Strahlenschutzkommission

Geschäftsstelle der
Strahlenschutzkommission
Postfach 12 06 29
D-53048 Bonn

http://www.ssk.de

Zur Rückhaltung radioaktiver Stoffe bei einer Wiederaufarbeitungsanlage

Empfehlung der Strahlenschutzkommission

Verabschiedet in der 45. Sitzung der Strahlenschutzkommission am 24. Februar 1983
Veröffentlicht in: – Bundesanzeiger Nr. 128 vom 14. Juli 1983
– Veröffentlichungen der Strahlenschutzkommission, Band 1

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung 3

2. Begrenzung der Jahresaktivitätsabgaben 3

3. Begründungen

3.1 Abschätzung der potentiellen Strahlenexposition bei Ausschöpfung der maximalen Jahresaktivitäts-abgaben gemäß Empfehlung 4

3.2 Betrachtungen zu den Ableitungen über den Luftpfad

3.2.1 Jahresaktivitätsabgaben einer Wiederaufarbeitungsanlage mit der Fortluft, falls keine Rückhaltemaßnahmen vorgesehen werden 6

3.2.2 Begründung für Rückhalteeinrichtungen 6

3.2.3 Maßnahmen zur Rückhaltung von Jod und Aerosolen 6

3.2.4 Zur Rückhaltung von Kr-85, H-3, C-14 7

3.3 Betrachtungen zu den Ableitungen über den Wasserpfad 9

1. Einleitung

In der Empfehlung der SSK zur Abtrennung von Kr-85 aus den Abgasen von Wiederaufarbeitungsanlagen vom 26.6.1975 sowie den Empfehlungen von RSK und SSK zur "Grundsätzlichen sicherheitstechnischen Realisierbarkeit des Entsorgungszentrums" vom 20.10.1977 wurde die anzustrebende Rückhaltung der verschiedenen Radionuklide bzw. -gruppen bei Anlagen mit einem Durchsatz von 1400 t/a vorgeschlagen. In den von RSK und SSK am 15.2.1978 verabschiedeten "Sicherheitstechnischen Fragestellungen zum Entsorgungszentrum" wurden Forschungs- und Entwicklungsvorhaben zur eventuellen weiteren Rückhaltung radioaktiver Stoffe empfohlen. Angesichts des verringerten Zubaus von Kernkraftwerken und der Planung kleinerer Wiederaufarbeitungsanlagen zur Aufarbeitung des Brennstoffes von Kernkraftwerken mit Leichtwasserreaktoren bat der Bundesminister des Innern die Strahlenschutzkommission, die anzustrebende Rückhaltung bei den verschiedenen Radionukliden bzw. -gruppen entsprechend § 28 Abs. 1 und § 45 StrlSchV für eine Anlage mit einem Jahresdurchsatz von 350, 700 oder 1000 t neu zu prüfen und eine entsprechende Empfehlung zu erarbeiten.

2. Begrenzung der Jahresaktivitätsabgaben

Die Beratungsergebnisse der Strahlenschutzkommission lassen sich wie folgt zusammenfassen:

(1) Aufgrund radioökologischer Studien und detaillierter Prüfung des gegenwärtigen Standes von Wissenschaft und Technik zur Rückhaltung und Endlagerung der verschiedenen Radionuklide empfiehlt die Strahlenschutzkommission, bei der zur Zeit zur Diskussion stehenden Wiederaufarbeitungsanlage für die Jahresaktivitätsabgaben folgende Maximalwerte zuzulassen:

– Ableitungen mit der Fortluft:

Benennung	Jahresaktivitätsabgaben in Bq (Ci)		
Durchsatz	350 t/a	700 t/a	1000 t/a
α-Aerosole	$1{,}1\cdot10^{9}$ (0,03)	$1{,}9\cdot10^{9}$ (0,05)	$1{,}9\cdot10^{9}$ (0,05)
β-Aerosole	$1{,}1\cdot10^{11}$ (3)	$1{,}9\cdot10^{11}$ (5)	$1{,}9\cdot10^{11}$ (5)
J-129	$7{,}4\cdot10^{9}$ (0,2)	$7{,}4\cdot10^{9}$ (0,2)	$7{,}4\cdot10^{9}$ (0,2)
Kr-85	$1{,}1\cdot10^{17}$ ($3\cdot10^{6}$)	$2{,}2\cdot10^{17}$ ($6\cdot10^{6}$)	$3{,}3\cdot10^{17}$ ($9\cdot10^{6}$)
H-3	$3{,}7\cdot10^{15}$ ($1\cdot10^{5}$)	$7{,}4\cdot10^{15}$ ($2\cdot10^{5}$)	$1{,}1\cdot10^{16}$ ($3\cdot10^{5}$)
C-14	$9{,}3\cdot10^{12}$ ($2{,}5\cdot10^{2}$)	$1{,}9\cdot10^{13}$ ($5\cdot10^{2}$)	$2{,}6\cdot10^{13}$ ($7\cdot10^{2}$)

– Ableitungen mit dem Abwasser:

Benennung	Jahresaktivitätsabgaben in Bq (Ci)		
Durchsatz	350 t/a	700 t/a	1000 t/a
H-3	$3{,}7\cdot10^{13}$ ($1\cdot10^{3}$)	$3{,}7\cdot10^{13}$ ($1\cdot10^{3}$)	$3{,}7\cdot10^{13}$ ($1\cdot10^{3}$)
α-Strahler	$3{,}7\cdot10^{8}$ (0,01)	$7{,}4\cdot10^{8}$ (0,02)	$7{,}4\cdot10^{8}$ (0,02)
Aktivierungs- und Spaltprodukte ohne H-3 und α-Strahler	$1{,}1\cdot10^{10}$ (0,3)	$2{,}2\cdot10^{10}$ (0,6)	$2{,}2\cdot10^{10}$ (0,6)

(2) Die Strahlenschutzkommission hält zur Einhaltung der Forderungen des § 45 StrlSchV eine Rückhaltung von Kr-85, H-3 und C-14 bei einer Wiederaufarbeitungsanlage mit einer der vorgenannten Größen nicht für erforderlich, weil die bei vollständiger Emission dieser Radionuklide mit der Fortluft in der Umgebung entstehende Strahlenexposition deutlich unterhalb der Grenzwerte des § 45 StrlSchV liegt.

Der Anteil an Tritium, der prozeßtechnisch bereits als Tritiumlösung abgetrennt vorliegt, darf nach Ansicht der Strahlenschutzkommission unter Beachtung des Grundsatzes „so gering wie möglich" (§ 28 Abs. 1 Nr. 2 StrlSchV) nicht durch eine aktive Maßnahme über den Kamin abgeleitet werden.

(3) Um zukünftig bei verstärkter Nutzung der Kernenergie eine dem Stand von Wissenschaft und Technik entsprechende Technologie zur Kr-85-Abscheidung und -Endlagerung zur Verfügung zu haben, schlägt die Strahlenschutzkommission unter Berücksichtigung weltweiter Abgabe und Verteilung vor, daß ein Verfahren zur Kr-85-Rückhaltung bis zur technischen Reife ("heißer Betrieb") entwickelt und erprobt wird. Gleichzeitig ist ein Verfahren zur Kr-85-Endlagerung zu entwickeln.

3. Begründungen

3.1 Abschätzung der potentiellen Strahlenexposition bei Ausschöpfung der maximalen Jahresaktivitätsabgaben gemäß Empfehlung

Bei Ausschöpfung der angegebenen Jahresaktivitätsabgaben für Anlagen bis zu einem Durchsatz von 1000 t/a liegen die nach den Berechnungsmethoden und Daten der „Allgemeinen Berechnungsgrundlage für die Bestimmung der Strahlenexposition bei radioaktiven Ableitungen mit der Abluft oder in Oberflächengewässer" errechneten Jahresdosen unterhalb folgender Werte:

Luftpfad (ebenes Gelände, Emissionshöhe H = 200 m, Langzeitausbreitungsfaktor von etwa $2 \cdot 10^{-8}$ s/m^3):

	Jahresdosen in mSv (mrem)	
	Inhalations- und Ingestions-dosisfaktoren nach ICRP 2 *)	Inhalations- und Ingestions-dosisfaktoren nach ICRP 30 **)
Ganzkörper	0,05 (5)	-
effektive Dosis	-	0,05 (5)
Schilddrüse	0,2 (20)	0,2 (20)
Haut	0,15 (15)	0,1 (10)
Knochen	0,25 (25)	-
Knochenoberfläche	-	0,1 (10)
andere Organe	0,05 (5)	0,05 (5)

Diese Dosen können sich je nach Standort infolge ungünstigerer Ausbreitungsbedingungen der Radionuklide in der Atmosphäre um einen Faktor 2 bis 3 erhöhen.

Wasserpfad (angenommener mittlerer Wasserabfluß 20 m^3/s):

	Jahresdosen in mSv (mrem)	
	Ingestionsdosisfaktoren nach ICRP 2 *)	Ingestionsdosisfaktoren nach ICRP 30 **)
Ganzkörper	0,03 (3)	-
effektive Dosis	-	0,02 (2)
Schilddrüse	0,02 (2)	0,01 (1)
Knochen	0,12 (12)	-
Knochenoberfläche	-	0,05 (5)
andere Organe	0,03 (3)	0,03 (3)

Diese Dosen ändern sich umgekehrt proportional mit dem Wasserabfluß.

*) ICRP 2: derzeit gültige StrlSchV

**) ICRP 30: novellierte StrlSchV

3.2 Betrachtungen zu den Ableitungen über den Luftpfad

3.2.1 Jahresaktivitätsabgaben einer Wiederaufarbeitunsanlage mit der Fortluft, falls keine Rückhaltemaßnahmen vorgesehen werden

Würden keine Maßnahmen zur Rückhaltung vorgesehen, so ergäben sich etwa folgende Jahresaktivitätsabgaben:

Benennung	Jahresaktivitätsabgaben in Bq (Ci) ohne Rückhaltung		
Durchsatz	350 t/a	700 t/a	1000 t/a
Aerosole	$1{,}9 \cdot 10^{15}$ ($5 \cdot 10^{4}$)	$3{,}0 \cdot 10^{15}$ ($8 \cdot 10^{4}$)	$3{,}7 \cdot 10^{15}$ ($1 \cdot 10^{5}$)
J-129	$5{,}5 \cdot 10^{11}$ (15)	$1{,}1 \cdot 10^{12}$ (30)	$1{,}6 \cdot 10^{12}$ (43)
Kr-85	$1{,}1 \cdot 10^{17}$ ($3 \cdot 10^{6}$)	$2{,}2 \cdot 10^{17}$ ($6 \cdot 10^{6}$)	$3{,}3 \cdot 10^{17}$ ($9 \cdot 10^{6}$)
H-3	$3{,}7 \cdot 10^{15}$ ($1 \cdot 10^{5}$)	$7{,}4 \cdot 10^{15}$ ($2 \cdot 10^{5}$)	$1{,}1 \cdot 10^{16}$ ($3 \cdot 10^{5}$)
C-14	$9{,}3 \cdot 10^{12}$ ($2{,}5 \cdot 10^{2}$)	$1{,}9 \cdot 10^{13}$ ($5 \cdot 10^{2}$)	$2{,}6 \cdot 10^{13}$ ($7 \cdot 10^{2}$)

Diese Daten beziehen sich auf wiederaufzuarbeitenden Kernbrennstoff mit einem mittleren Abbrand von 40 000 MWd/t und einer Abkühlzeit von 7 Jahren.

3.2.2 Begründung für Rückhalteeinrichtungen

Geht man bei den Modellrechnungen von der „Allgemeinen Berechnungsgrundlage für die Bestimmung der Strahlenexposition bei radioaktiven Ableitungen mit der Abluft oder in Oberflächengewässer" mit den vom Länderausschuß für Atomkernenergie am 8.9.1982 beschlossenen Änderungen, jedoch neueren Ausbreitungsparametern für 200 m hohe Emittenten, aus, so ergibt sich für ein ebenes Gelände mit einem Langzeitausbreitungsfaktor von etwa $2 \cdot 10^{-8}$ s/m^3 (200 m hoher Kamin), daß beim Luftpfad durch J-129 und an Aerosolteilchen gebundene Radionuklide die Dosisgrenzwerte des § 45 StrlSchV ohne Rückhaltung erheblich überschritten werden. Die maximalen Dosisbeiträge durch H-3, C-14 bzw. Kr-85 sind demgegenüber jeweils mehr als einen Faktor 15 kleiner als die Dosisgrenzwerte des § 45 StrlSchV.

3.2.3 Maßnahmen zur Rückhaltung von Jod und Aerosolen

Die Rückhaltung von Jod mit Hilfe von silberimprägniertem Sorptionsmaterial und von Aerosolen mit Hilfe von Schwebstoffiltern der Klasse S sind heute Stand von Wissenschaft und Technik. Die Jahresaktivitätsabgaben lassen sich bei einer Anlage mit einem Durchsatz von 1000 t/a auf folgende Maximalwerte begrenzen:

Jod:	$7{,}4 \cdot 10^{9}$ Bq (0,2 Ci)
α-Aerosole:	$1{,}9 \cdot 10^{9}$ Bq (0,05 Ci)
ß- Aerosole:	$1{,}9 \cdot 10^{11}$ Bq (5 Ci)

Bei diesen Jahresaktivitätsabgaben liegt die maximale Jahresdosis der Schilddrüse (bei Kleinkindern und Erwachsenen) durch J-129 bei etwa 0,15 mSv (15 mrem) und des Ganzkörpers bzw. der Knochen bei Erwachsenen durch an Aerosolteilchen gebundene Radionuklide bei 0,025 mSv (2,5 mrem) *) bzw. 0,25 mSv (25 mrem) *). Die effektive Jahresdosis mit Dosisfaktoren nach ICRP 30 **) beträgt durch die an Aerosolteilchen gebundenen Radionuklide etwa 0,01 mSv (1 mrem).

In Hinsicht auf die Endlagerung handelt es sich bei Filtern, die mit Jod und Aerosolen kontaminiert sind, um schwach- bzw. mittelaktive Abfälle, deren Endlagerung im Bergwerk Asse II demonstriert wurde.

3.2.4 Zur Rückhaltung von Kr-85, H-3, C-14

Es wurde geprüft, inwieweit Kr-85, H-3 bzw. C-14 entsprechend § 28 Abs. 1 Nr. 2 StrlSchV bei einer Wiederaufarbeitungsanlage eventuell zurückgehalten werden sollten, obwohl die maximalen Jahresdosen durch jedes dieser drei Radionuklide bei vollständiger Ableitung mit der Fortluft weniger als 1/15 der Dosisgrenzwerte des § 45 StrlSchV betragen.

Kr-85:

Die Abtrennung von Kr-85 könnte entsprechend der industriellen Edelgasgewinnung bei der Luftzerlegung mit dem Verfahren der Tieftemperaturrektifikation durchgeführt werden, da in der konventionellen Technik hierzu bereits jahrzehntelange Erfahrungen vorliegen. Die Anwendung dieser Verfahren auf kerntechnischem Gebiet befindet sich in der Entwicklung.

Für die Entsorgung des auf Druckgasflaschen abgefüllten Kr-85 gibt es folgende Alternativen:

- Oberirdische Lagerung
- Versenkung in die Tiefsee.

Beim Verfahren „Oberirdische Lagerung“ liegen noch keine Erfahrungen mit der Lagerung radioaktiver, auf Druckgasflaschen abgefüllter Stoffe unter Naturzugkühlung vor. Zur Möglichkeit der „Versenkung in die Tiefsee“ werden zur Zeit noch Untersuchungen durchgeführt.

Da der Zubau der Kernenergie gegenwärtig kleiner ist als ursprünglich erwartet wurde, hält es die Strahlenschutzkommission nicht für erforderlich, Kr-85 derzeit bei einer Wiederaufarbeitungsanlage zurückzuhalten, um eine höhere Strahlenexposition durch global verteiltes Kr-85 zu verhindern. Würde z.B. das gesamte Kr-85, das in 1000 Kernkraftwerken mit je 1000 MWe entsteht, bei Wiederaufarbeitungsanlagen jährlich emittiert werden, so betrüge nach etwa 100 Jahren die Jahresdosis für die Haut durch global verteiltes K-85 etwa 0,01 mSv 1 mrem). Die Ganzkörperdosis durch Gammastrahlen beträgt etwa 1/75 der Hautdosis. Neuere Ausbreitungsexperimente im Kernforschungszentrum Karlsruhe ergaben außerdem, daß bei einer Emissionshöhe von 200 m die Bodenrauhigkeit einen wesentlich kleineren Einfluß auf die maximale bodennahe Luftkonzentration hat als bei 100 m hohen Emittenten. Hierdurch ist die lokale Strahlenexposition durch Kr-85 um etwa einen Faktor 2 bis 3 kleiner, als sie in den siebziger Jahren erwartet wurde.

---

*) mit Dosisfaktoren nach ICRP 2 berechnet: derzeit gültige StrlSchV
**) ICRP 30: novellierte StrlSchV

Um zukünftig bei verstärkter Nutzung der Kernenergie eine dem Stand von Wissenschaft und Technik entsprechende Technologie zur Kr-85-Abscheidung und -Endlagerung zur Verfügung zu haben, schlägt die Strahlenschutzkommission vor, daß ein Verfahren zur Kr-85-Rückhaltung bis zur technischen Reife (”heißer Betrieb”) entwickelt und erprobt wird. Gleichzeitig ist ein Verfahren zur Kr-85-Endlagerung zu entwickeln.

H-3:

Folgende technische Möglichkeiten liegen zur Senkung der Aktivitätsabgaben des H-3 in Form von HTO vor:

– Tritiumwäscher im ersten Extraktionszyklus mit anschließender Säurerezyklierung (Abwasserpfad)
– Auskondensation in den Abgasströmen durch Taupunktunterschreitung

Die Begrenzung der H-3-Abgabe mit dem Abwasser mit Hilfe eines Tritiumwäschers ist noch nicht Stand der Technik. Es können bei diesem Verfahren extreme Flußverhältnisse organischer zu anorganischer Phase vorliegen, wie sie in der technischen Chemie bisher nur selten angewandt worden sind. Ferner wurde das Verfahren noch nicht unter kerntechnischen Bedingungen erprobt.

Das Verfahren der Auskondensation durch Taupunktunterschreitung entspricht dem Stand von Wissenschaft und Technik.

Folgende Verfahren zur Entsorgung des zurückgehaltenen H-3 werden diskutiert:

– Verpressung in den geologischen Untergrund

– In situ-Verfestigung

– Verfestigung mit Zement in Fässern
  a) längerfristige Lagerung bis zum Zerfall
  b) Versenkung in die Tiefsee.

Das Verfahren „Verpressung im geologischen Untergrund” entspricht dem Stand von Wissenschaft und konventioneller Technik. Die ”In situ-Verfestigung” wird derzeit in der Bundesrepublik Deutschland entwickelt und entspricht dem Stand von Wissenschaft. In Deutschland liegen bislang bei diesen beiden Verfahren keine Erfahrungen mit radioaktivem Material vor.

Die Versenkung schwach- und mittelradioaktiver Abfälle in die Tiefsee wird derzeit von einigen Staaten unter Kontrolle der NEA durchgeführt.

Bei vollständiger Abgabe des H-3 über den Kamin liegt die hierdurch bedingte Strahlenexposition deutlich unterhalb der Grenzwerte des § 45 StrlSchV. Der Anteil an Tritium, der prozeßtechnisch bereits als Tritiumlösung abgetrennt vorliegt, darf jedoch nach Ansicht der Strahlenschutzkommission unter Beachtung des Grundsatzes ”so gering wie möglich”(§ 28 Abs. 1 Nr. 2 StrlSchV) nicht durch eine aktive Maßnahme über den Kamin abgeleitet werden. Ein Verfahren zur Endlagerung dieses zurückgehaltenen Tritium sollte demonstriert werden.

Die zu erwartende Strahlenexposition durch global verteiltes H-3 ist wegen des großen Mischungsvolumens in den Weltmeeren vernachlässigbar klein. Würden z.B. jährlich

$3{,}7 \cdot 10^{17}$ Bq ($1 \cdot 10^{7}$ Ci) H-3 (1000 große Kernkraftwerke) in das Oberflächenwasser der Weltmeere verbracht, so betrüge nach 100 Jahren die dadurch verursachte Jahresdosis für den Ganzkörper etwa 10^{-5} mSv (10^{-3} mrem).

C-14:

C-14 liegt im Abgas praktisch vollständig in Form von CO_2 vor. Die CO_2-Abscheidung auf absorptivem Weg ist ein übliches technisches Verfahren und entspricht dem Stand von Wissenschaft und konventioneller Technik. Die C-14-Abscheidung wurde noch nicht technisch erprobt.

In Hinsicht auf die Endlagerung handelt es sich bei C-14 um schwachradioaktiven Abfall, dessen Endlagerung im Bergwerk Asse II demonstriert worden ist.

Bei vollständiger Emission des C-14 liegt die hierdurch bedingte Strahlenexposition deutlich unterhalb der Grenzwerte des § 45 StrlSchV.

Bei der Betrachtung des aus Wiederaufarbeitungsanlagen emittierten C-14 ist zu bedenken, daß etwa 40 % des in Leichtwasserreaktoren produzierten C-14 bereits dort emittiert werden und nur die restlichen etwa 60 % bei Wiederaufarbeitungsanlagen. Daneben sinkt zur Zeit die durch C-14 verursachte Strahlenexposition durch Verbrennen C-14-freier fossiler Brennstoffe (Suess-Effekt). Würden jährlich $7{,}4 \cdot 10^{14}$ Bq ($2 \cdot 10^{4}$ Ci) C-14 (1000 große Leichtwasserreaktoren) in die Atmosphäre emittiert, so betrüge ohne Berücksichtigung des Suess-Effekts die Erhöhung der Jahresdosis durch global verteiltes C-14 in 100 Jahren etwa $5 \cdot 10^{-4}$ mSv (0,05 mrem).

3.3 Betrachtungen zu den Ableitungen über den Wasserpfad

Bei einer Anlage mit einem Durchsatz bis zu 1000 t/a erwartet man folgende maximale Jahresaktivitätsabgaben:

H-3	$3{,}7 \cdot 10^{13}$ Bq	($1 \cdot 10^{3}$ Ci)
α-Strahler:	$7{,}4 \cdot 10^{8}$ Bq	(0,02 Ci)
Aktivierungs- und Spaltprodukte ohne H-3 und α-Strahler	$2{,}2 \cdot 10^{10}$ Bq	(0,6 Ci)

Die durch diese Emissionen bedingte Strahlenexposition liegt bei Vorhandensein eines Vorfluters mit einem mittleren Wasserabfluß von 20 m^3/s deutlich unterhalb der Grenzwerte des § 45 StrlSchV.