschen trägt das im Organismus aus HTO gebildete OBT nur mit wenigen Prozenten zur Gesamtdosis bei. Bei Ingestion von OBT wird ein kleiner Teil direkt in körpereigenes OBT eingebaut, während der überwiegende Teil zur Energieproduktion benötigt und damit zu HTO oxidiert wird. Die Dosis infolge Ingestion von OBT kann daher bis zu 100% höher sein als bei Ingestion einer entsprechenden HTO-Menge. Für eine Anreicherung von Tritium in Nahrungsketten gibt es keine Hinweise.

Radiobiologie

Die derzeit vorliegenden experimentellen Befunde zeigen, daß für die biologischen Effekte inkorporierten Tritiums allein die im Zellkern absorbierte Dosis der emittierten β -Strahlen maßgeblich ist. Positionsspezifische Wirkungen beim Tritiumeinbau in nicht-austauschbare Wasserstoffbindungen der DNA (Transmutationseffekt) lassen sich nachweisen, sind aber für die Risikoabschätzung ohne Belang. Da Tritiumeinbau in die DNA nur bei proliferierenden Zellen erfolgen kann, sind in diesem Fall besonders die Stamm- und Keimzellen als Risikozellen für die somatische und genetische Tritiumwirkung von Bedeutung.

Die experimentell beobachteten RBW-Werte legen für locker ionisierende Referenzstrahlung (^{60}Co -Gamma) einen Q-Faktor von 2 nahe, wie er auch aus mikrodosimetrischen Abschätzungen und Überlegungen folgt. In ihren Empfehlungen von 1990 [5-77] formuliert die ICRP allerdings Bedenken gegenüber dem Konzept des Q-Faktors, insbesondere bezüglich der zugrundeliegenden formalen Q-LET-Beziehungen. Sie empfiehlt aus einer Reihe von Gründen den Ersatz von Q durch eine neue Größe, den Strahlen-Wichtungsfaktor, der für Photonen und Elektronen (außer Auger-Elektronen) und damit auch für Tritium- β -Teilchen den Wert 1 hat.

5.11 Literatur zu Kapitel 5

- [5-1] „ICRP Publication 30, Limits for Intakes of Radionuclides by Workers. International Commission on Radiological Protection, Oxford: Pergamon Press (1979).
- [5-2] C.E. Murphy Jr., The Transport, Dispersion, and Cycling of Tritium in the Environment. WSRC-RP-90-462, Westinghouse Savannah River Company, Savannah River Site, Aiken, SC, (1990).
- [5-3] C.E. Murphy Jr., L.R. Bauer, D.W. Hayes, W.L. Marter, C.C. Zeigler, D.E. Stephenson, D.D. Hoel and D.M Hamby, Tritium in the Savannah River Site Environment. WSRC-RP-90-424-1, Westinghouse Savannah River Company, Savannah River Site, Aiken, SC, (1990).
- [5-4] C. Bunnenberg, M. Täschner and G.L. Ogram, Determination of Key Processes and Quantification of Key Parameters for Tritium Environmental Transport Processes. Study-Contract-No. 327/88-10/FU-D/NET, NET-Contract-Nr. 88-176 (1990).
- [5-5] A.S. Mason and H. G. Östlund, Atmospheric HT and HTO: V. Distribution and Large-Scale Circulation. In: Tritium in the Environment, IAEA, Vienna, 3-16 (1979).
- [5-6] C. Bunnenberg, J. Feinhals and B. Wiener, Differences in the Behavior of HTO and H₂O in Soil after Condensation from the Atmosphere and Conversion of HT to HTO and OBT in Soil Relative to Moisture Content and Pore Volume. Rad. Prot. Dos. 16, 83-87 (1986).

- [5-7] C.W. Sweet, C.E. Murphy Jr. and R. Lorenz, Environmental Tritium Transport from Atmospheric Release of Tritiated Water. *Health Phys.* 44, 13-18 (1983).
- [5-8] B.B. Hicks, D.D. Baldocchi, T.P. Meyers, J.R. Hosker and D.R. Matt, A Preliminary Multiple Resistance Routine for Deriving Dry Deposition Velocities from Measured Quantities. *Water, Air, and Soil Poll.* 36, 311-330 (1987).
- [5-9] H. Förstel, Uptake of Elemental Tritium by the Soil. *Rad. Prot. Dos.* 16, 75-81 (1986).
- [5-10] B. Wiener, M. Täschner and C. Bunnenberg, HTO Reemission from Soil after HT Deposition and Dose Consequences of HT Releases. *Fusion Technol.* 14, 1247-1252 (1988).
- [5-11] W. Raskob, UFOTRI: Program for Assessing the Offsite Consequences from Accidental Tritium Releases. KfK-4605 (1990).
- [5-12] R.M. Brown, G.L. Ogram and F.S. Spencer, Field Studies of HT Oxidation and Dispersion in the Environment II. The 1987 June Experiment at Chalk River. Canadian Fusion Fuels Technology Project, Report No. CFFTP-G-88007 (1988a).
- [5-13] M. Täschner, C. Bunnenberg and W. Gulden, Maximum Permissible Amounts of Accidentally Released Tritium Derived from an Environmental Experiment to Meet Dose Limits for Public Exposure. *Fusion Technol.* 20, 58-64 (1991).
- [5-14] W. Gulden, W. Raskob and O. Edlund, Doses to the Public due to Accidental Tritium Releases. Proceedings of the 16th SOFT-Conference, Sept. 3-7, 1990, London, B. E. Keen, M. Huguet, R. Hemsworth (eds.), Elsevier Science Publ. B. V. (1991).
- [5-15] J. F. Cline, Absorption and Metabolism of Tritium Oxide and Tritium Gas by Bean Plants. *Plant. Physiol.* 28, 717-723 (1953).
- [5-16] Y. Belot, D. Gauthier, H. Camus and C. Caput, Prediction of the Flux of Tritiated Water from Air to Plant Leaves. *Health Phys.* 37, 575-583 (1979).
- [5-17] C.E. Murphy Jr., The Relationship between Tritiated Water Activities in Air, Vegetation and Soil under Steady-State Conditions. *Health Phys.* 47, 635-639 (1984).
- [5-18] M. Hettinger, S. Diabaté und S. Strack, Tageszeitliche Schwankungen der Tritiumaufnahme in Pflanzen. KfK-4801, (1991).
- [5-19] S. Strack, S. Diabaté and M. Hettinger, Tritium Behaviour in the Soil-Plant-Atmosphere Continuum. In: Proceedings of the Symposium on Fusion Technology (SOFT-Conference), London, Sept. 1990, B. E. Keen, M. Huguet, R. Hemsworth (eds.), Elsevier Science Publ. B. V. (1991).
- [5-20] F.S. Spencer, G.L. Ogram and R.M. Brown, Field Studies of HT Behaviour in the Environment: Tritium Deposition and Dynamics in Vegetation. *Fusion Technol.* 14, 1176-1181 (1988).
- [5-21] L.R. Anspaugh, J.J. Koranda, W.L. Robeson and J.R. Martin, The Dose to Man via Food-Chain Transfer Resulting from Exposure to Tritiated Water Vapour. in: Tritium, A.A. Moghissi and M.W. Carter (eds.), Messenger Graphics, Phoenix, Arizona and Las Vegas, Nevada, 405-422 (1973).
- [5-22] USNRC (United States Nuclear Regulatory Commission), Calculations of Annual Doses to Man from Routine Releases of Reactor Effluents for the Purpose of Evaluating Compliance with 10 CFR Part 50. Appendix I. Regulatory Guide 1.109, (1976).

- [5-23] BMI (Bundesminister des Innern), Allgemeine Berechnungsgrundlage für die Strahlenexposition bei radioaktiven Ableitungen mit der Abluft oder in Oberflächengewässer (Richtlinie zu § 45 StrSchV). GMBI, (1979).
- [5-24] S. Strack, Behaviour of Tritium under Environmental Non-Equilibrium Conditions. International Radiation Protection Association, 6th International Congress Radiation-Risk-Protection, Berlin (West) May 7-12, (1984).
- [5-25] L.A. König, S. Diabaté, D. Papadopoulos und S. Strack, Untersuchungen zum Umweltverhalten von Tritium. KfK-Nachr. Jahrg. 19 1/87, 11-22 (1987).
- [5-26] S. Strack, Modelling of Tritium in Plants Considering Atmospheric Releases from Nuclear Installations In: Experiences with Radioecological Assessment Models, Comparison between Predictions and Observations. C. Leising and E. Wirth (eds.), Institut für Strahlenhygiene, ISH-128, (1989).
- [5-27] BMJ (Bundesminister der Justiz), Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 45 Strahlenschutzverordnung: Ermittlung der Strahlenexposition durch die Ableitung radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen und Einrichtungen. Bundesanzeiger Jahrg. 42, Nr. 64a, (1990).
- [5-28] F. S. Spencer, Tritium Uptake and Desorption Kinetics in Tissue-Free Water Fractions of Tomato Plants (final report). Ontario Hydro Research Division Report Nr. 83-33-K (1983).
- [5-29] D. Weinberger and J.W. Porter, Metabolism of Hydrogen Isotopes by Rapidly Growing Chlorella pyrenoidosa Cells. Arch. Biochem. Biophys. 50, 160-168 (1954).
- [5-30] T. Kanazawa, K. Kanazawa and J.A. Bassham, Tritium Incorporation in the Metabolism of Chlorella pyrenoidosa. Environ. Sci. Techn. 6, 638-642 (1972).
- [5-31] S. Strack, Biokinetische Untersuchungen über organisch gebundenes Tritium in Algenkulturen. STH-Bericht, Dietrich Reimer Verlag, (1978).
- [5-32] C.W. Sweet and C.E. Murphy Jr., Tritium Deposition in Pine Trees and Soil from Atmospheric Releases of Molecular Tritium. Environ. Sci. Technol. 18, 358-361 (1984).
- [5-33] Y. Belot, Tritium in Plants: A Review. Rad. Prot. Dos. 16, 101-105 (1986).
- [5-34] D.C. Bogen, G.A. Welford and C.G. White, Tritium Distribution in Man and his Environment. In: Behaviour of Tritium in the Environment, IAEA-SM- 232/40. Proceedings of a Symposium, San Francisco, Oct. 16-20, 1978, 219-230 (1979).
- [5-35] R.M. Brown, Assessment of the Significance of Organically-Bound Tritium in Environmental Materials. A report prepared for Atomic Energy Control Board, Ottawa, Canada, (1988b).
- [5-36] W.A. Rambeck and J.A. Bassham, Tritium Incorporation and Retention in Photosynthesizing Algae. Biochim. Biophys. Acta 304, 725-735 (1973).
- [5-37] S. Strack, G. Kistner and C.C. Emeis, Incorporation of Tritium into Planctonic Algae in a Continuous Culture under Dynamic Conditions. In: Behaviour of Tritium in the Environment, IAEA-SM-232/40. Proceedings of a Symposium, San Francisco, 16-20 Oct. 1978, 219-230 (1979).

- [5-38] F. S. Spencer, Tritiated Water Uptake Kinetics in Tissue-Free Water and Organically-Bound Fractions of Tomato Plants. Ontario Hydro Research Division Report Nr. 84-69-K (1984).
- [5-39] M.A. Kim and F. Baumgärtner, Validation of Tritium Measurements in Biological Materials. *Fusion Technol.* 14, 1153-1158 (1988).
- [5-40] B.G. Blaylock, F.O. Hoffmann and M.L. Frank, Tritium in the Aquatic Environment. *Rad. Prot. Dos.* 16, 65-71 (1986).
- [5-41] D.W. Rodgers, Tritium Dynamics in Juvenile Rainbow Trout, *Salmo gairdneri*. *Health Phys.* 50, 89-98 (1986).
- [5-42] T.J. Morgan, R.R. Landolt and J. Hamelink, Behaviour of Tritium in Fish Following Chronic Exposure. In: *Tritium*, A.A. Moghissi and M.W. Charter (eds.), Messenger Graphics, Phoenix, Arizona and Las Vegas, Nevada, 378-381 (1973).
- [5-43] R.G. Patzer, A.A. Moghissi and D.N. McNelis, Accumulation of Tritium in Various Species of Fish Reared in Tritiated Water. In: *Environmental Behaviour of Radionuclides Released in the Nuclear Industrie*, STI/PUB/345, Vienna: IAEA, (1973).
- [5-44] R. Kirchmann, C. Piron, M. Meurice, E. Fagniart and C. Sironval, Le Tritium des Effluents liquides d'installations nucléaires. *Ann. Assoc. Belge Radiopr.* 2, 163-182 (1977).
- [5-45] S. Strack, R. Kirchmann, A. Lüttke and S. Bonotto, Selective Accumulation of Organically Bound Tritium in the Marine Unicellular Algae *Dunaliella bioculata* and *Acetabularia mediterranea*. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 34, 865-869 (1983).
- [5-46] S.L. Commerford, Tritium Metabolism in Mammals. Proceedings of "European Seminar on the Risks from Tritium Exposure", Mol, Belgium, November 22-24, 1982, G. Gerber and C. Myttenaere, (eds.), EUR 9065, (1984).
- [5-47] S.M. Sanders Jr. and W.C. Reinig, Assessment of Tritium in Man. In: *Diagnosis and Treatment of Deposited Radionuclides*, Excerpta medica Foundation, (1968).
- [5-48] ICRP Publication 56, Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 1, International Commission on Radiological Protection, Oxford: Pergamon Press, (1990).
- [5-49] Z. Pietrzak-Flis, I. Radwan and L. Indeka, Tritium in Rabbits after Ingestion of Freeze-Dried Tritiated Food and Drinking Water. *Radiat. Res.* 76, 420-428 (1978).
- [5-50] R. Kirchmann, P. Charles, R. van Bruwaene, J. Remy, G. Koch and J. van den Hoek, Distribution of Tritium in the Different Organs of Calves and Pigs after Ingestion of Various Tritiated Feeds. *Curr. Top. Rad. Res. Quart.* 12, 291-312 (1977).
- [5-51] K. Komatsu, Y. Okumura and K. Sakamoto, Radiation Dose to Mouse Liver Cells from Ingestion of Tritiated Food or Water. *Heath Phys.* 58, 625 - 629 (1990).
- [5-52] J.C. McFarlane, Tritium Fractionation in Plants. *Environ. Exp. Bot.* 16, 9-14 (1976).
- [5-53] A.A. Moghissi, E.W. Bretthauer and R.G. Patzer, Biological Concentration of 3-H. No Preference for 3-H in Biological Systems. *Health Phys.* 53, 385-388 (1987).
- [5-54] J. van den Hoek, M.H.J. ten Have, G.B. Gerber and R. Kirchmann, The Transfer of Tritium-Labeled Organic Material from Grass into Cow's Milk. *Radiat. Res.* 103, 105-113 (1985).

- [5-55] J. van den Hoek, Tritium Metabolism in Animals. *Radiat. Prot. Dos.* 16, 117-121 (1986).
- [5-56] A.G. Evans, New Dose Estimates from Chronic Tritium Exposures. *Health Phys.* 16, 57 - 63 (1969).
- [5-57] S. Diabaté and S. Strack, Doses due to Tritium Releases by NET - Data Base and Relevant Parameters on Biological Tritium Behaviour. KfK-Report No. 4713, (1990).
- [5-58] W. Raskob, persönliche Mitteilung
- [5-59] NCRP-Report No. 62, Tritium in the Environment. National Council of Radiation Protection and Measurements, Washington, DC, (1979).
- [5-60] G. G. Killough and D. C. Kocher, A Model for Global Cycling of Tritium. *Fusion Technol.* 14, 1115 - 1120 (1988).
- [5-61] M. Saito, M. R. Ishida, C. Streffer and M. Molls, Estimation of Absorbed Dose in Cell Nuclei due to DNA-bound 3-H, *Health Physics* 48 (1985), 465.
- [5-62] L. E. Feinendegen, Biologische Effekte von Tritium; Mikrodosimetrie, Transmutation, Mikroverteilung, Strahlenwirkung, *STH-Berichte* 12 (1980) 115.
- [5-63] V. P. Bond, Long-lived Isotopes arising from Nuclear Power Production: 3-H and 85-Kr, In: Human and Ecological Effects of Nuclear Power Plants, L. A. Sagan (Ed.), C. C. Thomas, Springfield, Ill. (1974) p. 511.
- [5-64] W. U. Müller, C. Streffer, M. Molls and L. Glück, Radiotoxicity of 3-H-Thymidine and 3-H-Arginine in Pre-implantation Mouse Embryos in vitro, *Radiation Protection Dosimetry* 16 (1986) 155.
- [5-65] L. E. Feinendegen, E. P. Cronkite and V. P. Bond, Radiation Problems in Fusion Energy Production, *Radiat. Environ. Biophys.* 18 (1980) 157.
- [5-66] H. Dertinger and H. Jung, Molecular Radiation Biology, Springer-Verlag New York, Heidelberg, Berlin (1970).
- [5-67] S. Okada, K. Sakai and N. Nakamura, Relative Biological Effectiveness of Tritiated Water on Cultured Mammalian Cells at Molecular and Cellular Level, *Radiation Protection Dosimetry* 16 (1986) 137.
- [5-68] H. Matsudaira, A. M. Ueno, I. Furuno-Fukushi and Y. Yamagucchi, Induction of Cell Killing, Mutation and Transformation following Exposure to Tritiated Water in Cultured Mammalian Cells, *Radiation Protection Dosimetry* 16 (1986) 145.
- [5-69] T. Yamada, Y. Matsuda, H. Ohyama, H. Takiuchi and K. Okuyama, RBE of HTO Radiation Measured by its Effects on Cultured Mouse Embryos at Pre-implantation Stage, *Radiation Protection Dosimetry* 16 (1986) 151.
- [5-70] V. P. Bond and L. E. Feinendegen, Intranuclear 3-H-Thymidine: Dosimetric, Radiobiological and Radiation Protection Aspects, *Health Physics* 12 (1966) 1007.
- [5-71] R. Baserga, H. Lisco and W. E. Kisielecki, Tumor Induction in Mice by Radioactive Thymidine, TID 22292, U.S. Atomic Energy Commission, Washington (1965).
- [5-72] D. J. Mewissen and J. G. Rust, Tumor Incidence in C57 Black/6 Mice Treated with Tritiated Thymidine, In: Tritium, Report No. CONF-710809, A. A. Moghissi and M. W. Carter (Eds.), Messenger Graphics, Phoenix, Ar. (1973) p. 252.

- [5-73] H. Cottier, E. P. Cronkite, E. A. Tonna and N. O. Nielson, Leukemogenic Effect of Whole-Body 60-Co-Gamma-Irradiation Compared with 3-H-Thymidine and 3-H-Cytidine: Preliminary Report on the Development of Thymic Lymphomas in C57BL/6J Mice, In: Cellular Basis and Aetiology of Late Somatic Effects of Ionizing Radiation, R. J. C. Harris (Ed.), Academic Press, New York (1963) p. 27.
- [5-74] H. A. Johnson and E. P. Cronkite, Effect of Tritiated Thymidine on Mortality and Tumor Incidence in Mice, Radiat. Res. 30 (1967) 488.
- [5-75] NCRP Report No.63, Tritium and Other Radionuclide Labelled Organic Compounds Incorporated in Genetic Material, National Council of Radiation Protection and Measurements (1979).
- [5-76] R. L. Dobson, The Toxicity of Tritium, IAEA-SM-237/48 (1979) 203.
- [5-77] ICRP Publication 60, International Commission on Radiological Protection, 1990 Recommendations of the Commission (1991).
- [5-78] ICRP Publication 26, International Commission on Radiological Protection, Pergamon Press, New York (1977).
- [5-79] ICRU Report 40, The Quality Factor in Radiation Protection, International Commission on Radiation Units and Measurements, (1986).
- [5-80] H. - W. Bartels, A Simple Model to Calculate Doses for Acute Tritium Releases, Based on HT Field Experiments in Canada and France, Fusion Technol. 21 (1992), 544.

6. Abschätzung der radiologischen Auswirkungen von Tritiumfreisetzung auf die Bevölkerung

W. Raskob, J. Ehrhardt, A. Wicke

6.1 Strahlenexposition durch luftgetragene Tritiumfreisetzung

Das folgende Kapitel befaßt sich mit der Quantifizierung der radiologischen Folgen von luftgetragenen Tritiumfreisetzung während des Routinebetriebs einer tritiumführenden Anlage und bei Unfällen. Als Maß für die radiologischen Folgen wird die im menschlichen Körper akkumulierte Strahlendosis ermittelt. Die in den einzelnen Organen unterschiedlich absorbierte Strahlungsenergie pro Masseneinheit wird als Äquivalentdosis bezeichnet und in der Einheit Sievert (Sv) angegeben. Sie berechnet sich für Tritium i.a. durch die Multiplikation der in den Körper aufgenommenen Aktivität (Bq) mit dem den unterschiedlichen Organen und chemischen Formen von Tritium zugeordneten Dosisfaktor (Sv/Bq). Der Dosisfaktor quantifiziert die Energiedeposition in Organen unter Berücksichtigung der zeitabhängigen Stoffwechsel- und Transportprozesse im Körper. Sein Wert ist mit physikalisch-biologischen Rechenmodellen vorberechnet und für verschiedene Integrationszeiten nach Inkorporation in Tabellen veröffentlicht. Beträgt die Integrationszeit 50 Jahre, spricht man von 50-Jahre-Folge-Äquivalentdosis.

Mit der Absorption von Strahlenenergie im menschlichen Körper direkt verbunden ist ein organspezifisches Risiko für stochastische somatische Schäden (Krebs). Die in ICRP 26 bzw. ICRP 60 angegebenen Wichtungsfaktoren sind ein Maß für den Beitrag der Einzelorgane zum gesamten Krebsrisiko. Mit Hilfe der Wichtungsfaktoren wird die effektive Äquivalentdosis (Ganzkörper) aus den einzelnen Organdosen berechnet. Im folgenden Beitrag wird ausschließlich die noch für die Bundesrepublik Deutschland gültige effektive 50-Jahre-Folge-Äquivalentdosis nach ICRP 26 diskutiert, der Einfachheit halber wird sie nur noch mit "Dosis" bezeichnet.

6.1.1 Freisetzung während des Normalbetriebs

Man geht davon aus, daß während des Normalbetriebs eines Reaktors oder sonstiger tritiumverarbeitender Anlagen Tritium überwiegend in Form von tritiertem Wasserdampf (HTO) aus dem Kamin in die Atmosphäre entweicht. Um die

Strahlenexposition einer Tritiumfreisetzung abzuschätzen, sind die folgenden drei Expositionspfade - siehe auch in Kap.5 - zu berücksichtigen:

1. Aufnahme von Tritium über die Atemwege
2. Aufnahme von Tritium über die Haut
3. Aufnahme von Tritium durch den Verzehr von kontaminierten Nahrungsmitteln.

Es ist üblich, die beiden ersten Expositionspfade zusammenzufassen und ihnen gemeinsam die Inhalationsdosis zuzuordnen.

Der erste Schritt einer Dosisabschätzung besteht darin, die Tritiumaktivität in der Luftfeuchte oder auch im Bodenwasser an den interessierenden Aufpunkten zu berechnen. Da die Ableitungen während des Normalbetriebs durchgängig während des Jahres auftreten, wird im Rechenmodell angenommen, daß sie homogen über das Jahr verteilt sind. Basierend auf einer langjährigen Wetterstatistik der meteorologischen Größen Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Regenintensität und atmosphärische Stabilität, werden für die Umgebung einer tritiumemittierenden Anlage Ausbreitungsrechnungen durchgeführt. Hieraus ergibt sich die mittlere jährliche Tritiumaktivität als Funktion der Entfernung von der Anlage. Der zweite Schritt besteht darin, die Tritiumaktivität in der Atmosphäre - oder genauer in der Luftfeuchte - mit derjenigen im Pflanzenwasser in Beziehung zu setzen. Experimente und langjährige Messungen in der Umgebung von tritiumemittierenden Anlagen haben die Annahme bestärkt, daß sich die Tritiumkonzentration in der Luftfeuchte, im Gewebewasser der Pflanzen und auch in Nahrungsmitteln, wie z.B. der Milch, weitgehend im Gleichgewicht befinden. Die gemessenen Tritiumkonzentrationen in den Pflanzen lagen bei 70 bis 80 % derjenigen der Luftfeuchte [6-11].

Auf diesen Erkenntnissen basiert das häufig verwendete Gleichgewichtsmodell, das die spezifische Tritiumkonzentration im Gewebewasser der Pflanzen der Luftfeuchte gleichsetzt. Andere Rechenmodelle, wie z.B. das BMU-Modell [6-4], berücksichtigen zusätzlich auch noch die Tritiumkonzentration im Bodenwasser. Dabei wird angenommen, daß die Tritiumkonzentration in der Pflanze zu 30% aus der Luftfeuchte und zu 70% aus dem Bodenwasser stammt. Transferfaktoren bestimmen dann die Tritiumkonzentration in Milch- und Fleischprodukten. Mit der Kenntnis der Tritiumaktivität in Luft und Nahrungsmitteln kann mit Hilfe der jährlichen Atem-, Verzehr- und Hautabsorptionsraten die Dosisaufnahme über die drei Expositionspfade relativ einfach berechnet werden; sie ergibt sich durch Multiplikation der aufgenommenen Aktivität mit dem Dosisfaktor des jeweiligen

Expositionspfades. Spezielle Effekte, wie z.B. die erneute Verdunstung von Tritium aus Boden- und Pflanzenwasser, werden im allgemeinen vernachlässigt, was - wie Messungen gezeigt haben - für HTO-Freisetzung durchaus zulässig ist. Wird dagegen von einer HT-Freisetzung ausgegangen, so sind diese Vereinfachungen nicht erlaubt, da der größte Teil der Dosis aus dem reemittierten HTO- Anteil resultiert. Allerdings werden in Genehmigungsverfahren immer HTO-Freisetzung unterstellt, die grundsätzlich höhere Dosen liefern als HT-Freisetzung.

Deterministisch-konservative Abschätzung der Strahlenexposition beim Normalbetrieb

Zur Abschätzung der Strahlenexposition beim Normalbetrieb einer tritiumführenden Anlage stehen weltweit zahlreiche Rechenmodelle zur Verfügung. Sie werden meist für deterministisch-konservative, d.h. pessimistische Dosisabschätzungen im Vorfeld bzw. im Rahmen von Genehmigungsverfahren eingesetzt. Die in der Literatur angegebenen Rechenergebnisse weichen stark voneinander ab (teilweise um mehr als zwei Größenordnungen) und sind wegen sehr unterschiedlicher Rechenannahmen im allgemeinen nicht direkt vergleichbar.

Eine sorgfältige Gegenüberstellung der Ergebnisse aus Modellrechnungen mit 20 verschiedenen Rechenprogrammen [6-1] hat allerdings gezeigt, daß die Unterschiede in den errechneten Dosiswerten für eine Person am höchstbelasteten Aufpunkt in der Umgebung des Tritiumemittenten nicht primär durch unterschiedliche tritiumspezifische Modelle bedingt sind, sondern hauptsächlich auf unterschiedliche Randbedingungen der Rechnungen zurückzuführen sind. Rekalibriert man die Originalergebnisse auf gleiche Ausgangswerte für alle wichtigen Annahmen bezüglich Wettergeschehen, Ausbreitungsparameter, Freisetzungshöhe, mittlere jährliche Luftfeuchte, Qualitätsfaktor, Atemrate und Verzehrgewohnheiten, und eliminiert man Modelle, die offensichtlich unrealistische Ergebnisse produzieren, so unterscheiden sich die rekalierten Gesamtdosiswerte nur noch um den Faktor 2 - 3 voneinander.

Unter Zugrundelegung einer Freisetzungsraten von $3,7 \cdot 10^{10}$ Bq/Tag (1 Ci/Tag) HTO, einer Freisetzungshöhe von 100 m, einer typischen Ausbreitungsbedingung und eines Qualitätsfaktors von 1 ergeben sich für eine Person am höchstbelasteten Aufpunkt (das sogenannte Most Exposed Individual - MEI) unmittelbar am Anlagenzaun (1000m) die in Tabelle 6-1 zusammengestellten Dosisbandbreiten:

Dosis	Minimaler Wert	Maximaler Wert
Inhalation + Hautabsorption	0,03 µ Sv/Jahr	0,15 µ Sv/Jahr
Ingestion	0,2 µ Sv/Jahr	0,4 µ Sv/Jahr

Tab. 6-1: Bandbreite der Dosis in 1000 m Entfernung von der Quelle für eine Freisetzungsrate von $3,7 \cdot 10^{10}$ Bq/Tag (1Ci/Tag) und eine Freisetzungshöhe von 100 m; Ergebnisse eines Modellvergleichs [6-1] für den Normalbetrieb

Sensitivitätsanalyse zum Einfluß der wichtigsten Eingabeparameter auf die Strahlenexposition beim Normalbetrieb

Um den Einfluß der wichtigsten Eingabeparameter auf die Dosisergebnisse im Detail zu analysieren, wurden Rechnungen mit dem sogenannten BMU-Modell [6-4] durchgeführt. Dies erscheint sinnvoller als der Versuch, aus den vorliegenden, teilweise nur unvollständig dokumentierten Berechnungen die Variationsursachen zu erklären.

Das BMU-Modell, das im Genehmigungsverfahren einer tritiumverarbeitenden Anlage oder eines zukünftigen Fusionsreaktors zur Anwendung gelangen muß, enthält eine Reihe von konservativen Annahmen, damit Unsicherheiten und Vereinfachungen beim vorgeschriebenen Rechenmodell nicht zur Unterschätzung der zu erwartenden Dosis führen. So wird unterstellt, daß Tritium allein in Form von HTO in die Umgebungsluft freigesetzt wird. Abgeschätzt wird die Dosis so dann für eine Person, die am höchstbelasteten Aufpunkt in der Umgebung der Anlage lebt und sich dort 24 Stunden am Tage ungeschützt im Freien aufhält. Weiterhin wird angenommen, daß die Lebensmittel, mit denen die betrachtete Person ihren gesamten Nahrungsmittelbedarf deckt, an diesem Aufpunkt produziert werden. Die Lage dieses Aufpunkts kann bei einer zukünftigen Fusionsanlage im Abstand von etwa 1000m angenommen werden, der in etwa der Entfernung des Begrenzungszaunes der Anlage und einer ersten 'realen Nutzungsmöglichkeit', wie sie im Vorschriftstext definiert ist, entspricht. Eine weitere konservative Annahme betrifft die Menge an aufgenommener Nahrung, die etwa 3 mal höher ist als diejenige Menge, die ein Bundesbürger durchschnittlich verzehrt [6-15], (Tab. 6-2).

Parameter	Wert (für BMU-Modell)
Ausbreitungsparameter	Karlsruhe-Jülich [6-4]
Quellhöhe	Kamin mit 150 m Höhe, (ohne Einfluß durch umgebende Gebäude)
Quellstärke	$3,7 \cdot 10^{10}$ Bq/Tag bzw. 1 Ci/Tag HTO
Entfernung	1000 m
Standort	Wetterstatistik von 5 verschiedenen Standorten in Deutschland von 1982
Sektorbreite in der Wetterstatistik	12 Sektoren (30°)
Washoutkoeffizient	$3,5 \cdot 10^{-5} \times I$ (I = Niederschlagsintensität in mm/Std.) [6-4]
Atemrate	20 m ³ /Tag [6-4]
Aufnahme über die Haut	-
Verzehrrate pflanzlicher Produkte	500 kg/Jahr [6-4]
Verzehrrate Milchprodukte	330 kg/Jahr [6-4]
Verzehrrate Fleischwaren	150 kg/Jahr [6-4]
Dosisfaktor Inhalation	$1,6 \cdot 10^{-11}$ Sv/Bq [6-4]
Dosisfaktor Ingestion	$1,6 \cdot 10^{-11}$ Sv/Bq [6-4]
Qualitätsfaktor	1

Tab. 6-2: Angabe wichtiger Basiswerte zur Berechnung des Referenzdosiswertes mit dem BMU-Modell für luftgetragene Tritiumfreisetzungen aus dem Normalbetrieb

Das zur Zeit gültige BMU-Modell berechnet die Inhalationsdosis (Aufnahme von Tritium über die Atemwege unter Vernachlässigung der Hautabsorption) an Hand der Tritiumkonzentration in der Luft. Die Ingestionsdosis (Aufnahme von kontaminierten Nahrungsmitteln) basiert auf der Tritiumkonzentration in den Nahrungsmitteln. Hierbei wird angenommen, daß die Tritiumkonzentration in der Pflanze zu 30 % aus der Luftfeuchte und zu 70% aus dem Bodenwasser stammt. Mit Hilfe des im Vegetationszeitraum gefallenen Niederschlags, der durch den Niederschlag ausgewaschenen Tritiummenge (washout) und der daraus resultierenden Tritiumkonzentration im Bodenwasser wird die Tritiumaufnahme über die Wurzeln berechnet. Die Transferfaktoren, die die Tritiumkonzentration in Milch- und Fleischprodukten bestimmen, wurden [6-4] entnommen.

Bei den vorliegenden Untersuchungen wurden Wetteraufzeichnungen aus dem Jahr 1982 benutzt. Die Ausbreitungsstatistik für das BMU-Modell wurde mit Hilfe des statistischen Ausbreitungsmodells ISOLA V [6-9] berechnet: Alle innerhalb eines gewissen Wertebereichs gleichen Wettercharakteristika (Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Diffusionskategorie und Niederschlagsintensität) werden in entsprechende Häufigkeitsklassen eingesortiert. Für jede dieser Klassen wird dann eine vereinfachte geradlinige Gauß-artige Ausbreitungsrechnung durchgeführt, deren Ergebnis mit der Häufigkeit des Auftretens dieser Wettersituation gewichtet wird. Die so ermittelten Boden- und Luftkonzentrationen bilden die Basis einerseits für die Berechnung der Dosis durch Inhalation und Hautaufnahme, und andererseits bestimmen sie die Tritiumkonzentration in den Nahrungsmitteln. Als Freisetzungshöhe wurde 150 m angenommen, was der charakteristischen Kaminhöhe deutscher Kernkraftwerke entspricht. Die Freisetzungsraten für die hier durchgeführten Berechnungen wurde auf $3,7 \cdot 10^{10}$ Bq/Tag (1 Ci/Tag) HTO normiert. Sie führt bei einem Erwachsenen, der in 1000 m Entfernung von der Anlage am höchst belasteten Aufpunkt lebt, unter Verwendung der Eingabewerte in Tabelle 6-2 zu einer Dosis von 0,003 $\mu\text{Sv}/\text{Jahr}$ durch Inhalation + Hautabsorption und 0,065 $\mu\text{Sv}/\text{Jahr}$ durch Ingestion.

Aufgrund unterschiedlicher äußerer Randbedingungen und Modellvereinfachungen, wie z.B. Wettergeschehen, Freisetzungshöhe, Verzehrgewohnheiten, kann allerdings die Dosis pro freigesetzter Menge an Aktivität eine erhebliche Schwankungsbreite aufweisen. Dieser Einfluß auf das Endergebnis wurde im einzelnen untersucht. Tabelle 6-3 enthält minimale und maximale Dosiswerte im Vergleich zum Referenzwert; Tabelle 6-4 zeigt den Einfluß einzelner Parameter auf die Dosis.

Dosis	Minimaler Wert	Referenzwert	Maximaler Wert
Inhalation + Hautabsorption	0,0008 $\mu\text{Sv}/\text{Jahr}$	0,003 $\mu\text{Sv}/\text{Jahr}$	0,06 $\mu\text{Sv}/\text{Jahr}$
Ingestion	0,008 $\mu\text{Sv}/\text{Jahr}$	0,065 $\mu\text{Sv}/\text{Jahr}$	0,44 $\mu\text{Sv}/\text{Jahr}$

Tab. 6-3: Dosiswerte in 1000m Entfernung von der Quelle für eine Freisetzungsraten von $3,7 \cdot 10^{10}$ Bq/Tag (1 Ci/Tag) und eine Freisetzungshöhe von 150m; Ergebnisse einer Sensitivitätsstudie mit dem BMU-Modell

Schlüsselparameter (für BMU-Modell)	Multiplikationsfaktor (Inhalation + Hautabsorption)	Multiplikationsfaktor (Ingestion)
Standort (Meteorologie)	0,5 - 1,5	0,7 - 2,5
Wahl der Ausbreitungsparameter	1,0 - 1,8	1,0 - 1,2
Freisetzungshöhe (200m/100m)	0,5 - 5,0	0,7 - 1,5
Verzehrgewohnheiten	---	0,4
Hautabsorption	1,4	-
Berücksichtigung von OBT	---	1,5

Tab. 6-4: Einfluß einzelner Parameter auf die Dosis durch luftgetragene Tritiumfreisetzung im Normalbetrieb

Aus Tabelle 6-4 ergibt sich, daß die von Standort zu Standort unterschiedliche Meteorologie - Häufigkeitsverteilung von Windrichtung, Windgeschwindigkeit und Niederschlag - das Ergebnis um einen Faktor zwischen etwa 0,5 und 2,5 verändern kann. Die Wahl anderer als der im Genehmigungsverfahren vorgeschriebenen Ausbreitungsparameter von Karlsruhe-Jülich führt im allgemeinen zu einer Erhöhung der zu erwartenden Dosen (besonders für die Inhalation). Ausbreitungsparameter sind empirisch bestimmte Größen, die die Verdünnung des freigesetzten Schadstoffs in der Luft in Abhängigkeit von der Umgebung des Standortes, des Turbulenzzustandes der Atmosphäre und der Entfernung von der Quelle angeben. Die meisten anderen Datensätze von Ausbreitungsparametern wurden in Experimenten ermittelt, die in flachen unbebauten Gegenden durchgeführt wurden. Je weniger aber ein Gelände strukturiert ist, desto geringer ist die mechanisch angeregte Turbulenz in den unteren Luftsichten und somit auch die Verdünnung der Fahne. Es existieren z.B. Standorte in Küstennähe oder im Flachland, für die die Benutzung derartiger Ausbreitungsdatensätze empfohlen werden kann. Die Folge wäre eine Erhöhung bei der Dosis aus der Ingestion um etwa 20% und bei der Dosis aus der Inhalation um etwa 80%.

Mit einer Freisetzungshöhe von 150 Metern wurde eine charakteristische Höhe der Kamine deutscher Kernkraftwerke unterstellt. Die Erniedrigung der Freisetzungshöhe auf 100m hätte eine Erhöhung der Ingestionsdosis bis zu etwa 50% zur Folge, da die Tritiumkonzentration im Niederschlagsmodell nur gering mit der Freisetzungshöhe korreliert ist. Eine Erhöhung auf 200 m führt zu einer Reduktion der Ingestionsdosis bis auf etwa 30%. Auf die Inhalationsdosis wirkt sich

eine Erniedrigung auf 100m deutlich stärker aus. Die Inhalationsdosis würde sich auf das 5-fache des ursprünglichen Wertes erhöhen. Eine Freisetzungshöhe von 200 m führt zu einer Halbierung der ursprünglichen Inhalationsdosis. Als Ursache ist die Geometrie der Fahne zu nennen. Bei großen Freisetzungshöhen kommen während eines Jahres Wettersituationen vor, bei denen die Fahne den Boden in 1 km Entfernung noch nicht oder eben erst erreicht hat. Bei niedrigen Freisetzungshöhen aber liegt die maximale bodennahe Tritiumkonzentration innerhalb dieser Entfernung, da die Fahne schon deutlich früher den Boden berührt. Aufgrund der nichtlinearen Konzentrationsverteilung innerhalb der Fahne im Nahbereich kann eine verhältnismäßig geringe Variation der Freisetzungshöhe eine überproportionale Variation in der Dosis herbeiführen.

Betrachten wir die ermittelten Dosiswerte, so fällt ins Auge, daß die Dosis durch die Aufnahme von kontaminierten Nahrungsmitteln deutlich höher ausfällt als diejenige über Atemwege + Hautabsorption. Als einer der wichtigsten Einflußparameter (besonders hinsichtlich der Genehmigung einer Anlage) muß daher die Wahl der Verzehrgewohnheiten angesehen werden. Bei Rechnungen zu Genehmigungsverfahren muß die Dosis für eine Referenzperson mit vorgeschriebenen Aufenthaltszeiten und maximalen Verzehrmengen berechnet werden. Aus diesem Grund ist in den Vorschriften eine Anhebung der durchschnittlichen Verzehrraten um etwa den Faktor 3 enthalten. Weiterhin sind auch noch die Kleinkinder (1 Jahr) zu berücksichtigen, für die ein gegenüber einem Erwachsenen erhöhter Dosisfaktor (siehe auch Kap. 5.6) sowie modifizierte Verzehrraten vorgeschrieben sind. Werden in einer Abschätzung kritische Gruppen nicht berücksichtigt, so vermindert sich die Dosis um etwa den Faktor 2,5.

Die Nichtberücksichtigung der Hautabsorption im BMU-Modell führt bei der Dosis infolge Inhalation und Hautabsorption zu einer Unterschätzung von etwa 40%.

Die Berücksichtigung des organisch gebundenen Tritiums erhöht die Ingestionsdosis um etwa 50 %. Ursache hierfür ist, daß etwa 15 -20% der aufgenommenen Nahrung aus organischem Material besteht, dessen Wasserstoffanteil sich im spezifischen Gleichgewicht mit dem Wasserkompartiment befindet. Gekoppelt mit dem etwa 2,5mal höheren Dosisfaktor von OBT (gegenüber HTO) ergibt sich die genannte Erhöhung der Ingestionsdosis.

Die Variation des Washoutkoeffizienten wirkt sich besonders stark auf die Bodenkontamination und damit auf die Ergebnisse aus, die mit dem aktuellen BMU-Modell ermittelt werden. Eine Bandbreite wird hier allerdings nicht angegeben,

da für den Washoutkoeffizienten von HTO nur sehr wenige gesicherte Messungen vorliegen.

Es fällt auf, daß die Referenzdosiswerte des BMU-Modells unterhalb der internationalen Vergleichswerte (siehe Tabelle 6-1) liegen. Dies kann auf zwei Gründe zurückgeführt werden. Die Freisetzungshöhe im internationalen Vergleich betrug 100 m, in der Sensitivitätsstudie mit dem BMU-Modell 150 m, was z.B. bei der Inhalationsdosis etwa einen Faktor 5 ausmacht. Beim BMU-Modell wurden 150 m Freisetzungshöhe gewählt, da zu erwarten ist, daß auch die Kamine künftiger Fusionsreaktoren eher Bauhöhen von 150 m und mehr aufweisen werden. Zum zweiten benutzen die meisten internationalen Modelle Ausbreitungsparameter, die auf flaches unbebautes Gelände zugeschnitten sind. Diese bedingen aber engere Fahnen, höhere Fahnenachsenkonzentrationen und damit höhere Dosen. Den Ausbreitungsparametern des BMU-Modells sind dagegen bewaldetes und bebautes Gelände zuzuordnen, eine Landschaftsform, die in Deutschland häufiger anzutreffen ist als z.B. in den USA.

Mit dem leicht unterschiedlichen Ansatz im BMU-Modell, der nicht auf dem Tritiumgleichgewicht in der Luftfeuchte und im Gewebewasser der Pflanzen beruht, sondern, wie oben beschrieben, auch die Tritiumkonzentration im Bodenwasser berücksichtigt, werden bei gleichen Rechenannahmen dennoch ähnliche Dosisergebnisse erzielt wie mit den übrigen zum Vergleich herangezogenen Modellen. Die verhältnismäßig enge Bandbreite aller rekalibrierten Modelle weist auf ein relativ gutes Verständnis der physikalischen Vorgänge hin und ist ein Indiz dafür, daß die Summe der in Tabelle 6-1 angegebenen maximalen Dosiswerte für die Expositionspfade Inhalation + Hautabsorption und Ingestion von $0,55 \mu\text{Sv/Jahr}$ bei freigesetzten $3,7 \cdot 10^{10} \text{ Bq / Tag}$ (1 Ci/Tag) tatsächlich als obere Abschätzung anzusehen ist.

Für den Betrieb der zukünftigen ITER-Anlage werden Freisetzungsraten von weniger als $3,7 \cdot 10^{11} \text{ Bq / Tag}$ (10 Ci/Tag) abgeschätzt [6-12]. Dies bedeutet nach allen Modellen eine maximale Strahlenexposition von etwa $5 \mu\text{Sv/Jahr}$ ($0,5 \text{ mrem/Jahr}$) am Zaun der Anlage. Dieser Wert liegt in der gleichen Größenordnung wie die Strahlenexposition in der Nähe eines großen Kohlekraftwerkes (durch emittierte natürliche Radionuklide). Er liegt deutlich unter dem Grenzwert von $300 \mu\text{Sv}$ (30 mrem) pro Jahr, der bei der Planung bzw. beim Betrieb von kerntechnischen Anlagen einzuhalten ist, und weit unterhalb der natürlichen Strahlenexposition, die in Deutschland 1500 bis $4000 \mu\text{Sv/Jahr}$, im Mittel etwa $2400 \mu\text{Sv/Jahr}$ (240 mrem/Jahr) beträgt.

6.1.2 Unfallbedingte Freisetzung

Bei Unfällen kann Tritium entweder in Form von Tritiumgas (HT) oder in der radiotoxisch wirksameren chemischen Form des tritierten Wasserdampfes (HTO) freigesetzt werden. Freisetzungsdauer und -höhe hängen stark von Art und Ablauf des Unfalls ab. Im allgemeinen rechnet man pessimistisch mit kurzen Freisetzungszeiten (≥ 2 min.) und geringen Freisetzungshöhen (10 - 20 m).

Deterministisch - konservative Abschätzung der Strahlenexposition bei Unfällen

Wie beim Normalbetrieb basieren auch die meisten Veröffentlichungen zur Abschätzung der unfallbedingten Strahlenexposition auf konservativen Annahmen. Die Rechnungen werden deterministisch für einen sogenannten "worst case", also einen besonders ungünstigen Freisetzungsfall, mit klar definierten äußeren Randbedingungen durchgeführt. Den Parametern der radiologischen Modelle (wie z.B. atmosphärische Ausbreitung, Ablagerung und Reemission) werden möglichst konservative, aber nicht völlig unrealistische Zahlen zugewiesen. Ebenso werden für die Dosisberechnung bei Größen wie Verzehrraten und Lebensgewohnheiten deutlich konservative Annahmen getroffen.

Ein typisches Beispiel für deterministisch - konservative Abschätzungen der Strahlenexposition bei einem Unfall ist in [6-10] beschrieben. Da die in der Bundesrepublik Deutschland zur Zeit gültige Berechnungsgrundlage [6-3] für unfallbedingte Strahlenexpositionen keine tritiumspezifischen Vorschriften aufweist, wird soweit wie möglich auf das Normalbetriebsregelwerk zurückgegriffen. So wird in [6-10] unterstellt, daß die Tritiumfreisetzung in Form von HTO erfolgt. Für die Emission wird eine kurze Freisetzungsdauer (2 min) unterstellt; die Freisetzung erfolgt in einer Höhe von 20m aus einem Gebäude mit 50 m x 50 m Grundfläche und 70 m Höhe. Diese Daten gehen in die Berechnung des Gebäudeeinflusses auf die atmosphärische Ausbreitung ein. Als Abstand des Emissionsortes zum Zaun werden 500, 1000 und 2000 m betrachtet.

Zur Berechnung der Ausbreitung in der Atmosphäre dient das in [6-3] angegebene Rechenverfahren: Für ein einfaches Gauß-Modell werden verschiedene Wettersituationen vorgegeben. Die Strahlenexposition wird für die ungünstigste dieser Wettersituationen berechnet. Die Ausbreitungsrechnung liefert einen Kurzzeitausbreitungsfaktor sowie einen Washoutfaktor, mit deren Hilfe die Aktivitätskonzentration in der bodennahen Luft am betrachteten Aufpunkt sowie die deponierte Tritiumkonzentration ermittelt wird.

Im vorliegenden Fall wurde als ungünstigste Wettersituation eine stabile Diffusionskategorie ohne Niederschlag angenommen. Es wurde weiterhin angenommen, daß das deponierte Tritium gemischt mit dem im Wurzelraum vorhandenen Bodenwasser für die Aufnahme über die Wurzeln in die Pflanzen zur Verfügung steht. Durch den Wasserumsatz im Boden nimmt die Tritiumkonzentration im Erdreich wieder ab; hierbei wurde eine exponentielle Halbwertszeit von 7 Tagen angesetzt.

Zur Modellierung der Tritiumaufnahme und -abgabe der Pflanzen wurde wie beim vorher beschriebenen Gleichgewichtsmodell davon ausgegangen, daß ein Teil des Tritiuminventars der Pflanzen aus der Luftfeuchte, der restliche Teil aus dem Bodenwasser stammt. Während der Freisetzungsdauer nähert sich die Tritiumkonzentration in der Pflanze (bezogen auf den Wassergehalt) derjenigen der Luftfeuchte an. Nach dem Durchzug der Aktivitätsfahne erfolgt eine exponentielle Abnahme.

Der Tritiumtransfer über das Fleisch zum Menschen bleibt außer Betracht. Die Tritiumkonzentration in der Milch wurde proportional zu der in den Pflanzen angesetzt. Die gesamte Ingestionsdosis des Menschen über die Nahrungsmittel ergibt sich aus der zeitlichen Integration der mit den Verzehrmengen gewichteten Tritiumkonzentration in Pflanzen und Milch.

Die Strahlendosis durch Inhalation und Hautabsorption wird aus der zeitintegrierten Aktivitätskonzentration in der bodennahen Luft am betrachteten Aufpunkt, der Atem- bzw. Hautabsorptionsrate und dem Dosisfaktor für HTO berechnet.

Mit diesen Annahmen und den sehr einfachen Modellansätzen wird in [6-10] für eine erwachsene Person bei Daueraufenthalt am höchstbelasteten Aufpunkt im Bereich des Anlagenzaunes (1000 m) pro in Form von HTO freigesetztem Gramm Tritium ($3,7 \cdot 10^{14}$ Bq)* eine Dosis aus Inhalation + Hautabsorption von 0,2 mSv und eine Ingestionsdosis von 2,3 mSv berechnet. (Die entsprechenden Dosiswerte für Kleinkinder sind 0,4 mSv bzw. 3,2 mSv pro in Form von HTO freigesetztem Gramm Tritium).

*) Wegen der häufigen Umrechnungen von Bq, Ci und g wird hier mit einer spezifischen Tritiumaktivität von ca. $3,7 \cdot 10^{14}$ Bq/g gerechnet (Der genaue Wert ist $3,558 \cdot 10^{14}$ Bq/g, vgl. Tab. 1-1). Damit ergibt sich: 1 g Tritium = $3,7 \cdot 10^{14}$ Bq = $1 \cdot 10^4$ Ci

Weitere deterministische Abschätzungen findet man in [6-7], [6-8] und [6-12]. Dort wurden meist Modelle eingesetzt, die über einfache Gleichgewichts-Kompartiment-Modelle, wie sie noch in den 70er und 80er Jahren benutzt wurden, hinausgehen. Bei einer normierten Freisetzung von einem Gramm ($3,7 \cdot 10^{14}$ Bq) Tritium in Form von HTO werden für Inhalation + Hautabsorption Strahlendosen von 0,2 bis 1,5 mSv und für Ingestion Strahlendosen von 0,6 bis 5,5 mSv in 1000 m Entfernung von der Quelle berechnet (vergleiche Tabelle 6-5).

Dosis	Minimaler Wert	Maximaler Wert
Inhalation + Hautabsorption	0,2 mSv	1,5 mSv
Ingestion*)	0,6 mSv	5,5 mSv

Tab. 6-5: Deterministische Dosiswerte für eine Entfernung von 1000 m bei einem Quellterm von 1 g ($3,7 \cdot 10^{14}$ Bq) Tritium in Form von HTO

*) kann gemäß [6-3] mit Ausnahme der ersten 24 Stunden in einem Umkreis von 2 km unberücksichtigt bleiben.

Bei Störfällen ist die Ingestion ein Expositionspfad, der sich leicht durch administrative Maßnahmen, wie z. B. Verzehrverbot von kontaminierten Nahrungsmitteln verhindern lässt. In Ländern wie den USA oder Großbritannien wird daher die Ingestion bei der Abschätzung einer störfallbedingten Strahlenexposition der Bevölkerung nicht berücksichtigt. In Deutschland kann die Ingestion in einem Umkreis von 2 km (mit Ausnahme der ersten 24 Stunden) ebenfalls unberücksichtigt bleiben.

Probabilistisch - realistische Analysen

Im Rahmen von Genehmigungsverfahren werden in der Regel - wie oben beschrieben - konservative Dosisabschätzungen durchgeführt, da der Gesetzgeber Unkenntnisse oder Unsicherheiten in Rechenmodellen und Daten durch pessimistische Annahmen berücksichtigt. Zur Beurteilung der zu erwartenden Konsequenzen von unfallbedingten Aktivitätsfreisetzungen - insbesondere im Hinblick auf den Strahlenschutz der Bevölkerung - ist es notwendig, möglichst realitätsnahe Berechnungsverfahren einzusetzen. Derartige Rechenmodelle wurden in der Vergangenheit vor allem für probabilistische Unfallfolgenabschätzungen im Rahmen von Risikostudien für Leichtwasserreaktoren oder Schnelle Brutreaktoren entwickelt und angewendet ([6-5] und [6-6]). Die Vorgehensweise bei probabilistischen Analysen wird im folgenden kurz erläutert.

Im Gegensatz zu den Freisetzungen während des Normalbetriebs einer tritium-führenden Anlage, die kontrolliert und mehr oder weniger kontinuierlich über den Betriebszeitraum erfolgen, sind bei unfallbedingten Tritiumfreisetzungen weder Höhe und Zeitpunkt noch die dann vorliegenden Umgebungsbedingungen - insbesondere das Wettergeschehen - im voraus bekannt. Allerdings lassen sich aus meteorologischen Aufzeichnungen der Vergangenheit Wahrscheinlichkeitsaussagen über Wettersituationen und Wetterabläufe machen. Werden für eine Vielzahl derartiger Situationen Dosisabschätzungen durchgeführt, lassen sich die Ergebnisse in Wahrscheinlichkeitsverteilungen darstellen. Die probabilistische Vorgehensweise liefert also ein umfangreiches Spektrum der bei unfallbedingten Tritiumfreisetzungen möglichen Dosiswerte mit ihren zugehörigen Eintrittswahrscheinlichkeiten und ist damit aussagekräftiger als eine rein deterministische Betrachtungsweise, da die Relevanz fest vorgegebener Situationen nur schwer einschätzbar ist.

Die Basis einer probabilistischen Abschätzung bilden im allgemeinen Datensätze, die stündliche Aufzeichnungen des Wettergeschehens und andere relevante Umweltgrößen enthalten. Prinzipiell wären - wie bei der Abschätzung für den Normalbetrieb - stündliche Ausbreitungsrechnungen über den Zeitraum von z.B. einem Kalenderjahr möglich. Da die Prozesse, die das Verhalten von Tritium in der Umwelt und damit auch die zu erwartende Dosis bestimmen, sehr komplex sind (siehe auch Kap. 5.1), ist aus Gründen der Rechnerkapazität die Dosisberechnung für 8760 Einzelsituationen nicht praktikabel. Als Ausweg besteht jedoch die Möglichkeit, das Wetter- und Umweltgeschehen für bestimmte Zeiträume durch eine bestimmte Anzahl von repräsentativen Wetterabläufen wiederzugeben. Hierzu wird der Betrachtungszeitraum, zumeist ein Jahr, in Perioden mit unterschiedlichem Vegetationszustand (z.B. Sommer- und Winterhalbjahr) eingeteilt. Für jede Periode wird eine repräsentative Anzahl von Wetterabläufen (ein Wetterablauf beinhaltet ein eigenständiges Wettergeschehen) mit den zugehörigen Wahrscheinlichkeiten ausgesucht, die das Umwelt- und Wettergeschehen dieses Zeitraums ausreichend gut charakterisieren.

Die probabilistische Vorgehensweise wird am Beispiel des Rechenprogramms UFOTRI [6-13] verdeutlicht. UFOTRI ist bis jetzt weltweit allein in der Lage, sowohl die Frühphase mit atmosphärischer Ausbreitung und Reemission (Expositionspfad Inhalation + Hautabsorption) als auch die Spätphase (Expositionspfad Ingestion) in einem kombinierten Modell sowohl realitätsnah als auch probabilistisch zu behandeln.

Die im folgenden dargestellten Rechenergebnisse wurden allein für den Zeitraum mit Vegetation ermittelt. Als Standort wurde die meteorologische Meßstation von Frankfurt ausgewählt, die die Region des Oberrheingrabens klimatologisch repräsentiert. Die meteorologische Datenbasis entstammt nicht einem konkreten Bezugsjahr, sondern es wurde ein sogenanntes Test-Referenzjahr ausgewählt [6-2], das in seinem Verlauf dem charakteristischen Wettergeschehen in der Region entspricht.

Prozesse, die bei der Abschätzung von Unfallfolgen von Tritiumfreisetzungungen berücksichtigt werden müssen, sind im einzelnen in Kap. 5 diskutiert worden. Es erübrigt sich deshalb, noch einmal näher auf die physikalisch-chemischen Prozesse, die im hier angewendeten Rechenprogramm UFOTRI modelliert sind, einzugehen. Es werden nur kurz die wichtigsten Schlüsselprozesse beschrieben.

Ausgehend von einer Freisetzung von HT und/oder HTO wird die Ausbreitung der primären Fahne in der Atmosphäre mit Hilfe eines Gauß-artigen Trajektorienmodells verfolgt und die nasse und trockene Deposition von HTO bzw. die trockene Deposition von HT mit der anschließenden Umwandlung von HT in HTO durch die Mikroorganismen im Boden berücksichtigt. Die erneute Verteilung des aus dem Boden und der Vegetation reemittierten Tritiums wird mit einem einfachen Flächenquellenmodell mit geradliniger Ausbreitung berechnet. Einfache hydrologische Ansätze beschreiben die Verlagerung des Tritiums innerhalb des Bodens. Der Austausch Pflanze-Atmosphäre sowie Boden-Atmosphäre wird mit Hilfe von Widerstandsbeziehungen modelliert. Das weitere Verhalten von Tritium in der Ökosphäre, das für die Berechnung der Ingestionsdosis notwendig ist, also z.B. die Berücksichtigung von OBT in Tieren und Pflanzen sowie die Transfers Kuh-Atmosphäre, Kuh-Weidepflanze, Kuh-Milch und Nahrungsmittelpflanze-Umgebung, werden in UFOTRI explizit berücksichtigt. Die hohe Komplexität der Austauschvorgänge ließ es vorteilhaft erscheinen, in dem Modell zwei verschiedene Zeitbereiche zu unterscheiden. Kurz nach Beginn der Freisetzung werden für einige Tage alle relevanten Prozesse im Stundentakt berücksichtigt und die jeweiligen Austauschvorgänge stündlich neu berechnet. Später, wenn der Transport von Aufpunkt zu Aufpunkt keine entscheidende Rolle mehr spielt, wird ein Kompartimentmodell eingesetzt, das das weitere Verhalten des Tritiums in den Nahrungsketten dynamisch berechnet. Die zeitabhängigen Transferraten werden dann durch Transferraten ersetzt, die die gesamte Vegetationsperiode repräsentieren.

Im Ingestionsmodell von UFOTRI werden zur Zeit drei Nahrungsmittelpflanzen (Gemüse, Getreide und Kartoffeln) sowie ein Weidetier (Milchkuh) berücksichtigt

[6-14]. Nach Durchführung und Auswertung von Pflanzenexperimenten (siehe auch Kap. 5) werden die benutzten Ansätze verfeinert und erweitert.

Im Gegensatz zu den Abschätzungen für den Normalbetrieb werden für die probabilistischen Ergebnisse keine Unsicherheitsbänder angegeben. Es wird eine Rechnung mit einem realistischen Eingabedatensatz, der z.B. für Deutschland repräsentative Mittelwerte von Pflanzenbewuchs und Verzehrraten enthält, benutzt. Die unterstellte Freisetzungsdauer von 2 Minuten entspricht eher einer konservativen Annahme (Tab. 6-6) Bei der Rechnung werden die radiologischen Fol-

Parameter	Wert
Ausbreitungsparameter	Klug
Quellhöhe	10 m Höhe mit Berücksichtigung der umgebenden Gebäude
Quellstärke	1 g Tritium ($3,7 \cdot 10^{14}$ Bq), als HT bzw. HTO
Freisetzungsdauer	2 Minuten
Entfernung	1000 m
Pflanzen und Bodenparameter	repräsentativ für Deutschland
Atemrate	20 m ³ /Tag
Aufnahme über die Haut	12 m ³ /Tag
Verzehrrate Gemüse	77 kg Jahr [6-15]
Verzehrrate Getreide	72 kg/Jahr [6-15]
Verzehrrate Kartoffeln	74 kg/Jahr [6-15]
Verzehrrate Milchprodukte	110 kg/Jahr [6-15]
Verzehrrate Fleischwaren	104 kg/Jahr [6-15]
Dosisfaktor Inhalation	$1,6 \cdot 10^{-11}$ Sv/Bq
Dosisfaktor Ingestion (HTO)	$1,6 \cdot 10^{-11}$ Sv/Bq
Dosisfaktor Ingestion (OBT)	$4,0 \cdot 10^{-11}$ Sv/Bq
Qualitätsfaktor	1

Tab. 6-6: Spezifikationen wichtiger Basiswerte für realitätsnahe Unfallfolgerechnungen

gen für eine Person, die am Rande der Anlage (1000 m Entfernung) lebt und sich dort 24 Stunden am Tage im Freien aufhält, abgeschätzt. Weiterhin wird angenommen, daß alle Nahrungsmittel, die sie verzehrt, am selben Aufpunkt produ-

ziert werden. Durchgeführt wurden die Rechnungen für einen Tritium-Quellterm von 1 Gramm, in Form von HT bzw. HTO.

Die Abbildungen 6-1 bis 6-6 zeigen die komplementären kumulativen Wahrscheinlichkeitsverteilungen (CCFD) der zu erwartenden Inhalations- und Ingessionsdosen für eine HT- bzw. HTO-Freisetzung ohne Berücksichtigung von Schutz- und Gegenmaßnahmen wie z.B. Verzehrverboten. Sie sind wie folgt zu interpretieren: Jedem Dosiswert ist eine Wahrscheinlichkeit zugeordnet, mit der dieser Dosiswert -oder ein größerer- auftritt. So ist z.B. Abb. 6-1 zu entnehmen, daß Dosen größer als etwa $3 \cdot 10^{-6}$ mSv in 1 % der Unfallfolgesituationen zu erwarten sind, bzw. daß in 99% der Fälle Dosen kleiner als $3 \cdot 10^{-6}$ mSv auftreten (99%-Fraktilwert). Die CCFD wird aus allen Dosiswerten gebildet, die auf dem in 72 Sektoren unterteilten Kreisring in einer bestimmten Entfernung (hier 1000 m) und bei allen Wetterabläufen auftreten. Es werden also nicht nur die maximalen Dosiswerte für das Most Exposed Individual (MEI), wie im deterministischen Fall geschehen, ausgewiesen. Wegen dieser unterschiedlichen Betrachtungsweise ist ein direkter Vergleich von CCFD- und MEI - Dosiswerten nicht sinnvoll.

Betrachten wir die Ergebnisse für die HT-Freisetzung, so wird der Einfluß der Reemission des in HTO umgewandelten Tritiumgases besonders deutlich sichtbar. Die Dosiswerte bei gleicher Eintrittswahrscheinlichkeit, resultierend aus Hautabsorption + Inhalation, erhöhen sich um mehr als den Faktor 50 gegenüber denjenigen aus dem Fahnendurchzug allein. Wie auch bei den Abschätzungen für den Normalbetrieb liegt die Strahlenexposition aus der Aufnahme von kontaminierten Nahrungsmitteln über allen anderen Aufnahmewegen (Abb. 6-1 bis 6-3).

Bei HTO-Quelltermen fällt im Vergleich zu Freisetzungen von HT-Gas auf, daß sich die Dosis bei Berücksichtigung des Reemissionsvorganges für den Expositionspfad Inhalation + Hautabsorption kaum erhöht. Nur die Wahrscheinlichkeit steigt an, daß ursprünglich nicht betroffene Gebiete durch wieder in die Atmosphäre reemittiertes HTO kontaminiert werden. Die Dosiswerte durch Verzehr von kontaminierten Nahrungsmitteln liegen auch hier über denjenigen der anderen Expositionspfade (Abb. 6-4 bis 6-6). Die Tatsache, daß sich die Ergebnisse der Abschätzungen für beide chemischen Formen nicht um den Faktor von ca. 10000 unterscheiden, wie vom Dosisfaktor her zu erwarten wäre, sondern, bei gleicher Eintrittswahrscheinlichkeit, um etwa den Faktor 20 bei der Ingestion und etwa den Faktor 200 bei der Inhalation + Hautabsorption, erklärt sich durch die Umwandlung von HT in HTO im Boden mit anschließender Reemission.

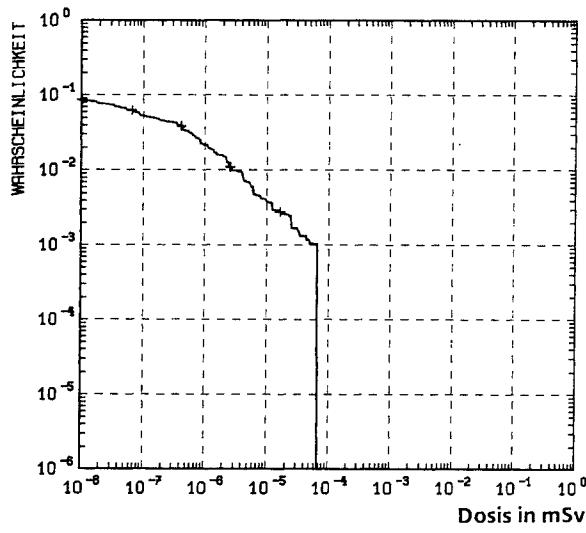


Abb. 6-1: Dosisverteilung in 1000 m Entfernung bei einer T-Freisetzung von 1g als HT; Expositionspfade: Inhalation + Hautabsorption aus Fahnendurchzug

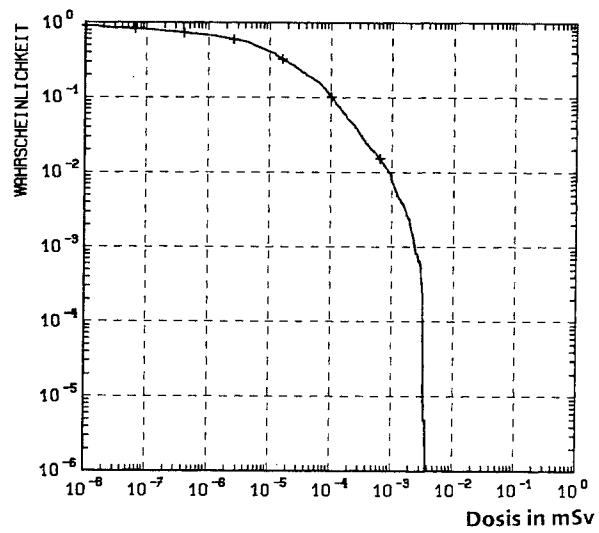


Abb. 6-2: Dosisverteilung in 1000 m Entfernung bei einer T-Freisetzung von 1g als HT; Expositionspfade: Inhalation + Hautabsorption aus Fahnendurchzug + Reemission

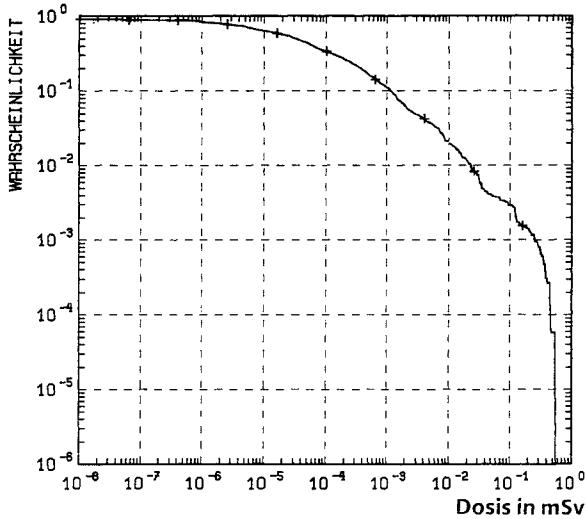


Abb. 6-3: Dosisverteilung in 1000 m Entfernung bei einer T-Freisetzung von 1 g als HT; Expositionspfad: Ingestion

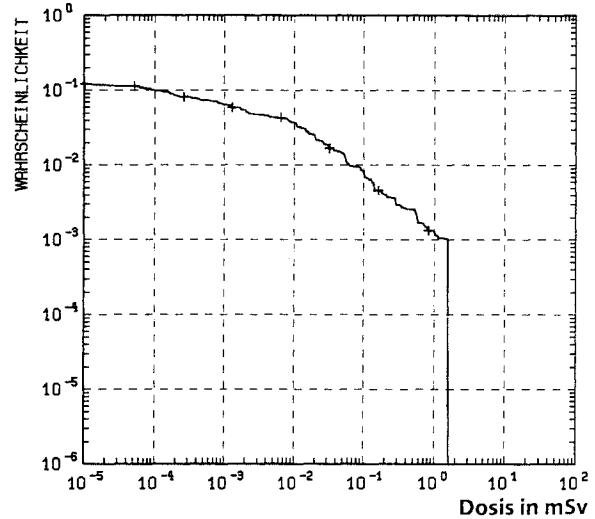


Abb. 6-4: Dosisverteilung in 1000 m Entfernung bei einer T-Freisetzung von 1g als HTO; Expositionspfade: Inhalation + Hautabsorption aus Fahnendurchzug

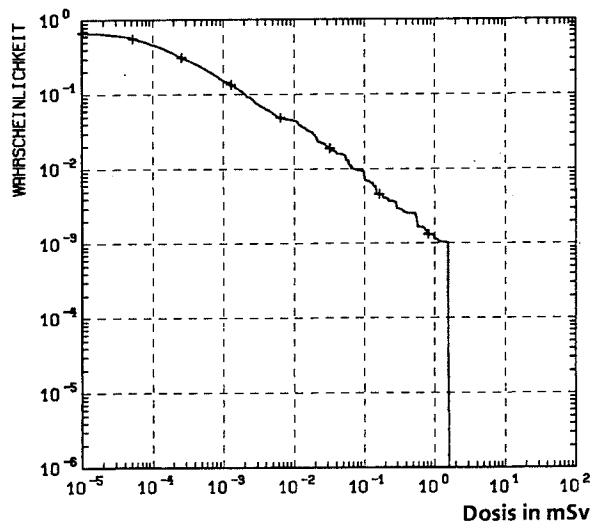


Abb. 6-5: Dosisverteilung in 1000 m Entfernung bei einer T-Freisetzung von 1g als HTO; Expositionspfade: Inhalation + Hautabsorption aus Fahnendurchzug + Reemission

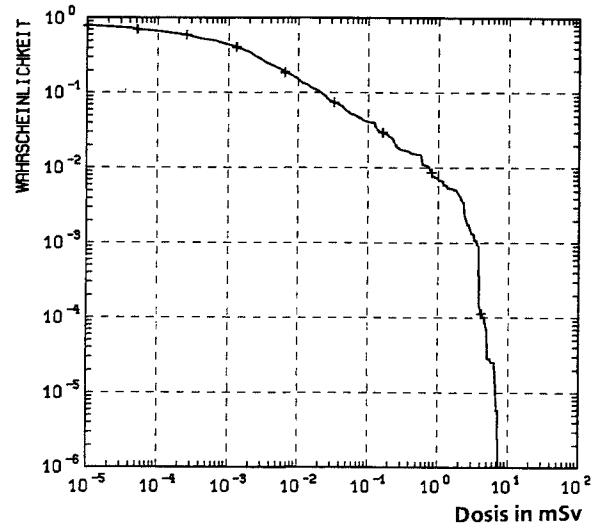


Abb. 6-6: Dosisverteilung in 1000 m Entfernung bei einer T-Freisetzung von 1g als HTO; Expositionspfad: Ingestion

6.2 Strahlenexposition bei der Ableitung von Tritium mit dem Abwasser

6.2.1 Grundlagen

Ausgangspunkt für die Berechnung der Strahlenexposition bei der Ableitung von radioaktiven Stoffen mit dem Abwasser ist die Konzentration der zu berücksichtigenden Radionuklide im sog. "Vorfluter". Darunter versteht man das Gewässer, in das die Abwässer einer Anlage eingeleitet werden. Die Konzentration der Radionuklide ergibt sich im wesentlichen aus dem Mischungsverhältnis aus der Ableitung und dem Abfluß des Vorfluters.

Bei der Berechnung der Strahlenexposition durch die Ableitung kerntechnischer Einrichtungen wird das Rechenmodell der Richtlinie zu § 45 der Strahlenschutzverordnung [6-4] zugrunde gelegt. Ziel dieser Richtlinie ist es, auf der Basis eines radioökologischen Modells die gewählten Parameter so festzulegen, daß die zu erwartende Strahlenexposition nicht unterschätzt wird.

Die Strahlenexposition ist danach für eine Referenzperson an den ungünstigsten Einwirkungsstellen zu ermitteln. Die ungünstigsten Einwirkungsstellen sind die Orte in der Umgebung einer Anlage oder Einrichtung, bei denen aufgrund der Verteilung der abgeleiteten radioaktiven Stoffe in der Umwelt durch Aufenthalt oder durch Verzehr dort erzeugter repräsentativer Lebensmittel die höchste Strahlenexposition zu erwarten ist.

6.2.2 Expositionspfade

Bei der Ableitung und Verteilung radioaktiver Stoffe mit dem Abwasser sind folgende Expositionspfade zu berücksichtigen [6-4]:

- Aufenthalt auf Sediment,
- Aufnahme von Trinkwasser,
- Verzehr von Fisch,
- Verzehr von pflanzlichen Nahrungsmitteln (ohne Blattgemüse),
- Verzehr von Blattgemüse,
- Verzehr von Fleisch (Rindfleisch) und Fleischprodukten über
 - Viehränke -> Rind und
 - Beregnung -> Futter -> Rind,
- Aufnahme von Milch über

- Viehtränke -> Rind und
- Beregnung -> Futter -> Rind,
- landwirtschaftliche Nutzung von Überschwemmungsgebieten,
- landwirtschaftliche Nutzung von Fluss- und Klärschlamm.

Bei der Ermittlung der Strahlenexposition durch die Ableitung von Tritium bleibt

- Tritium ist ein reiner β -Strahler - die äußere Exposition durch Aufenthalt auf Sediment unberücksichtigt.

Die beiden letzten Expositionspfade werden nur betrachtet, wenn dies aufgrund örtlicher Besonderheiten begründet ist.

6.2.3 Berechnung der Strahlenexposition

Die Jahressdosis H durch Tritium berechnet sich für das betrachtete Organ nach folgender Beziehung [6-4]:

$$H = (U^W C^W + U^{Fi} C^{Fi} + U^{Pf} C^{Pf} + U^{Bl} C^{Bl} + U^{Fl} C^{Fl} + U^{Mi} C^{Mi}) g \quad (6-1)$$

Dabei sind:

U^i : Verzehrmengen für folgende Nahrungsmittel i:

	Erwachsene	Kleinkinder
W: Wasser	800 l	250 l
Fi: Fisch	20 kg	---
Pf: pflanzl. Produkte	460 kg	50 kg
Bl: Blattgemüse	40 kg	10 kg
Fl: Fleisch	150 kg	20 kg
Mi: Milch	330 kg	200 kg

g: Dosisfaktor für Ingestion, für alle Organe:

Erwachsene $1,6 \cdot 10^{-11}$ Sv/Bq, Kleinkinder $4,6 \cdot 10^{-11}$ Sv/Bq

Cⁱ: Nuklidkonzentration in den betrachteten Nahrungsmitteln
(siehe unten)

- Aktivität im Trinkwasser

Bei Trinkwasser wird eine Entnahme direkt aus dem Vorfluter angenommen. Die Konzentration von Tritium im Trinkwasser (C^W) wird daher der des Vorfluters gleichgesetzt. Die Verzögerungszeit zwischen Entnahme, Aufbereitung und Einspeisung in das Trinkwassernetz spielt bei einer physikalischen Halbwertszeit von 12,3 Jahren bei Tritium keine Rolle.

- Aktivität im Fischfleisch

Nach dem spezifischen Aktivitätsmodell entspricht die spezifische Aktivität im Fischfleisch (C^{FI}) der Konzentration von Tritium im Wasser.

- Aktivität in pflanzlichen Produkten

Bei pflanzlichen Produkten einschließlich Blattgemüse und dem Futter der Tiere wird ausschließlich eine Wasseraufnahme über die "Beregnung" betrachtet. Daher ist die Tritiumkonzentration in den Pflanzen ($C^{Pf/Bl}$) gleich der des Beregnungswassers zu setzen.

Aktivität im Fleisch

Bei Fleisch und Fleischprodukten (Rindfleisch) wird die Wasseraufnahme des Rindes sowohl über den Pfad "Viehtränke" als auch über den Pfad "Beregnung -> Pflanze" berücksichtigt. Bei dem Pfad "Viehtränke" ergibt sich die Tritiumkonzentration im Fleisch aus folgender Beziehung:

$$C^{FI} = C^W \cdot L \cdot T^{FI} \quad (6-2)$$

Dabei bedeuten:

C^W : Tritiumkonzentration des Trinkwassers (vgl. Aktivität im Trinkwasser)

L: Wasseraufnahme des Rindes (75 l/d)

T^{FI} : Transferfaktor von Wasser zum Fleisch (0,02 d pro kg Fleisch)

Bei der "Beregnung" gelangt das Tritium über das Futter in das Rind. Für die Konzentration von Tritium im Fleisch ergibt sich auf diesem Wege:

$$C^{FI} = C^{Fu} \cdot M^{Fu} \cdot T^{FI} \quad (6-3)$$

wobei:

C^{Fu} : Tritiumkonzentration im Futter (entspricht der Tritiumkonzentration des Beregnungswassers C^W)

M^{Fu} : Futteraufnahme des Rindes (65 kg/d)

Damit lässt sich Gl. (6-3) wie folgt schreiben:

$$C^{Fl} = C^W M^{Fu} T^{Fl} \quad (6-3a)$$

Für Gleichung (6-1) werden bei Fleisch die beiden Anteile aus Gl. (6-2) und Gl. (6-3) addiert. Ein Abklingen der Tritiumaktivität bei Verarbeitung, Transport und Lagerung von Fleisch kann bei Tritium vernachlässigt werden.

- Aktivität in Milch

Auch bei Milch werden die Beiträge aus den Pfaden "Viehtränke" und "Berechnung" berücksichtigt. Bei der Betrachtung des Pfades "Viehtränke" wird folgende Beziehung zugrunde gelegt:

$$C^{Mi} = C^W L T^{Mi}, \quad (6-4)$$

wobei außer den bereits erläuterten Parametern:

T^{Mi} = Transferfaktor vom Wasser zur Milch (0,02 d pro kg Milch)

Bei dem Expositionspfad "Berechnung" wird das Tritium aus dem Berechnungswasser über das Futter von dem Rind aufgenommen. Für die Konzentration in der Milch ergibt sich:

$$C^{Mi} = C^{Fu} M^{Fu} T^{Mi} \quad (6-5)$$

Alle Parameter sind bereits oben erläutert. In den Futterpflanzen wird wie oben die Tritiumkonzentration im Futter (C^{Fu}) gleich der des Berechnungswassers (C^W) gesetzt. Damit ergibt sich aus Gl. (6-5):

$$C^{Mi} = C^W M^{Fu} T^{Mi} \quad (6-5a)$$

Beide Beiträge - "Viehtränke" und "Berechnung"- sind bei der Gesamtbelastung additiv zu berücksichtigen.

- Gesamtdosis

Nach den Ausführungen zu den einzelnen Expositionspfaden lässt sich die Gesamtdosis nach Gl. (6-1) wie folgt formulieren:

$$H = [U^W C^W + U^{Fi} C^W + (U^{Pf} + U^{Bi}) C^W + U^{Fl} C^W T^{Fl} (L + M^{Fu}) + \\ + U^{Mi} C^W T^{Mi} (L + M^{Fu})] g \quad (6-6)$$

Es ist leicht zu sehen, daß die Konzentration in den Nahrungsmitteln nunmehr auf die Tritiumaktivität im Wasser und damit im Vorfluter zurückgeführt ist.

Bezogen auf eine Tritiumkonzentration von 1 Bq pro m³ im Vorfluter, erhält man nach Einsetzen der numerischen Parameterwerte die in Tab. 6-7 zusammengestellten normierten Dosisbeiträge.

Expositionspfad		Jahresdosis, Sv	
Trinkwasser		$1,3 \cdot 10^{-11}$	
Fisch		$3,2 \cdot 10^{-13}$	
Milch	über Viehtränke	$8,0 \cdot 10^{-12}$	
	über Beregnung	$6,9 \cdot 10^{-12}$	
Fleisch	über Viehtränke	$3,6 \cdot 10^{-12}$	
	über Beregnung	$3,1 \cdot 10^{-12}$	
Pflanze (ohne Blattgemüse)		$7,4 \cdot 10^{-12}$	
Blattgemüse		$6,5 \cdot 10^{-13}$	
			$1,5 \cdot 10^{-11}$
			$6,7 \cdot 10^{-12}$
			$8,1 \cdot 10^{-12}$

Tab. 6-7: Normierte Dosisbeträge, bezogen auf eine Tritiumkonzentration von 1 Bq/m³ im Vorfluter

Als Summe über alle Expositionspfade ergibt sich bei einer Tritiumkonzentration von 1 Bq/m³ im Vorfluter eine Jahresdosis von $4,3 \cdot 10^{-11}$ Sv.

Die Tritiumableitung eines künftigen Fusionsreaktors wird in [6-16] mit etwa $5 \cdot 10^{13}$ Bq (50 TBq) pro Jahr abgeschätzt. Würde man z. B. den Rhein (Fluß 1000 m³/s) als Vorfluter benutzen, so ergibt sich unter Annahme einer vollständigen Durchmischung eine mittlere Tritiumkonzentration im Fließwasser von 1600 Bq/m³. Daraus errechnet sich eine Jahresdosis von etwa $7 \cdot 10^{-8}$ Sv (0,07 µSv). Dieser Wert ist sowohl gegenüber dem Grenzwert nach § 45 StrlSchV (0,3 mSv) als auch im Vergleich zur mittleren natürlichen Strahlenexposition (2,4 mSv) vernachlässigbar.

Die aufgezeigte Dosisberechnung ist im Sinne des Strahlenschutzes "konservativ", d.h. das Rechenmodell und die Parameter sind so gewählt, daß die zu erwartende Strahlenexposition nicht unterschätzt wird. Berechnungen mit

dem Ziel der Ermittlung der tatsächlichen Strahlenexposition muß die realen Nutzungsmöglichkeiten und Verzehrgewohnheiten einbeziehen.

6.3 Zusammenfassung

Die radiologischen Folgen einer luftgetragenen Tritiumfreisetzung während des Normalbetriebes einer Anlage können mit Hilfe unterschiedlicher Modellansätze abgeschätzt werden. Die international gebräuchlichen Gleichgewichtsmodelle wie auch das Modell der Berechnungsgrundlage der Strahlenschutzverordnung (BMU-Modell), das im Falle eines Genehmigungsverfahrens zur Anwendung gelangt, erzielen nahezu übereinstimmende Dosiswerte bei gleichen Anwendungsfällen. Die Ergebnisbandbreiten einer auf $3,7 \cdot 10^{10}$ Bq/Tag (1 Ci/Tag) und 100 m Kaminhöhe normierten HTO-Freisetzung sind in den Tabellen 6-1 und 6-4 angegeben. Die verhältnismäßig enge Bandbreite aller rekalibrierten Modelle weist auf ein relativ gutes Verständnis der physikalischen Vorgänge hin und ist ein Indiz dafür, daß der in Tabelle 6-1 angegebene obere Dosiswert von Inhalation, Hautabsorption und Ingestion von etwa 0,5 $\mu\text{Sv}/\text{Jahr}$ bei einer Freisetzung von $3,7 \cdot 10^{10}$ Bq / Tag (1 Ci/Tag) wohl als obere Abschätzung anzusehen ist.

Während des Betriebs der zukünftigen ITER-Anlage sind Freisetzungsraten von weniger als $3,7 \cdot 10^{11}$ Bq / Tag (10 Ci/Tag) zu erwarten [6-12]. Dies bedeutet nach allen Rechenmodellen eine maximale Strahlenexposition von etwa 5 $\mu\text{Sv}/\text{Jahr}$ (d.h. ca. 0,5 mrem/Jahr) am Zaun der Anlage. Dieser Wert liegt in der gleichen Größenordnung wie die Strahlenexposition in der Nähe eines großen Kohlekraftwerkes (durch emittierte natürliche Radionuklide). Er liegt deutlich unter dem Grenzwert von 300 μSv (30 mrem) pro Jahr, der bei der Planung bzw. beim Betrieb von kerntechnischen Anlagen einzuhalten ist, und weit unterhalb der natürlichen Strahlenexposition in der Bundesrepublik Deutschland von 1500 bis 4000 $\mu\text{Sv}/\text{Jahr}$, im Mittel etwa 2400 μSv (240 mrem) pro Jahr.

Werden luftgetragene Tritiumfreisetzungen während Stör- bzw. Unfällen betrachtet, so liegen keine tritiumspezifischen Vorschriften von seiten des Gesetzgebers vor. Somit kommen verschiedene Vorgehensweisen bei der Abschätzung der radiologischen Folgen für die Bevölkerung in Betracht. Zum einen sind deterministisch - konservative Rechnungen mit einem 'worst case'-Szenario möglich (vgl. Tab. 6-5), zum anderen kann mit Hilfe von probabilistischen Unfallfolgenabschätzungen das Spektrum der Dosiswerte zusammen mit den zugehörigen Wahrscheinlichkeiten realitätsnah ermittelt werden (vgl. Abb. 6-1 bis 6-6). Bei allen Abschätzungsweisen wird deutlich, daß der größte Anteil der zu erwarten-

den Dosis - bei Unfällen oder im Normalbetrieb - durch den Verzehr von kontaminierten Nahrungsmitteln verursacht wird.

Die Dosiswerte bei einer HT-Freisetzung sind um den Faktor 20 und mehr geringer als diejenigen einer vergleichbaren HTO-Freisetzung.

Deterministisch-konservative Abschätzungen haben gezeigt (vgl. Tab. 6-5), daß bei einer störfallbedingten Tritium-Freisetzung von $3,7 \cdot 10^{14}$ Bq (1 g Tritium in Form von HTO) am Anlagenzaun mit einer Dosis von max. 1,5 mS durch Inhalation und Hautabsorption und max. 5,5 mSV durch Ingestion zu rechnen ist.

Hierbei ist die Ingestion ein Expositionspfad, der sich im Störfall leicht durch administrative Maßnahmen, wie z.B. Verzehrverbot von kontaminierten Nahrungsmitteln, verhindern läßt. Deshalb wird z.B. in den USA und Großbritanien zur Abschätzung einer störfallbedingten Stahlenexposition der Bevölkerung allein die Dosis aus Inhalation und Hautabsorption herangezogen.

In Deutschland wird gemäß Störfallleitlinie [6-3] unterstellt, daß die Verhängung von Verzehrverboten spätestens nach 24 Stunden greift. In einem Umkreis von 2 km braucht daher der Ingestionspfad nach den ersten 24 Stunden nicht mehr berücksichtigt zu werden. Die maximale Gesamtdosis am Anlagenzaun ergibt sich dann zu etwa 2,0 mSv. Vergleicht man diesen Wert mit dem Grenzwert von 50 mSv der in Deutschland gültigen Vorschriften [6-4], so ergibt sich, daß die störfallbedingte Freisetzung von Tritium in Form von HTO auf etwa 25 g beschränkt werden muß.

Die Strahlenexposition bei der Ableitung von Tritium mit dem Abwasser hängt allein von der Tritiumkonzentration im Vorfluter ab (darunter versteht man das Gewässer, in das die Abwässer einer Anlage eingeleitet werden). Bei Anwendung der Richtlinie zu § 45 der deutschen Strahlenschutzverordnung [6-4], ergibt sich bei einer Tritiumkonzentration von 1 Bq/m³ im Vorfluter für eine Referenzperson an der ungünstigsten Einwirkungsstelle über alle Expositionspfade eine Jahresdosis von $4,3 \cdot 10^{-11}$ Sv.

Die Tritiumableitung eines künftigen Fusionsreaktors wird in [6-16] mit $5 \cdot 10^{13}$ Bq (50 TBq) pro Jahr abgeschätzt. Würde man z. B. den Rhein (Fluß 1000 m³/s) als Vorfluter benutzen, so ergibt sich unter Annahme einer vollständigen Durchmischung eine mittlere Tritiumkonzentration im Fließwasser von 1600 Bq/m³. Daraus errechnet sich eine Jahresdosis von etwa $7 \cdot 10^{-8}$ Sv (0,07 µSv). Dieser Wert ist sowohl gegenüber dem Grenzwert nach § 45 StrlSchV (0,3 mSv) als auch im Vergleich zur mittleren natürlichen Strahlenexposition (2,4 mSv) vernachlässigbar.

6.4 Literatur zu Kapitel 6

- [6-1] H.-W. Bartels,
Comparison of Predictions of Doses Following a Continuous
HTO Release,
ITER-IL-SA-4-0-68, (1990) .
- [6-2] K. Blümel et al.,
Entwicklung von Testreferenzjahren (TRY) für Klimaregionen der Bundesrepublik
Deutschland,
Bundesministerium für Forschung und Technologie,
Forschungsbericht T 86-051, Bonn, Juli 1986, (1986) .
- [6-3] Der Bundesminister des Inneren,
Leitlinie zur Beurteilung der Auslegung von Kernkraftwerken mit Druckwasserreakto-
ren gegen Störfälle im Sinne des § 28 Abs. 3 StrlSchV,
Bundesanzeiger Nr. 245a, Dezember 1983, Bonn, (1983) .
- [6-4] Der Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit,
Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 45 StrlSchV:
Ermittlung der Strahlenexposition durch die Ableitung radioaktiver Stoffe aus kern-
technischen Anlagen oder Einrichtungen,
Bundesanzeiger 42, Nr. 64a vom 21.02.1990, Bonn, (1990) .
- [6-5] J. Ehrhardt et al.,
Structure, Important Features, and Illustrative Results of the New
UFOMOD Program System Assessing the Radiological Consequences
of Nuclear Accidents,
Nuclear Technology, vol. 94, S. 177 - 195, (1991) .
- [6-6] COSYMA: A New Program Package for Accident Consequence
Assessment,
A Joint Report of KfK and NRPB,
Commission of the European Communities,
Report EUR-13028 EN(1991).
- [6-7] W. Gulden, W. Raskob, O. Edlund,
Doses to the Public due to Accidental Releases,
Presented at: 16th SOFT, London, UK, September 1990, (1990) .
- [6-8] W. Gulden and W. Raskob,
Accidental Tritium Doses on Realistic Modelling,
Presented at: 4th Topical Meeting on Tritium Technology in Fission,
Fusion and Isotopic Applications, Albuquerque, Sept. 29. - Oct. 4, 1991, Fusion Technolo-
gy (1992) .
- [6-9] W. Hübschmann and W. Raskob,
ISOLA V - A FORTRAN 77-Code for the Calculation of the Long-Term
Concentration Distribution in the Environment of Nuclear Installations,
KfK-report 4606, Kernforschungszentrum Karlsruhe, (1990) .
- [6-10] H. Müller et al.,
Radiologische Auswirkungen von Tritium-Emissionen eines Fusionsreaktors,
Physikalische Blätter 46, S. 182-185, (1990) .
- [6-11] C.E. Murphy, Jr. et al.,
Tritium in the Savannah River Site Environment (U),
Westinghouse Savannah River Company, (1990).

- [6-12] J. Raeder et al.,
ITER Safety, ITER Documentation Series, No. 36,
IAEA, Wien 1991, (1991).
- [6-13] W. Raskob,
UFOTRI: Program for Assessing the Off-Site Consequences from
Accidental Tritium Releases,
KfK-Report 4605, Kernforschungszentrum Karlsruhe, (1990).
- [6-14] W. Raskob,
Modelling of Tritium Behaviour in the Environment,
Presented at: 4th Topical Meeting on Tritium Technology in Fission, Fusion and Isotopic
Applications, Albuquerque Sept. 29. - Oct. 4, 1991, Fusion Technology, (1992).
- [6-15] Statistisches Bundesamt / Wiesbaden,
Statistisches Jahrbuch für die Bundesrepublik Deutschland(1988).
- [6-16] W. Gulden , G. Raeder,
Tritium im Fusionsreaktor,
Physikalische Blätter 46, S. 197-181, (1990).

7. Strahlenschutz

H. Dilger, A. Wicke

7.1 Schutzziele

Zur Minimierung von beruflichen Strahlenexpositionen dienen zum einen die technische Auslegung von tritiumführenden Systemen und zum anderen die Maßnahmen des betrieblichen Strahlenschutzes. Die Einhaltung der gesetzlich vorgegebenen Dosisgrenzwerte für die allgemeine Bevölkerung ist im Normalbetrieb durch die Beschränkung der Abgabe von Tritium über den Luft- und Wasserpfad zu gewährleisten. Für Störfälle muß unter der Annahme des ungünstigsten Störfallablaufes und der damit verbundenen Tritiumfreisetzung rechnerisch nachgewiesen werden, daß für eine Referenzperson an der ungünstigsten Einwirkungsstelle die gesetzlichen Grenzwerte für die Körperdosen nicht überschritten werden.

7.1.1 Radiotoxische Einwirkungsmöglichkeiten von Tritium (vgl. Kap. 5)

Aufgrund einer maximalen Reichweite der Tritium-Betateilchen in Geweben von etwa 6 µm können die Basalzellen der Haut durch äußere Bestrahlung nicht erreicht werden [7-1]. Deshalb kann es nur nach Aufnahme von Tritium in den Körper zu einer Strahlenexposition kommen. Dabei ist Tritium in der oxidierten Form als HTO strahlenbiologisch ca. 10000 mal wirksamer als HT. Als HTO nimmt es am normalen Wasserhaushalt des Organismus teil, während HT in vernachlässigbaren Mengen vom Körper absorbiert wird.

HTO kann über drei Pfade ins Innere des Körpers gelangen:

- durch Inhalation von tritiumhaltigem Wasserdampf oder von an Partikel gebundenem Tritium,
- durch Ingestion von tritiumhaltigen Nahrungsmitteln und Flüssigkeiten,
- durch Aufnahme über die Haut durch Eindiffundieren von luftgetragenem Tritium oder durch Absorption nach Kontaminierung.

Von diesen drei Aufnahmepfaden sind die Inhalation und die Hautaufnahme für den beruflichen Umgang mit Tritium maßgebend, während die Ingestion für die allgemeine Bevölkerung vorrangig ist.

7.1.2 Primäre und abgeleitete Grenzwerte für die Exposition mit Tritium

Die primären Grenzwerte sind als effektive Dosen im Kalenderjahr in der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) [7-2] festgelegt (vgl. auch Kap. 8):

- für beruflich strahlenexponierte Personen 50 mSv,
- für eine Referenzperson außerhalb eines Strahlenschutzbereiches 0,3 mSv.

Aus diesen primären Grenzwerten sind für beruflich strahlenexponierte Personen abgeleitete Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr über die Luft und durch Wasser und Nahrung berechnet worden. Der Grenzwert beträgt für beide Formen der Zufuhr $3 \cdot 10^9$ Bq. Die Exposition der allgemeinen Bevölkerung wird unter der Annahme von in der Strahlenschutzverordnung festgelegten Expositionspfaden und Lebensgewohnheiten einer Referenzperson (Verzehrraten von Nahrungsmitteln, Aufenthaltsdauer und Atemraten) nach einer Verwaltungsvorschrift berechnet [7-3].

Für beruflich strahlenexponierte Personen lässt sich aus dem abgeleiteten Grenzwert für die Jahresaktivitätszufuhr über die Luft ein weiterer Grenzwert für die Aktivitätskonzentration der Luft von $8 \cdot 10^5$ Bq/m³ ableiten. Dabei wird von einer jährlichen Aufenthaltsdauer von 2000 h, einer mittleren Atemrate von 1,2 m³/h und einer mittleren Hautabsorptionsrate von 0,6 m³/h [7-4] ausgegangen.

Im beruflichen Bereich sind weiterhin die Grenzwerte für Schutzmaßnahmen bei Oberflächenkontaminationen von Arbeitsplätzen und Gegenständen nach der Strahlenschutzverordnung [7-2] Anlage IX zu beachten. Dabei handelt es sich um organisatorische Grenzwerte, um eine unkontrollierte Verschleppung der Radioaktivität zu vermeiden. Für Tritium beträgt dieser Wert im Kontrollbereich 500 Bq/cm², im betrieblichen Überwachungsbereich 50 Bq/cm² und im allgemeinen Staatsgebiet 5 Bq/cm².

7.1.3 Festlegung von betrieblichen Interventionswerten

Diese Festlegungen richten sich nach den speziellen betrieblichen Abläufen. Hierbei sind die Betriebszeit der Anlage, die Aufenthaltszeit von Personen, das Inkorporationsrisiko bei verschiedenen Arbeiten und die mögliche Freisetzung bei Störfällen zu berücksichtigen.

Eine bewährte betriebliche Praxis ist es z.B., einen Tageswert als Interventionswert für die Inkorporation festzulegen [7-5]. Dieser beträgt 1/250 des Jahresgrenzwertes und beläuft sich auf $1,2 \cdot 10^7$ Bq. Eine weitere betriebliche Einschränkung ist nach der deutschen StrlSchV möglich, indem man Personen als beruflich strahlenexponierte Personen der Kategorie B tätig werden läßt. Dann ist die zulässige effektive Dosis pro Jahr 15 mSv bzw. der abgeleitete Grenzwert für die Jahresaktivitätszufuhr $9 \cdot 10^8$ Bq.

Betrieblich kann man z.B. auch festlegen, daß die Arbeitsräume außerhalb von umschlossenen Apparaten und Einrichtungen als betriebliche Überwachungsbereiche gelten. Dann sind die entsprechenden Werte für die Oberflächenkontamination der Anlage IX Spalte 3 StrlSchV zu verwenden.

7.2 Arbeitsplatz- und Personenüberwachung

7.2.1 Schutz- und Überwachungsstrategie

Die Handhabung von größeren Mengen Tritium muß in geschlossenen Boxen oder Abzügen mit Handschuhen erfolgen (vgl. Kap. 3). Zweckmäßigerweise wird in der Boxenluft die Tritiumaktivitätskonzentration kontinuierlich überwacht.

Da die Boxen nur eine definierte Leckrate haben, ist bei bestimmungsgemäßem Betrieb der Anlagen nur eine geringe Tritiumdiffusion nach außen möglich. Die Permeation des Tritiums durch die Handschuhe ist bei den betrieblich üblichen Aktivitätskonzentrationen zu vernachlässigen. Bei Störfällen oder bei Öffnung der Boxen ist mit der Freisetzung einer größeren Tritiumaktivität in die Raumluft zu rechnen.

In der Raumluft sollte die Aktivitätskonzentration kontinuierlich gemessen werden. Dabei können sowohl Monitoren mit Alarmgebern als auch passive Sammler eingesetzt werden.

An den Oberflächen haftet stets ein Feuchtigkeitsfilm von HTO. Beim Berühren dieser Oberflächen kann HTO über die Haut aufgenommen werden oder, falls die Haut schon kontaminiert war, kann so die Kontamination auf vorher saubere Oberflächen übertragen werden. Deshalb muß die Oberflächenaktivität laufend überprüft werden.

Da die Strahlenexposition mit HTO nur durch Inkorporationen möglich ist, kann die physikalische Strahlenschutzkontrolle des Personals allein durch regelmäßige Untersuchungen der Tritiumaktivitätskonzentration im Urin erfolgen.

7.2.2 Meßgeräte (vgl. auch Kap. 3.9)

Zur kontinuierlichen Bestimmung der Aktivitätskonzentration in der Luft stehen Ionisationskammern und Proportionalzähler zur Verfügung [7-1]. Dabei wird die tritiumhaltige Luft ins Innere von Meßkammern gesaugt. Bei Ionisationskammern ist die Nachweisgrenze von der Größe des Meßvolumens abhängig. Sie liegt für eine 1 l-Kammer bei ca. 50 kBq/m³. Die Anzeige dieser Kammern ist empfindlich gegen γ -Einstrahlung und wird durch eine Parallelkammer ohne Tritiumdurchfluß kompensiert. Höherenergetische β -Strahlung wird durch eine besondere konzentrische Anordnung von zwei Meßkammern eliminiert. Um HTO von HT zu unterscheiden, wird ein Teil des Luftstroms üblicherweise durch einen Feuchtigkeitsadsorber geschickt (Molekularsieb oder Silicagel), so daß nur noch HT gemessen wird, während im anderen Strom die gesamte Tritiumaktivität bestimmt wird. In Boxen, in denen eine Zirkulation vorhanden ist, kann das gesamte Tritium in einer offenen Ionisationskammer gemessen werden.

In den Proportionalzählern wird die Meßluft mit einem Zählgas gemischt und so in den Zähler eingebracht. Durch Reichweitendiskriminierung oder Impulsformanalyse kann zwischen Tritium und höherenergetischen β -Strahlern unterschieden werden. Der Proportionalzähler ist nicht so empfindlich auf γ -Einstrahlung wie die Ionisationskammer. Er hat eine niedrigere Nachweisgrenze als die Ionisationskammer; sie kann bei ca. 1 kBq/m³ liegen.

Zur diskontinuierlichen Bestimmung der Aktivitätskonzentration stehen Sammler zur Verfügung. Sofern nur HTO gemessen werden muß, kann eine einfache Anordnung mit einer Waschflasche verwendet werden. Die Aktivitätskonzentration des Wassers wird dann durch Flüssigszintillatormeßtechnik ausgewertet und mit dem Durchsatz auf die Aktivitätskonzentration in der Meßluft hochgerechnet.

Falls selektiv HT und HTO gemessen werden soll, wird mit Molekularsieben gearbeitet [7-6]. Zuerst wird HTO zurückgehalten, dann das verbleibende HT mittels eines Katalysators oxidiert und dann ebenfalls in einem zweiten Molekularsieb festgehalten. Beide Molekularsiebe werden durch Ionenaustausch mit tritiumfreiem Wasser ausgespült. Das tritiumhaltige Wasser wird wieder wie oben beschrieben ausgewertet. Die Nachweisgrenze beträgt ca. 20 Bq je Molekularsieb.

Zur Kontrolle der Oberflächenaktivität ist Wischprobenahme am günstigsten. Es werden Styroporplättchen verwendet, die sich anschließend im Szintillatorcocktail auflösen. Die von der Strahlenschutzverordnung geforderten Nachweisgrenzen von 5 Bq/cm² lassen sich problemlos erreichen. Direktmessende Proportionalzähler mit offenem Zähler können nur bei ebenen, nicht lichtleitenden Oberflächen verwendet werden.

Zum Nachweis des Tritiums im Urin kann eine direkte Bestimmung ohne vorherige Aufarbeitung erfolgen, wenn keine anderen Nuklide vorliegen. Die Nachweisgrenze beträgt dann 200 Bq/l im Urin.

7.2.3 Organisatorischer Ablauf der Arbeitsplatz- und Personenüberwachung

Die Aktivitätskonzentration der Boxenluft und der Raumluft ist kontinuierlich zu messen.

Vor Ort sollte beim Überschreiten von betrieblichen Interventionswerten akustischer und optischer Alarm erfolgen. Im TLK (Tritiumlabor Karlsruhe) sind diese Interventionswerte z.B. auf 1·10¹⁰ Bq m⁻³ in der Boxenluft bzw. auf ein Konzentrationsintegral von 2·10⁶ Bq m⁻³ h in der Raumluft festgelegt. Diese Werte sind so gewählt, daß genügend Zeit bleibt, um den Arbeitsplatz geordnet zu verlassen, ohne mehr als einen Tageswert zu inkorporieren.

Die Oberflächenüberwachung sollte an ausgewählten Stellen mit häufigem Handkontakt (z.B. Türklinken) täglich, sonst an repräsentativen Oberflächen der Anlagen wöchentlich erfolgen.

Die Personen, die routinemäßig mit Tritium umgehen, werden monatlich zur Urinuntersuchung herangezogen. Dieses Intervall reicht aus, um sowohl bei Einmal- als auch Dauerinkorporationen weniger als 1 % der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr erkennen zu können [7-7].

7.2.4 Schutzkleidung

Schutzkleidung ist nur insoweit notwendig, wie sie zur Begrenzung einer Kontaminationsverschleppung beiträgt. Angemessene Maßnahmen bestehen im Tragen von Berufskitteln und dem Waschen der Hände vor Verlassen der Anlage. Beim Hantieren in den Boxen sollten noch Innenhandschuhe aus PVC getragen werden, um die Permeation von Tritium auf vernachlässigbar kleine Werte zu reduzieren.

7.2.5 Strahlenschutzmaßnahmen bei Montagearbeiten an Handschuhkästen

Zum Einbringen von größeren Aggregaten und zur Durchführung umfangreicher Montagearbeiten müssen die Handschuhkästen - zumeist durch Abbau eines Seitenteils - geöffnet werden [7-5]. Der Austritt von an inneren Oberflächen adsorbiertem Tritium in die Raumatmosphäre sollte soweit wie möglich verhindert werden. Zu diesem Zweck ist eine örtliche Absaugeinheit mit einer Förderung von einigen Hundert m³ Luft pro Stunde in der Nachbarschaft der Interventionsstelle zu installieren, durch die eine gerichtete Strömung zur Absaugöffnung hin eingestellt werden kann.

Die abgesaugte Luft sollte über einen gesonderten Kanal in die Gebäudeabluft eingeleitet werden.

Die Aktivitätsüberwachung sollte zusätzlich zu den ortsfesten Geräten durch ein mobiles Meßsystem erfolgen, das Raumluft direkt aus dem Einzugsbereich der lokalen Absaugung entnehmen kann. Das örtliche Meßsystem ist mit einer Warneinrichtung auszustatten, die bei Überschreitung eines Schwellenwertes ein örtliches Warnsignal auslöst.

7.2.6 Strahlenschutzmaßnahmen bei Stör- und Unfällen

Nach der Definition der Strahlenschutzverordnung ist ein Störfall ein Ereignisablauf, für den die Anlage auszulegen ist oder für den bei der Tätigkeit vorsorglich Schutzvorkehrungen vorgesehen sind [7-2]. In Abgrenzung zum Unfall treten beim Störfall keine die Grenzwerte der Körperdosen für beruflich strahlenexponierte Personen übersteigende Strahlenexpositionen ein. Im Falle von HTO bedeutet dies, daß die Zufuhr auf $3 \cdot 10^9$ Bq begrenzt werden muß. Betrieblich sollte

die Alarmschwelle für den Störfallalarm bei den Raumluftüberwachungsanlagen auf einen tieferen Wert, z.B. $1 \cdot 10^8 \text{ Bq m}^{-3}$ festgelegt werden. Damit wird der Tatsache Rechnung getragen, daß eine Person näher an der Quelle sein kann als das Meßgerät und die Meßgeräte eine Ansprechzeit benötigen, um Alarm auszulösen.

Beim Ansprechen dieses Störfallalarms muß das Gebäude schnellstmöglich verlassen werden. Die betroffenen Personen haben eine Urinprobe zur Untersuchung abzugeben.

Bei Kontaminationsverdacht werden Körper und Kleidung mit üblichen Proportionalzählern auf Kontamination untersucht. Mit diesen Geräten können Werte oberhalb von etwa 100 Bq cm^{-2} festgestellt werden.

Für die Rettungstruppen sind gasdichte Vollschutzanzüge mit Fremdbelüftung bereit zu halten.

7.3 Fortluft-, Abwasser- und Umgebungsüberwachung

7.3.1 Rechtliche Grundlagen (vgl. auch Kap. 8)

Nach den Vorschriften zu § 45 der Strahlenschutzverordnung [7-2] hat der Strahlenschutzverantwortliche eine kerntechnische Anlage so zu planen und zu betreiben, daß durch die Ableitung radioaktiver Stoffe mit Luft oder Wasser die Strahlenexposition des Menschen an der ungünstigsten Einwirkungsstelle unter Berücksichtigung aller relevanten Expositionspfade eine Effektivdosis von jeweils $0,3 \text{ mSv}$ pro Jahr nicht überschreitet ("30-mrem-Konzept").

Da im allgemeinen eine Direktmessung dieser Dosis in der Umgebung kerntechnischer Anlagen nicht möglich ist, wird diese rechnerisch ermittelt. Die sogenannte "Allgemeine Verwaltungsvorschrift" zu § 45 der Strahlenschutzverordnung [7-3] legt im einzelnen fest, unter welchen Randbedingungen aus den angenommenen oder gemessenen Ableitungen die Dosiswerte zu berechnen sind. Dabei ist sichergestellt, daß durch die Wahl der benutzten Parameter die so errechnete Dosis an der ungünstigsten Einwirkungsstelle auf jeden Fall größer ist als die tatsächliche Dosis von Einzelpersonen, die in der Umgebung einer kerntechnischen Anlage leben.

Nach § 46 der Strahlenschutzverordnung ist zum Schutz der Umgebung dafür zu sorgen, daß bei der Möglichkeit des Entweichens radioaktiver Stoffe

- eine unkontrollierte Ableitung vermieden wird,
- die abgeleitete Aktivität so gering wie möglich ist (Minimierungsgebot),
- die Ableitung überwacht und spezifiziert nach Art und Aktivität der zuständigen Behörde mindestens jährlich angezeigt wird.

Die Emissionsüberwachung dient zur Ermittlung der Abgaberaten kerntechnischer Anlagen bei bestimmungsgemäßem Betrieb und bei Störfällen. Die Grundsätze sind zusammen mit den Vorschriften für die Umgebungsüberwachung in der "Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen" festgelegt [7-8]. Die erforderlichen Messungen zur Emissionsüberwachung sind entsprechend den kerntechnischen Regeln KTA-1503 (Fortluft) [7-9] und KTA-1504 (Abwasser) [7-10] durchzuführen. Diese Messungen werden vom Betreiber einer kerntechnischen Einrichtung eigenverantwortlich durchgeführt. Sie müssen allerdings durch Kontrollmessungen behördlich eingeschalteter Sachverständiger entsprechend der Richtlinie über die "Kontrolle der Eigenüberwachung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Einrichtungen" überprüft werden [7-11]. Analoge Vorschriften gelten für die Umgebungsüberwachung [7-8].

7.3.2 Fortluftüberwachung

Zur Überwachung und Bilanzierung der Ableitung radioaktiver Stoffe sind die Abgaberaten der abgeleiteten radioaktiven Stoffe zu ermitteln. Die erforderlichen Messungen bzw. Probenahmen werden in der Regel kontinuierlich in einem Teilstrom zur Kaminabluft vorgenommen. Zur Ermittlung der abgeleiteten Radioaktivität muß neben der im Teilstrom gemessenen Radioaktivität der Volumenstrom von Kaminabluft und Teilstrom bekannt sein.

Der Probenahmeort ist so zu wählen, daß die dort entnommenen Proben repräsentativ für die Zusammensetzung der Kaminabluft sind. Das Material der Probenahmeeinheiten muß so beschaffen sein, daß es ein geringes Adsorptionsvermögen für den zu messenden radioaktiven Stoff besitzt.

Zur Überwachung der Tritiumableitungen erfolgt eine kontinuierliche Direktmessung zur Erfassung von Emissionsspitzen. Nach dem Stand der Technik wird für

diesen Zweck ein Proportionalzählrohr mit einer Ionisationskammer kombiniert, wodurch ein Meßbereich zwischen 10^4 und 10^{11} Bq/m³ sicher erfaßt wird. Aus dem Meßsignal wird unter Berücksichtigung von Meßgasstrom (Teilstrom) und Gesamtfortluftstrom die Aktivitätsfracht berechnet. Bei Überschreitung von Kurz- und Langzeitgrenzwerten werden Warn- und Alarmsignale ausgelöst.

Die für die Bilanzierungsmessungen eingesetzten Sammler müssen grundsätzlich geeignet sein, den in der Meßgasluft vorhandenen Wasserdampf und damit das HTO abzuscheiden. Für diesen Zweck können z.B. Adsorptionspatronen mit Molekularsieb benutzt werden [7-6]. Liegt Tritium in der Form von HT vor, so erfolgt zunächst in einer katalytischen Oxidationseinheit eine Umwandlung in HTO, das in einer weiteren Adsorptionspatrone abgeschieden wird.

Die Sammler werden in regelmäßigen Abständen ausgetauscht. Im Labor wird mit Hilfe der Flüssigszintillationsmeßtechnik die Tritiumaktivität bestimmt. Die Aktivitätsfracht wird wie bei der Direktmessung durch Berücksichtigung von Meßgasstrom und Gesamtfortluftstrom errechnet.

7.3.3 Abwasserüberwachung

Die radioaktiven Stoffe, die in den Abwässern einer kerntechnischen Anlage anfallen, werden zunächst im Rahmen der innerbetrieblichen Überwachung hinsichtlich festgesetzter Grenzwerte kontrolliert. Abwässer mit Konzentrationen oberhalb der Grenzwerte werden der Dekontamination, Abwässer mit Konzentrationen unterhalb der Grenzwerte werden der Kläranlage zugeführt. Nach Klärung werden die Abwässer in den sogenannten Übergabebehältern gesammelt.

Vor der Einleitung in den Vorfluter (das Gewässer, in das die Abwässer einer Anlage eingeleitet werden) werden die Konzentrationen der radioaktiven Stoffe im Abwasser anhand einer repräsentativen Probe bestimmt. Danach wird über die Ableitung entschieden.

Die Bilanzierung der mit dem Abwasser abgegebenen radioaktiven Stoffe wird anhand von Mischproben, die mengenproportional aus den Einzelableitungen zusammengestellt werden, durchgeführt. Die eingesetzten Meß- und Probenaufbereitungsverfahren richten sich nach der Art der emittierten Nuklide. Die Tritiumaktivität wird, nach Abtrennung von den übrigen Nukliden durch Destillation des Probengutes, im Flüssigszintillationsspektrometer gemessen.

7.3.4 Umgebungsüberwachung

Die Überwachung der Immissionen in der Umgebung kerntechnischer Anlagen ergänzt die Überwachung der Emissionen. Ihre Ergebnisse dienen der Beweissicherung, der Beurteilung der Einhaltung der Dosisgrenzwerte im bestimmungsgemäßen Betrieb sowie der Beurteilung von Störfallauswirkungen. Bei störfallbedingten Freisetzungen soll durch geeignete Probenahmen und Messungen in der Umgebung schnell ein Überblick über die Situation geschaffen werden, um frühzeitig Entscheidungshilfen zur Verfügung zu haben. Hierzu sind Messungen in Gebieten vorgesehen, in denen Immissionen aufgrund der Ausbreitungsbedingungen am wahrscheinlichsten sind.

Für die Umgebungsüberwachung kerntechnischer Anlagen werden zwei Überwachungsprogramme erstellt:

- ein Programm, das vom Betreiber der Anlage durchzuführen ist,
- ein ergänzendes und kontrollierendes Programm, das von unabhängigen Meßstellen durchzuführen ist.

Dabei werden die für die jeweilige kerntechnische Anlage spezifischen örtlichen und technischen Gegebenheiten berücksichtigt.

Folgende Expositionspfade sind bei der Umgebungsüberwachung grundsätzlich zu berücksichtigen:

- Beta-Submersion,
- Gamma-Submersion,
- Gamma-Bodenstrahlung,
- Inhalation von Radionukliden,
- Ingestion von Radionukliden über die Aufnahme von
Trinkwasser,
pflanzlichen Produkten (z. B. Blattgemüse, Getreide),
tierischen Produkten (z. B. Fleisch, Fisch, Milch).

Für die Umgebungsüberwachung einer Tritiumanlage sind dabei die Expositionspfade "Beta/Gamma-Submersion" und "Gamma-Bodenstrahlung" nicht relevant.

Der für die Umgebungsüberwachung von Tritium relevante Expositionspfad ist die Ingestion, d. h. die Aufnahme von Radionukliden über die Nahrung. Im Rah-

men des Programms zur Umgebungsüberwachung werden daher regelmäßige Messungen der Tritiumaktivitätskonzentration von Grund- und Trinkwasser an Wasserwerken und Brunnen, die in Grundwasserfließrichtung liegen, vorgenommen. Darüber hinaus wird die Tritiumaktivität im Vorfluter und weiteren Oberflächengewässern in der Umgebung des Emittenten bestimmt.

In den Hauptausbreitungsrichtungen werden regelmäßig Bewuchs- und Bodenproben genommen und Aktivitätssmessungen durchgeführt. Je nach Jahreszeit sind unterschiedliche landwirtschaftliche Produkte von Interesse. Für die Ermittlung der Tritiumkonzentration im Niederschlag sind in den Hauptausbreitungssektoren Niederschlagssammler installiert.

Im Zuge der Störfallvorsorge werden durch den Betreiber einer kerntechnischen Anlage und durch die unabhängige Meßstelle bestimmte Meß- und Auswerteverfahren bereitgehalten, die eine rasche Aussage über Kontaminationen ermöglichen. Die erforderlichen Messungen werden durch monatliche Meßfahrten des Betreibers und durch halbjährliche Meßfahrten der unabhängigen Meßstelle trainiert.

Bei störfallbedingten Freisetzungen radioaktiver Stoffe sollen der Betreiber und die unabhängige Meßstelle zunächst stichprobenartige Messungen in den möglichen Gefährdungsbereichen vornehmen. Zusätzliche Überwachungsmaßnahmen im Störfall richten sich nach der Lage des Einzelfalles.

7.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel werden nach der Darlegung der Schutzziele für beruflich strahlenexponierte Personen und die allgemeine Bevölkerung die möglichen Expositionspfade für HTO aufgeführt. Aus den durch die Strahlenschutzverordnung vorgegebenen Grenzwerten werden beispielhaft betriebliche Interventionswerte abgeleitet. Im Abschnitt über die Arbeitsplatz- und Personenüberwachung werden zuerst die mögliche Freisetzung und Inkorporationswege sowie die Meßgeräte zu ihrem Nachweis behandelt. Danach werden praktische Strahlenschutzmaßnahmen im Routinebetrieb, bei Umbaumaßnahmen sowie bei Störfällen beschrieben.

Weiterhin wird ausgeführt, wie die Forderung des § 45 Strahlenschutzverordnung nach Einhaltung von Dosisgrenzwerten für die allgemeine Bevölkerung (0,3 mSv/a Effektivdosis) bei Planung und Betrieb einer Anlage praktisch umgesetzt werden kann. Die Überwachung der radioaktiven Ableitungen über die

Fortluft und über das Abwasser durch geeignete Meßeinrichtungen wird dabei ergänzt durch regelmäßige Probenahme und Auswertung von Umweltmedien im Rahmen eines Umgebungsüberwachungsprogramms.

Die praktische Erfahrung hat gezeigt, daß die geltenden Vorschriften und Richtlinien sich weitgehend bewährt haben. Voraussetzung für einen weiterhin wirksamen Strahlenschutz ist neben qualifiziertem Personal die laufende Anpassung der Überwachungsmaßnahmen an den Stand von Wissenschaft und Technik.

7.5 Literatur zu Kapitel 7

- [7-1] Safe Handling of Tritium, Review of Data and Experience, IAEA Technical Report Series No. 324, Vienna, 1991.
- [7-2] Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung), Neufassung, Bundesgesetzblatt Teil 1, Nr. 34 (1989) S. 1321-1375 und Bundesanzeiger Nr. 185a vom 30. Sept. 1989.
- [7-3] Der Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu §45 StrlSchV: Ermittlung der Strahlenexposition durch die Ableitung radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen oder Einrichtungen, 21. Febr. 1990.
- [7-4] ICRP Publ. 30, Annals of the ICRP, Vol. 2,3,4, 1979, Pergamon Press.
- [7-5] Strahlenschutz Tritiumlabor Karlsruhe (TLK), Unveröffentlichter Bericht, 1.6.1990.
- [7-6] H.W. Weber, H. Schüttelkopf, Einfaches Verfahren zur Bestimmung der Tritiumkonzentration in der Luftfeuchte kerntechnischer Anlagen, KfK 3480, 1983.
- [7-7] H. Schieferdecker et al., Inkorporationsüberwachung auf Tritium, Fachverband für Strahlenschutz, FS-90-49-AKI, März 1990.
- [7-8] Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Einrichtungen, Gemeinsames Ministerialblatt (GMBL.) Nr. 32, S. 668 - 683, 1979.
- [7-9] Sicherheitstechnische Regel des KTA - KTA 1503.1: Messung und Überwachung der Ableitung gasförmiger und aerosolgebundener radioaktiver Stoffe - Teil 1: Messung und Überwachung der Ableitung radioaktiver Stoffe mit der Kaminabluft bei bestimmungsgemäßem Betrieb, Bundesanzeiger (B. Anz.) Nr. 133, 1979.
- [7-10] Sicherheitstechnische Regel des KTA - KTA 1504: Messungen flüssiger radioaktiver Stoffe zur Überwachung der radioaktiven Ableitungen, Bundesanzeiger (B. Anz.) Nr. 189, 1978.
- [7-11] Kontrolle der Eigenüberwachung radioaktiver Emissionen aus Kernkraftwerken, Gemeinsames Ministerialblatt (GMBL.) Nr. 19, S. 313, 1978.

8. Rechtliche Aspekte und Vorschriften beim Umgang mit Tritium

D. Stünkel

8.1 Einordnung des Tritiums in das Rechtsgefüge des Deutschen Atomgesetzes (AtG)

Tritium fällt wegen seiner Eigenschaft als radioaktiver Stoff in den Anwendungsbereich des Atomgesetzes [8-1], das in § 1 unter der Zweckbestimmung des Gesetzes den Schutz von Leben, Gesundheit und Sachgütern vor der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlen aufführt.

In der Systematik des Atomgesetzes fällt Tritium nach § 2 Abs. 1 Ziffer 2 des Atomgesetzes (AtG) unter die Stoffe, die, ohne Kernbrennstoffe zu sein, ionisierende Strahlen spontan aussenden (sonstige radioaktive Stoffe).

Während die Überwachungsvorschriften für den Umgang mit Kernbrennstoffen in und außerhalb von kerntechnischen Anlagen im Atomgesetz selbst geregelt sind, gelten für den Umgang mit sonstigen radioaktiven Stoffen die Bestimmungen der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) [8-2], die als ausfüllende Rechtsverordnung aufgrund der §§ 11, 12 und 54 AtG erlassen wurde.

In der Strahlenschutzverordnung werden insbesondere die Genehmigungsbedürftigkeit des Umgangs mit sonstigen radioaktiven Stoffen und die hierbei einzuhaltenden Schutzvorschriften geregelt.

Nach der vorstehend ausgeführten Unterscheidung zwischen der Behandlung von besonderen spaltbaren Stoffen (Kernbrennstoffen) und sonstigen radioaktiven Stoffen, ergibt sich für Tritium eine unterschiedliche Behandlung, je nachdem, ob es als Nebenprodukt in kerntechnischen Anlagen, die nach § 7 AtG genehmigt sind, zusammen mit Kernbrennstoffen in einem nach § 9 AtG genehmigten Umgang oder für sich allein (d.h. ohne gleichzeitige Anwesenheit von Kernbrennstoffen) eingesetzt wird.

8.1.1 Tritium als Nebenprodukt in kerntechnischen Anlagen

Tritium entsteht im Neutronenstrahlungsfeld durch Kernreaktionen mit Wasserstoff (Protium bzw. Deuterium). Dies trifft insbesondere für schwerwassermoderierte Reaktoren zu, bei denen sich im Laufe des Betriebes Tritium-

Aktivitätskonzentrationen im Bereich von 10^{14} Bq/m³ im Primärkühlmittel einstellen. Auch bei der Wiederaufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe tritt Tritium als Nebenprodukt auf (vgl. Kap 2).

Kernkraftwerke und Wiederaufarbeitungsanlagen werden als kerntechnische Anlagen aufgrund von Genehmigungen nach § 7 AtG betrieben. Die Behandlung des Tritiums ist somit ein Bestandteil der insgesamt zu betreibenden Sicherheitsvorsorge und wird bei der Sicherstellung der Einhaltung der Genehmigungsvoraussetzungen im Genehmigungsverfahren und in der staatlichen Aufsicht nach § 19 AtG miterfaßt.

8.1.2 Tritium als Nebenprodukt beim Umgang mit Kernbrennstoffen außerhalb von kerntechnischen Anlagen

Der Umgang mit Kernbrennstoffen außerhalb von kerntechnischen Anlagen ist nach § 9 Atomgesetz genehmigungspflichtig. Die Genehmigungstatbestände umfassen insbesondere Tätigkeiten aus dem Forschungs- und Entwicklungsbereich sowie der Verarbeitung und Entsorgung kernbrennstoffhaltiger Abfälle. Sofern es sich um die Be- und Verarbeitung von bestrahlten Kernbrennstoffen und kernbrennstoffhaltigen Abfällen handelt, treten im Regelfall - als Spalt- und Reaktionsprodukte - auch als sonstige radioaktive Stoffe zu behandelnde Nuklide, unter ihnen Tritium, auf.

Nach § 3 Abs. 2 der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) schließt eine Genehmigung nach § 9 AtG zum Umgang mit Kernbrennstoffen auch die hierbei vorliegenden sonstigen radioaktiven Stoffe mit ein. Dementsprechend werden die Maßnahmen der Sicherheitsvorsorge, die sich auf den Umgang mit sonstigen radioaktiven Stoffen - hier mit Tritium - beziehen, in die Prüfung der Genehmigungsvoraussetzungen nach § 9 (2) AtG und die staatliche Aufsicht nach § 19 AtG einbezogen.

8.1.3 Verwendung von Tritium außerhalb von kerntechnischen Anlagen und eines genehmigungspflichtigen Umgangs mit Kernbrennstoffen

Die Verwendung von Tritium oberhalb des 10fachen der Freigrenze aus Tabelle IV/1 Spalte 4 der Strahlenschutzverordnung von 5 E6 Bq bedarf der Genehmigung nach § 3 Strahlenschutzverordnung. Dieses Genehmigungserfordernis gilt uneingeschränkt für alle Gebiete der Tritiumanwendung im industriellen- wie im Forschungsbereich. Bei Kleinmengen bis zum 10fachen der vorstehend genannten Freigrenze kann die erforderliche Genehmigung durch eine Anzeige bei der zu-

ständigen Behörde ersetzt werden. Maßgebend für das Genehmigungserfordernis ist die Gesamtmenge an Tritium, die innerhalb einer nach organisatorischen, räumlichen und technischen Maßstäben abgeschlossenen Betriebsstätte eingesetzt wird.

Eine Ausnahme von dieser Regel besteht nur insoweit, als nach Anlage III Teil A Ziffer 5 Strahlenschutzverordnung die Verwendung von Tritium in festhaftenden radioaktiven Leuchtfarben ohne Genehmigung zugelassen ist, wenn die Aktivität des Tritiums im einzelnen Gerät das 50fache der Freigrenze nicht überschreitet. Da Tritium als offener radioaktiver Stoff vorliegt, ergibt sich auch keine Ausnahme von dem Genehmigungserfordernis, wenn dieses als fester Bestandteil in einer geschlossenen Vorrichtung, wie z. B. in Analysengeräten, eingebaut ist.

Im Unterschied zu den Genehmigungen nach dem Atomgesetz sieht die Strahlenschutzverordnung für Genehmigungen nach § 3 nicht die Möglichkeit des Genehmigungsversagens im Ermessen der Behörde vor. Dementsprechend ist eine solche Genehmigung zu erteilen, wenn die Genehmigungsvoraussetzungen erfüllt sind. Die Genehmigungsvoraussetzungen sind in § 6 Strahlenschutzverordnung festgelegt. Insbesondere werden in diesem Paragraphen unter Abs. 1 Ziffer 5 in rechtlich nicht weiter konkretisierter Form Bestimmungen über die Einhaltung der Schutzzvorschriften nach dem Stand der Technik getroffen.

Diese Anforderungen sind im Rahmen des Genehmigungsverfahrens zu konkretisieren. Im Regelfall sind hierzu die sonstigen Bestimmungen der Strahlenschutzverordnung (siehe dazu weiter unter Abschnitt 8.3) heranzuziehen.

Die Erfüllung der Genehmigungsvoraussetzungen wird von der zuständigen Behörde - gegebenenfalls unter Hinzuziehung von Fachgutachtern - geprüft. Der Umfang dieser Prüfungen orientiert sich an den möglichen Strahlenwirkungen auf die Umgebung und das eingesetzte Personal unter Einschluß der Schadensauswirkungen im Störfall. Diese werden im wesentlichen von Menge und Form der gehandhabten Aktivität sowie der Qualität der Einschließungsmaßnahmen beeinflußt. Bei Einsatz von gasförmigem Tritium und Gesamtaktivitäten im Bereich von 10^{15} und 10^{16} Bq, wie sie bei heutigen größeren Tritiumversuchsanlagen üblich sind, wird der im Genehmigungsverfahren zu betreibende Aufwand zum Nachweis der Einhaltung der Schutzzvorschriften annähernd mit dem für kerntechnische Anlagen vergleichbar.

8.1.4 Verwendung von Tritium als Brennstoff in Kernfusionsanlagen

Eine Kernfusionsanlage (Fusionsreaktor) ist in jedem Fall nach der begrifflichen Definition als Anlage einzustufen. Sie ist jedoch keine kerntechnische Anlage im Sinne des Atomgesetzes, weil eine solche nach § 7 Abs. 1 AtG begrifflich immer mit Kernbrennstoffen verbunden ist. Die in § 2 unter Abs. 1 Ziffer 1 AtG aufgeführten Kernbrennstoffe kommen jedoch in einer Kernfusionsanlage nicht vor. Das dort als Brennstoff eingesetzte Tritium ist ebenso wie die im Rahmen der Kernfusion entstehenden radioaktiven Stoffe als sonstige radioaktive Stoffe (§ 2 Abs. 1 Ziffer 2 AtG) eingestuft. Ein entsprechendes Äquivalent zu den kerntechnischen Anlagen für den Einsatz von sonstigen radioaktiven Stoffen ist in der Systematik des Atomgesetzes nicht vorgesehen. Hierzu würde es also einer entsprechenden Ergänzung des Atomgesetzes bedürfen.

8.1.5 Ein- und Ausfuhr von Tritium, Beförderung von Tritium

Die Einfuhr von sonstigen radioaktiven Stoffen, also in diesem Fall von Tritium, bedarf keiner Genehmigung nach Deutschem Recht, sofern sichergestellt ist, daß eine weitere Verwendung in einem Bereich erfolgt, für den entsprechende Genehmigungen nach Atomgesetz oder Strahlenschutzverordnung erteilt worden sind, und außerdem die vorgesehene Einfuhr bei der zuständigen Bundesbehörde angezeigt ist.

Ebenso bedarf die Ausfuhr von sonstigen radioaktiven Stoffen keiner Genehmigung nach der Strahlenschutzverordnung, falls dabei die Grenze vom 10⁸fachen der Freigrenze aus Tabelle IV 1 der StrlSchV pro Versandstück eingehalten wird. Die Genehmigungsbedürftigkeit nach dem Außenwirtschaftsgesetz bleibt unberührt.

Nach § 8 StrlSchV ist für die Beförderung sonstiger radioaktiver Stoffe auf öffentlichen Verkehrswegen eine Genehmigung durch das Bundesamt für Strahlenschutz erforderlich. Als Genehmigungsvoraussetzung ist die Einhaltung der Anforderungen aus den Verordnungen über die innerstaatliche und grenzüberschreitende Beförderung gefährlicher Güter auf Straßen (GGVS) bzw. mit Eisenbahn (GGVE) jeweils in Klasse 7 sicherzustellen.

8.2 Rechtliche Behandlung des Umgangs mit Tritium im internationalen Vergleich

Die einschlägigen Gesetze in den Ländern, die wesentliche nukleare Tätigkeiten entwickeln, behandeln die Errichtung und den Betrieb kerntechnischer Anlagen. Auch schon für diese gehen die Anforderungen in den einzelnen Ländern sehr weit auseinander. Dies gilt noch im wesentlich stärkeren Maße für Stoffe wie Tritium, die als Nebenprodukte (Byproduct materials) aus nuklearen Tätigkeiten anfallen.

Generell gilt wohl, daß die Verwendung solcher Nebenprodukte außerhalb von Anlagen, in denen sie angefallen sind, einer Genehmigung bedarf.

Die Verwendung von radioaktiven Stoffen, die nicht spaltbare Stoffe (Kernbrennstoffe) sind, wird zumeist in den jeweiligen nationalen Kernenergiegesetzen mitbehandelt. Einige Länder - zumeist Nachbarländer der Bundesrepublik - haben zusätzlich eine zur deutschen Strahlenschutzverordnung vergleichbare Regelung.

In Hinblick auf die Schutzzvorschriften als eine wesentliche Genehmigungsvoraussetzung gelten innerhalb der Mitgliedsstaaten der EG die Euratom-Grundnormen [8-3] für den Strahlenschutz in der Weise, daß die nationalen Regelungen soweit wie möglich an diese Euratom-Grundnormen angepaßt sind.

Materiell besteht wiederum eine weitgehende Übereinstimmung zwischen den Euratom-Grundnormen und den Empfehlungen der Internationalen Strahlenschutzkommission (ICRP) [8-4], die international allgemein bei der Festlegung von Anforderungen an den Strahlenschutz zugrunde gelegt werden.

Für die Beförderung von radioaktiven Stoffen, insbesondere im grenzüberschreitenden Verkehr sind die hierfür von der IAEA aufgestellten Regeln [8-5] einzuhalten.

Während die Genehmigungsbedürftigkeit der Verwendung von Tritium außerhalb von Anlagen, in denen dieses betriebsmäßig entsteht, in den einzelnen Ländern unterschiedlich geregelt ist (siehe dazu [8-6]), ist für die Einfuhr und Ausführung von Tritium nahezu ausnahmslos eine staatliche Genehmigung erforderlich, sofern vorgegebene - für die einzelne Länder unterschiedlich angesetzte - Grenzwerte für die Gesamtmenge oder die Konzentration überschritten werden. Typische in den Industrieländern angewandte Grenzwerte für die genehmigungsbedürftige Ein- und Ausfuhr liegen bei 3,7 TBq als Gesamtaktivität bzw. für Tritium

in einer Mischung mit anderen Wasserstoffisotopen bei einem Verhältnis oberhalb 1:1000 (Einzelheiten sind unter [8-6] nachzulesen).

8.3 Konkretisierung der Genehmigungsvoraussetzungen aus § 6 Abs. 1 Strahlenschutzverordnung (StrlSchV)

In den Genehmigungsvoraussetzungen an dieser Stelle der Strahlenschutzverordnung wird unter Ziffer 5 gefordert, daß bei dem Umgang die Einrichtungen vorhanden und die Maßnahmen getroffen sind, die nach dem Stand von Wissenschaft und Technik erforderlich sind, damit die Schutzvorschriften eingehalten werden. Diese Schutzvorschriften sind an anderer Stelle in der Strahlenschutzverordnung definiert. Im einzelnen handelt es sich hierbei um folgendes:

8.3.1 Schutzvorschriften für die Umgebung

In den Strahlenschutzgrundsätzen aus § 28 StrlSchV ist festgelegt, daß jede Strahlenexposition oder Kontamination von Personen, Sachgütern oder der Umwelt so gering wie möglich zu halten ist (Minimierungsgebot) und unnötige Strahlenexpositionen oder Kontaminationen zu vermeiden sind.

Zusätzlich ist in § 28 Abs. 3 StrlSchV festgelegt, daß auch im ungünstigsten Störfall in der Umgebung die Werte für die Körperdosis aus Tabelle X 1 Spalte 2 der Anlage X Strahlenschutzverordnung, z.B. 50 mSv effektive Dosis, nicht überschritten werden dürfen. Diese Forderung gilt streng nur für Kernkraftwerke, wird jedoch in der Praxis auch bei anderen Einrichtungen als Begrenzungskriterium für Störfallfolgen zugrunde gelegt.

Weitergehende Vorschriften sind in den §§ 44, 45 und 46 StrlSchV enthalten, wobei die Bestimmungen aus § 44 über die Begrenzung der zulässigen effektiven Dosis durch Direktstrahlung aus Anlagen oder Einrichtungen oder sonst genehmigungsbedürftiger Tätigkeit - unter Einschluß von Inkorporationen aus radioaktiven Ableitungen - auf 1,5 mSv im Kalenderjahr für den ausschließlichen Umgang mit Tritium wegen der geringen Energie der vom Tritium ausgesandten Strahlung nicht zu effektiven Restriktionen führen.

Nach den §§ 45 und 46 StrlSchV zum Schutz von Luft, Wasser und Boden ist dafür zu sorgen, daß

- jede Ableitung von Radioaktivität so gering wie möglich gehalten wird und

- die Aktivitätsableitungen aus einem genehmigungspflichtigen Umgang in Bereichen, die nicht Strahlenschutzbereiche sind, bei den betroffenen Personen durch Inhalation oder Ingestion nicht zu einer Körperdosis führt, die den Grenzwert von 0,3 mSv im Kalenderjahr für die effektive Dosis unter den Annahmen aus Anlage XI zur Strahlenschutzverordnung überschreitet.

In der allgemeinen Verwaltungsvorschrift zu § 45 StrlSchV (AVV 45) werden die zugehörigen Einzelheiten zur Bestimmung der Strahlenexposition aus radioaktiven Ableitungen über Luft, Wasser oder Boden festgelegt [8-7].

8.3.2 Schutz des eingesetzten Personals

Grundsätzlich muß von der Möglichkeit einer Strahlenexposition für das beim Umgang mit Tritium eingesetzte Personal ausgegangen werden. Dementsprechend wird diese Personengruppe als beruflich strahlenexponierte Personen eingestuft, die der Personendosisüberwachung unterliegen. Ausnahmen können nur da zugelassen werden, wenn bei den vorliegenden Bedingungen des Umgangs mit Tritium die Möglichkeit einer Strahlenexposition von mehr als 5 mSv/a ausgeschlossen werden kann.

Die einschlägigen Vorschriften ergeben sich aus folgenden Abschnitten der Strahlenschutzverordnung:

- § 49 - Dosisgrenzwerte für beruflich strahlenexponierte Personen.
Begrenzung der effektiven Dosis im Kalenderjahr für beruflich strahlenexponierte Personen der Kategorie A auf 50 mSv (Anlage X 1 Spalte 2, für beruflich strahlenexponierte Personen der Kategorie B auf 15 mSv (Tabelle X 1 Spalte 3)).
- § 51 - Dosisgrenzwerte für Personen im betrieblichen Überwachungsbereich oder im Kontrollbereich.
Begrenzung der effektiven Dosis im Kalenderjahr auf 5 mSv (Tabelle X 1 Spalte 4)).
- § 52 - Inkorporation radioaktiver Stoffe
Begrenzung der Jahresaktivitätszufuhr über Inhalation und Ingestion bei Tritium
für beruflich strahlenexponierte Personen der Kategorie A auf jeweils 3 E 9 Bq für Inhalation und Ingestion (Tabelle IV 1 Spalten 5 bzw. 6),
für beruflich strahlenexponierte Personen der Kategorie B auf jeweils 9 E 8 Bq,

für nicht beruflich strahlenexponierte Personen im Kontrollbereich oder betrieblichen Überwachungsbereich auf jeweils 3 E8 Bq.

- § 53 - Umgang mit offenen radioaktiven Stoffen.
Verpflichtung zur Einhaltung von Schutzmaßnahmen beim Umgang mit offener Radioaktivität.
- § 62 - Zu überwachende Personen.
Ermittlung der Körperdosen bei beruflich strahlenexponierten Personen und zugehörige administrative Maßnahmen.
- § 63 - Ermittlung der Körperdosen.
Die wirksame Überwachung der Körperdosen ist beim Umgang mit Tritium nur über die Ermittlung der Aktivität der Körperausscheidungen zu führen.
- § 64 - Kontamination und Dekontamination.
Verpflichtung zur Feststellung von Kontaminationen in Räumen, in denen mit offenen radioaktiven Stoffen umgegangen wird unter Einhaltung der Grenzwerte für Schutzmaßnahmen aus Anlage IX zur Strahlenschutzverordnung für Tritium, entsprechend 500 Bq/cm² für Kontrollbereiche, 50 Bq/cm² für betriebliche Überwachungsbereiche.
Vermeidung einer Kontaminationsverschleppung beim Verlassen von Kontrollbereichen bzw. betrieblichen Überwachungsbereichen durch Ausmessung an Personenkontaminationsmonitoren. Diese Schutzmaßnahme ist beim Umgang mit Tritium nicht effektiv, weil die Kontaminationsmonitore auf die vom Tritium ausgehende Strahlung nicht ansprechen.

8.3.3 Schutz gegen Störmaßnahmen und sonstige Einwirkungen Dritter

Hierbei handelt es sich ebenfalls um eine Genehmigungsvoraussetzung (§ 6 Abs. 1 Ziffer 7 StrlSchV). Ziel solcher Einwirkungen Dritter kann sowohl die Entwendung von radioaktiven Stoffen als auch deren Freisetzung sein. Spezifisch für Tritium wird man das Risiko einer Entwendung als nachrangig gegenüber der Absicht einer Freisetzung einzustufen haben, wobei gravierende Auswirkungen einer durch Einwirkungen Dritter hervorgerufenen Freisetzung nur da auftreten können, wo hohe Tritiumaktivitäten gehandhabt werden.

8.4 Restriktionen unter dem Poliferationsgesichtspunkt

Während die Verwendung von Kernbrennstoffen nach dem internationalen Vertrag über die Nichtverbreitung von Kernwaffen (NV-Vertrag) Einschränkungen und internationalen Kontrollen unterliegt, gibt es für Tritium, obwohl es auch in der Waffentechnik, z. B. bei thermonuklearen Sprengsätzen, Verwendung finden kann, keine derartigen weit gefaßten international vereinbarten Einschränkungen.

Restriktionen im Umgang mit Tritium in Hinblick auf eine Verwendungskontrolle und die Vermeidung unkontrollierter Abflüsse können dagegen Bestandteile bilateraler und zwischenstaatlicher Vereinbarungen zwischen dem Lieferanten und dem Verwender des Tritiums sein.

Unter dem Gesichtspunkt der Poliferationsverhinderung der nuklearen Waffentechnologie erscheint ein internationales Überwachungsregime auch nicht zwingend erforderlich, da der Einsatz von Tritium im Waffengeschoßbereich nur im Zusammenhang mit ausreichenden Mengen an waffenfähigen Kernbrennstoffen relevant ist, für die die internationale Kernmaterialüberwachung als effektives Kontrollinstrument zu Poliferationsverhinderung etabliert ist.

8.5 Literatur zu Kapitel 8

- [8-1] Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie mit dem Schutz gegen ihre Gefahren (Atomgesetz) vom 23.12.1959 in der Fassung vom 15.7.1985.
- [8-2] Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung) vom 13.10.1976 in der Fassung vom 18.5.1989.
- [8-3] Euratom-Grundnormen für den Strahlenschutz (1980/1984).
- [8-4] Recommendations of the International Commission on Radiological Protection (ICRP-Publications). Pergamon Press.
- [8-5] Regulations for the Safe Transport of Radioactive Materials 1973 (Revised Edition).
- [8-6] L. Colschen, M. Kalinowski, U. Vydra,
National Regulations of Accounting for and Control of Tritium (Comparative Documentation),
IANUS, Institut für Kernphysik, TH Darmstadt, April 92 (1991).
- [8-7] Der Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit,
Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 45 StrlSchV:
Ermittlung der Strahlenexposition durch die Ableitung radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen oder Einrichtungen,
Bundesanzeiger 42, Nr. 64 a vom 21.02.1990, Bonn 1990.

9. Kurzlexikon

9.1 Kernphysikalische und radiologische Begriffe

Aktivität

Aktivität ist die Zahl der je Sekunde in einer radioaktiven Substanz zerfallenden Atomkerne. Die Maßeinheit für die Aktivität ist das **Becquerel**, Kurzzeichen: **Bq**.

1 Becquerel entspricht dem Zerfall eines Atomkerns pro Sekunde. Die früher übliche Einheit **Curie** (Kurzzeichen: **Ci**) bezog sich auf die Aktivität von 1 Gramm Radium ($1 \text{ Ci} = 3,7 \cdot 10^{10} \text{ Bq}$).

Aktivität, spezifische

Quotient aus der Aktivität eines Stoffes und der Masse dieses Stoffes. Einheit z. B. **Bq/kg**.

Aktivitätskonzentration

Quotient aus der Aktivität eines Stoffes und dem Volumen dieses Stoffes. Einheit z. B. **Bq/m³**.

Dosis

Die Dosis ist ein Maß für die Wirkung ionisierender Strahlung.

Man unterscheidet:

Energiedosis (Gesamte absorbierte Strahlungsenergie in der Masseneinheit.)

Die Einheit der Energiedosis ist Joule durch Kilogramm (J/kg). Ein Joule durch Kilogramm ist gleich der Energiedosis, die bei Übertragung der Energie 1 J auf Materie der Masse 1 kg durch ionisierende Strahlung räumlich konstanter Energieflußdichte entsteht. Der besondere Einheitenname für die Energiedosis ist **Gray** (Kurzzeichen: **Gy**). $1 \text{ Gy} = 1 \text{ J/kg}$.

Der früher gebräuchliche Einheitenname war das **Rad** (radiation absorbed dose) (Kurzzeichen: **rd** oder **rad**).

$$1 \text{ Gy} = 100 \text{ rd};$$

$$1 \text{ rd} = 1/100 \text{ J/kg} = 1/100 \text{ Gy}.$$

Äquivalentdosis

Die Äquivalentdosis berücksichtigt durch die Einführung eines Bewertungsfaktors - Qualitätsfaktor (Q) genannt - die biologisch unterschiedlichen Wirkungen verschiedener Strahlenarten. Der Wert des Qualitätsfaktors hängt vom Energieübertragungsvermögen der jeweiligen Strahlenart ab. Der Ausdruck Äquivalentdosis wird nur im Strahlenschutz verwendet.

Die Äquivalentdosis H an einem Punkt im Gewebe wird durch die Gleichung $H = D \cdot Q$ angegeben. Hierbei ist D die Energiedosis und Q der Qualitätsfaktor. Der Wert des Qualitätsfaktors richtet sich nach der Strahlenart:

- Röntgen- und Gammastrahlung, Betastrahlung, Elektronen und Positronen: $Q = 1$
- Neutronen nicht bekannter Energie: $Q = 10$
- für Alphastrahlung aus Radionukliden: $Q = 20$

Die Einheit für die Äquivalentdosis ist Joule/kg (J/kg). Der besondere Name für die Einheit der Äquivalentdosis ist das **Sievert (Sv)**. Zur Zeit wird der frühere Einheitenname Rem (Roentgen equivalent man) (Kurzzeichen: rem) noch häufig gebraucht.

$$1 \text{ Sv} = 100 \text{ rem}$$

$$1 \text{ rem} = 1 / 100 \text{ J/kg} = 1 / 100 \text{ Sv}$$

Effektive Dosis

Die effektive Dosis - genauer: effektive Äquivalentdosis - ist die Summe der mit dem Wichtungsfaktor multiplizierten mittleren Organdosen. Der Wichtungsfaktor beschreibt den Anteil des Strahlenrisikos, das sich aus dem bestrahlten Gewebe für das Gesamtrisiko der bestrahlten Person ergibt. Zur Berechnung der effektiven Äquivalentdosis werden die einzelnen Organdosiswerte nach Multiplikation mit dem jeweiligen Wichtungsfaktor addiert. (Vergl. Tab. 9-1)

Die effektive Dosis ist die geeignete Größe zur Bewertung des strahlenbedingten Risikos für genetische und somatische Spätschäden.

Gewebe	Wichtungsfaktor
Gonaden	0,25
Brust	0,15
rotes Knochenmark	0,12
Lunge	0,12
Schilddrüse	0,03
Knochenoberfläche	0,03
übrige	0,30

Tab. 9-1: Wichtungsfaktoren zur Berechnung der effektiven Äquivalentdosis

Ionendosis

Unter der Ionendosis versteht man den Quotienten aus der elektrischen Ladung der Ionen eines Vorzeichens, die in einem definierten Volumenelement Luft durch die Strahlung gebildet werden, und der Masse dieses Volumenelements. Ihre Einheit ist definiert als **Coulomb pro Kilogramm (C/kg)**. Die alte Einheit ist das **Röntgen (R)**. Ein Röntgen entspricht $2,58 \cdot 10^{-4}$ Coulomb pro Kilogramm.

Folgeäquivalentdosis

Äquivalentdosis, die ein Organ oder Gewebe durch Inkorporation eines oder mehrerer Radionuklide während eines unendlichen Zeitraumes erhält.

50-Jahre-Folgeäquivalentdosis

Äquivalentdosis, die ein Organ oder Gewebe durch einmalige Inkorporation eines oder mehrerer Radionuklide während eines Zeitraumes von 50 Jahren nach der Inkorporation erhält.

Dosisfaktoren

Faktoren zur Ermittlung der Strahlenexposition einzelner Organe und des gesamten Körpers durch inkorporierte radioaktive Stoffe. Die Dosisfaktoren sind abhängig vom Radionuklid, von der Inkorporationsart (Inhalation/Ingestion), von der chemischen Verbindung des Radionuklides (löslich/unlöslich) sowie vom Alter der Person.

Dosisgrenzwerte

Dosis einer ionisierenden Strahlung, die auf der Basis von Empfehlungen wissenschaftlicher Gremien als das Maximum festgelegt wurde, das aufgenommen werden darf. Die Körperdosen dürfen für beruflich strahlenexponierte Personen die in der Tabelle 9-2 genannten Werte je Kalenderjahr nicht überschreiten. Die Körperdosen dürfen für nicht beruflich strahlenexponierte Personen bei Aufenthalt im betrieblichen Überwachungsbereich ein Zehntel der Tabellenwerte je Jahr nicht überschreiten.

	Dosisgrenzwerte (in mSv) für beruflich strahlenexponierte Personen im Kalenderjahr	
	Kategorie A	Kategorie B
Effektive Dosis:	50	15
Teilkörperdosis:		
1. Keimdrüsen, Gebärmutter, rotes Knochenmark	50	15
2. Alle Organe und Gewebe, soweit nicht unter 1., 3. oder 4. genannt	150	45
3. Schilddrüse, Knochenoberfläche, Haut, soweit nicht unter 4. genannt	300	90
4. Hände, Unterarme, Füße, Unterschenkel, Knöchel, einschl. der dazugehörigen Haut	500	150

Tab. 9-2: Dosisgrenzwerte für beruflich strahlenexponierte Personen

Dosisgrenzwerte, Bevölkerung

Die effektive Dosis darf im außerbetrieblichen Überwachungsbereich unter Einbeziehung der Strahlenexposition durch die Emission radioaktiver Stoffe mit Abluft und Abwasser aus Anlagen, die mit radioaktiven Stoffen umgehen, für keine Person 1,5 mSv/Jahr überschreiten (in Sonderfällen mit Zustimmung der Behörden 5 mSv/Jahr).

Bei der Ableitung radioaktiver Stoffe mit Abluft oder Abwasser hat der Strahlenschutzverantwortliche die technische Auslegung und den Betrieb seiner Anlagen so zu planen, daß folgende Grenzwerte nicht überschritten werden:

- effektive Dosis; Keimdrüsen, Gebärmutter, rotes Knochenmark	0,3 mSv/Jahr
- Knochenoberfläche, Haut	1,8 mSv/Jahr
- sonstige Organe und Gewebe	0,9 mSv/Jahr

Die Grenzwerte müssen eingehalten werden

- an der ungünstigsten Einwirkungsstelle,
- unter Berücksichtigung sämtlicher relevanter Belastungspfade
- unter Berücksichtigung der biologischen Daten sowie der Ernährungs- und Lebensgewohnheiten der Referenzperson,
- unter Berücksichtigung einer möglichen Vorbelastung durch andere Anlagen und Einrichtungen.

Dosisleistung

Die Dosisleistung ist der Quotient aus der Dosis und der Zeit; z. B. wird die Äquivalentdosisleistung im Strahlenschutz häufig in Mikrosievert je Stunde ($\mu\text{Sv}/\text{h}$) angegeben.

Dosis-Wirkungs-Beziehung

Beziehung zwischen der Energie- oder Äquivalentdosis eines Organs, Körperteils oder des Gesamtkörpers und der daraus resultierenden Strahlenwirkung.

Emission

In der Physik versteht man darunter die Aussendung einer Wellen- oder Teilchenstrahlung. Ebenso wird der Begriff für das Ausströmen luftverunreinigender Stoffe in die Außenluft verwendet.

Exposition

Das Ausmaß, in dem ein Objekt oder Lebewesen dem Einfluß von Umweltfaktoren, zum Beispiel ionisierender Strahlung, ausgesetzt ist.

Ion

Elektrisch geladenes atomares oder molekulares Teilchen, das aus einem neutralen Atom oder Molekül durch Abspaltung oder Anlagerung von Elektronen oder durch elektrolytische Dissoziation von Molekülen in Lösungen entstehen kann.

Ionisation

Aufnahme oder Abgabe von Elektronen durch Atome oder Moleküle, die dadurch in Ionen umgewandelt werden. Hohe Temperaturen, elektrische Entladungen und energiereiche Strahlung können zur Ionisation führen.

Ionisierende Strahlung

Jede Strahlung, die direkt oder indirekt ionisiert. Man unterscheidet: Alpha-, Beta-, Gamma- und Neutronenstrahlung.

Alphastrahlung

Emission positiv geladener Teilchen beim radioaktiven Zerfall. Ein α -Teilchen besteht aus zwei Neutronen und zwei Protonen, ist also mit dem Kern des Heliumatoms identisch. Die Ruhemasse des Alphateilchens beträgt $6,644 \cdot 10^{-27}$ kg. Alphastrahlung ist die am wenigsten durchdringende Strahlungsart. Sie wird schon durch ein Blatt Papier absorbiert, und sie ist für Lebewesen nur dann gefährlich, wenn die Alphastrahlen aussendende Substanz eingeatmet oder mit der Nahrung aufgenommen wird oder in Wunden gelangt.

Betastrahlung

Mit Betastrahlung bezeichnet man die Emission von Elektronen (β^-) bzw. Positronen (β^+) beim radioaktiven Zerfall. Betastrahlen haben ein Energiekontinuum, angegeben wird jeweils die maximale Energie. Betastrahlen werden bereits durch geringe Schichtdicken (z. B. 2 cm Kunststoff oder 1 cm Aluminium) absorbiert.

Gammastrahlung

Hochenergetische, kurzwellige elektromagnetische Strahlung, die von einem Atomkern ausgestrahlt wird. Die Energien von Gammastrahlen liegen gewöhnlich zwischen 0,01 und 10 MeV. Auch Röntgenstrahlen treten in diesem Energiebereich auf, sie haben aber ihren Ursprung nicht im Atomkern, sondern sie entstehen durch Elektronenübergänge in der Elektronenhülle oder durch Elektronenbremsung in Materie (Bremsstrahlung). Im allgemeinen ist der Alpha- und

Betazerfall von Gammastrahlung begleitet. Gammastrahlen sind sehr durchdringend und lassen sich am besten durch Materialien hoher Dichte (Blei) schwächen.

Neutronenstrahlung

Neutronen sind ungeladene Elementarteilchen mit einer Masse von $1,67482 \cdot 10^{-27}$ kg und damit geringfügig größer als die Protonenmasse. Das freie Neutron ist instabil und zerfällt mit einer Halbwertszeit von 11,5 Minuten.

Isomere

Nuklide derselben Neutronen- und Protonenzahl, jedoch unterschiedlicher energetischer Zustände; z. B. Ba-137 und Ba-137m.

Isotone

Atomkerne mit gleicher Neutronenzahl. Beispiel: S-36, Cl-37, Ar-38, K-39, Ca-40; diese Kerne enthalten jeweils 20 Neutronen, aber eine unterschiedliche Anzahl von Protonen: Schwefel 16, Chlor 17, Argon 18, Kalium 19 und Kalzium 20 Protonen.

Isotope

Atome derselben Kernladungszahl (d. h. desselben chemischen Elementes), jedoch unterschiedlicher Nukleonenzahl, z. B. Ne-20 und Ne-22. Beide Atomkerne gehören zum selben chemischen Element, dem Neon (Kurzzeichen: Ne) und haben daher beide jeweils 10 Protonen. Die Nukleonenzahl ist allerdings verschieden, da Ne-20 10 Neutronen und Ne-22 12 Neutronen enthält.

Radioaktivität

Eigenschaft bestimmter Stoffe, sich ohne äußere Einwirkung umzuwandeln und dabei eine charakteristische Strahlung auszusenden. Die Radioaktivität wurde 1896 von Becquerel am Uran entdeckt. Wenn die Stoffe - genauer, die Radionuklide - in der Natur vorkommen, spricht man von natürlicher Radioaktivität; sind sie ein Produkt von Kernumwandlungen in Kernreaktoren oder Beschleunigern, so spricht man von künstlicher Radioaktivität. Rund 2 200 Radionuklide sind heute bekannt. Kennzeichnend für jedes Radionuklid ist seine Halbwertszeit, das ist die Zeit, in der sich in einer vorgegebenen Menge die Hälfte der Atomkerne umwandelt. Es sind Halbwertszeiten von mehreren Milliarden Jahren (Uran-238) bis

zu millionstel Sekunden (Po-212) bekannt. Charakteristisch ist auch die beim Zerfall emittierte Strahlung und ihre Energie; so zerfällt Radium-226 unter Aussen-dung von Alphastrahlen, während Tritium Betastrahlen emittiert.

Radiologie

Im weiteren Sinne "Medizinische Strahlenkunde", bestehend aus theoretischer Radiologie (Strahlenbiologie, medizinische Strahlenphysik) und klinischer Radiologie. Radiologie im engeren Sinne umfaßt die Röntgendiagnostik und die Strahlentherapie.

Radionuklid

Instabiles Nuklid, das spontan ohne äußere Einwirkung unter Strahlungsemision zerfällt. Über 2 200 natürliche und künstliche Radionuklide sind bekannt.

Radioökologie

Unter Ökologie versteht man die Wissenschaft vom Haushalt der Natur. Dabei werden Produktions- und Transportprozesse von Lebewesen und wichtigen Substanzen wie Stickstoff, Kohlenstoff und Wasserstoff studiert. Schadstoffe, welche in die Umwelt freigesetzt wurden, unterliegen den allgemeinen Transportprinzipien und verteilen sich, je nach physikalischen und chemischen Eigenschaften, in den betrachteten Ökosystemen. Die Radioökologie setzt sich mit dem Verhalten und der Auswirkung radioaktiver Stoffe in der Biosphäre auseinander. Sie umfaßt Produktion und Freisetzung, den Transport durch den abiotischen Teil der Biosphäre, die Nahrungsketten, die Aufnahme und Verteilung im Menschen und die Auswirkung der Strahlung auf Lebewesen.

Radiotoxizität

Maß für die Gesundheitsschädlichkeit eines Radionuklides. Strahlenart, Strahlen-energie, Resorption usw. beeinflussen den Grad der Radiotoxizität eines Radionuklides.

9.2 Präfixe für dezimale Vielfache und Teile von Einheiten

Präfix	Kurzbezeichnung	Faktor	=	E 18	=	1 000 000 000 000 000 000	=	1 Trillion
Exa	E	10^{18}	=	E 18	=	1 000 000 000 000 000 000	=	1 Trillion
Peta	P	10^{15}	=	E 15	=	1 000 000 000 000 000	=	1 Billiarde
Tera	T	10^{12}	=	E 12	=	1 000 000 000 000	=	1 Billion
Giga	G	10^9	=	E 09	=	1 000 000 000	=	1 Milliarde
Mega	M	10^6	=	E 06	=	1 000 000	=	1 Million
Kilo	k	10^3	=	E 03	=	1 000	=	Tausend
Hekto	h	10^2	=	E 02	=	100	=	Hundert
Deka	da	10^1	=	E 01	=	10	=	Zehn
Dezi	d	10^{-1}	=	E -01	=	0, 1		
Zenti	c	10^{-2}	=	E -02	=	0, 01		
Milli	m	10^{-3}	=	E -03	=	0, 001		
Mikro	µ	10^{-6}	=	E -06	=	0, 000 001		
Nano	n	10^{-9}	=	E -09	=	0. 000 000 001		
Pico	p	10^{-12}	=	E -12	=	0, 000 000 000 001		
Femto	f	10^{-15}	=	E -15	=	0, 000 000 000 000 001		
Atto	a	10^{-18}	=	E -18	=	0, 000 000 000 000 000 001		

9.3 Einheiten der Aktivität und Dosis

Physikalische Größe	SI-Einheit	alte Einheit	Beziehung
Aktivität	Becquerel (Bq) 1 Bq = 1/s	Curie (Ci)	$1 \text{ Ci} = 3,7 \cdot 10^{10} \text{ Bq}$ $1 \text{ Bq} \approx 2,7 \cdot 10^{-11} \text{ Ci}$
Energiedosis	Gray (Gy) 1 Gy = 1 J/kg	Rad (rd)	$1 \text{ rd} = 0,01 \text{ Gy}$ $1 \text{ Gy} = 100 \text{ rd}$
Äquivalentdosis	Sievert (Sv) 1 Sv = 1 J/kg	Rem (rem)	$1 \text{ rem} = 0,01 \text{ Sv}$ $1 \text{ Sv} = 100 \text{ rem}$
Ionendosis	Coulomb durch Kilogramm (C/kg)	Röntgen (R)	$1 \text{ R} = 2,58 \cdot 10^{-4} \text{ C/kg}$ $1 \text{ C/kg} = 3 876 \text{ R}$

9.4 Literatur zu Kapitel 9

W. Koelzer: Lexikon zur Kernenergie
Herausgeber: Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH,
Hauptabteilung Sicherheit,
Postfach 3640, 7500 Karlsruhe, 1.

