

**Eidg. Institut für Reaktorforschung Würenlingen
Schweiz**

**C-14: Radiologische Umweltbelastung
durch Kernkraftwerke**

W. Burkart



Würenlingen, Januar 1977

**C-14 : RADIOLOGISCHE UMWELTBELASTUNG
 DURCH KERNKRAFTWERKE**

von

Werner Burkart

Januar 1977

A B S T R A C T

The properties and production types of C-14 are reviewed. Present and future production and release rates and environmental C-14 contents are estimated and applied to models for the global carbon cycle. Radiation exposures of the population due to C-14 are estimated by use of the C-14/C-12 ratio, and concentration limits for air and food are calculated, followed by a comparison with other radionuclides and a discussion of the technical possibilities for C-14 retention.

Assuming an extreme increase of nuclear power production the C-14 production rate could equal or exceed the natural rate towards the end of this century and would then produce individual annual doses of a few mrem. Relatively simple retention techniques could reduce these values to about a fifth. Due to the increase of fossil fuel combustion the C-14/C-12 ratio should not increase very much until the beginning of the next century. As carbon dioxide conversion to organic material followed by food consumption is the main path for C-14 uptake into the human body, the corresponding limit for C-14 concentration in air is about a factor of 400 lower than the ICRP limit for inhalation of carbon dioxide.

<u>I N H A L T S V E R Z E I C H N I S</u>	<u>Seite</u>
1. EINLEITUNG	2
2. EIGENSCHAFTEN UND ENTSTEHUNG VON C-14	3
2.1 ZERFALLSDATEN VON C-14	3
2.2 ENTSTEHUNG VON C-14	4
2.2.1 Wichtigste Entstehungswege von C-14 und seinen Vorläufern	4
2.2.2 Entstehungsorte im Kernreaktor	4
2.2.3 Natürliche Produktionsrate	5
3. C-14 AUS KERNKRAFTWERKEN	5
3.1 EINFUEHRUNG	5
3.2 GESCHAETZTE UND GEMESSENE BILDUNGS- UND ABGABERATEN IN ABHAENGIGKEIT DES REAKTORTYPS	6
3.3 GLOBALE C-14-PRODUKTION DURCH KERNKRAFTWERKE; PROGNOSEN FUER DIE KOMMENDEN JAHRZEHNTE	8
4. C-14 AUS KERNWAFFENVERSUCHEN IN DER ATMOSPHERE	14
5. GLOBALE KOHLENSTOFF-KREISLAUFMODELLE	16
6. ABSCHAETZUNG DER STRAHLENBELASTUNG DURCH C-14	18
6.1 KORRELATION DER STRAHLENBELASTUNG MIT DEM C-14/C-12-VERHAELTNIS	18
6.2 C-14/C-12-VERHAELTNIS IN DER ATMOSPHAERE IN DEN KOMMENDEN JAHRZEHNTEN	19
6.3 VERGLEICH MIT DER NATUERLICHEN UND MEDIZINISCHEN STRAHLENBELASTUNG	21
7. BERECHNUNG DER MAXIMAL ZULÄSSIGEN CHRONISCHEN KONZENTRATION VON C-14 IN LUFT UND NAHRUNGSMITTELN FÜR DIE GESAMTBEVÖLKERUNG	22
8. DIE GEFÄHRLICHKEIT VON C-14 IM VERGLEICH MIT ANDEREN RADIONUKLIDEN	25
8.1 ABGABERATEN EINIGER KRITISCHER NUKLIDE	25
9. MÖGLICHKEITEN DER RÜCKHALTUNG VON C-14	25
10. ZUSAMMENFASSUNG	28
ANHANG I : DER KOHLENSTOFF DER ERDE - Berechnungsgrundlagen	30
a) Strahlenschutzrichtwerte für C-14(ICRP 2)	31
b) Kohlenstoffgehalt einiger Organe und des "Reference Man"	34
c) Kohlenstoffbilanz des "Reference Man"	34

1. EINLEITUNG

Trotz der in der Öffentlichkeit mit unverminderter Heftigkeit anhaltenden Kontroversen um die Gefährlichkeit von Plutonium, Cäsium, Iod und Strontium konzentriert sich das Interesse der Strahlenschutzfachleute in letzter Zeit vermehrt auf so "harmlose" Radionuklide wie H-3, C-14 oder Krypton-85. Diese weichen β -Strahler, die im Falle des Tritiums und des Kohlenstoffes mit den üblichen Ueberwachungsgeräten gar nicht nachgewiesen werden können, entwickeln sich in der heutigen Phase des Atomzeitalters, in der die militärische, unkontrollierte Spaltung (ohne jegliche Abschirmung oder Rückhaltung) zugunsten der friedlichen Energieerzeugung in den Hintergrund tritt, zu den kritischen Nukliden im Hinblick auf die Belastung der Gesamtbevölkerung. In einer russischen Arbeit⁸⁾ wird für das Jahr 2010 die jährliche Strahlenbelastung durch in Kernkraftwerken entstandenes C-14 auf 10 mrad geschätzt. Diese Schätzungen beruhen jedoch auf dem C-14-Ausstoss von "exotischen" Reaktortypen (teilweise Wasser-Graphit) und dürften deshalb eine Korrektur nach unten erfahren. Auch im Westen sind seit kurzer Zeit entsprechende Untersuchungen erschienen, die in wenigen Jahrzehnten eine Strahlenbelastung der Gesamtbevölkerung durch C-14 aus Kernkraftwerken in der Grössenordnung von einem mrad/Jahr prophezeien^{1), 2), 5), 6)}, falls keine Einrichtungen zur Rückhaltung von C-14 installiert werden.

Diese wegen der kleinen Zerfallsenergie und der kleinen Entstehungsrate des Nuklids auf den ersten Blick auch für Strahlenschutzfachleute unerwartete Bedrohung durch C-14 hat mehrere Gründe:

- Die Strukturen aller pflanzlicher und tierischer Organismen bestehen weitgehend aus Kohlenstoffgerüsten (Zucker, Aminosäuren, Purine, Pyrimidine, Fette). Die Träger der genetischen Information (DNS) enthalten beispielsweise 37% C.
- Die hauptsächlichsten chemischen Verbindungen von C-14 in Reaktoren [CO₂, CO im BWR; CH₄, C₂H₆, CO₂ im PWR^{5), 6)}] sind Gase, die mit den heutigen Einrichtungen nicht zurückgehalten werden.
- Die Verweildauer von C-14 in Biosphäre, Atmosphäre und den obersten Schichten der Weltmeere ist ausserordentlich lang. Dies im Gegensatz zu beispielsweise Plutonium, das innerhalb weniger Jahrzehnte durch Absorption im Boden oder Sedimentation aus dem Bereich der Biosphäre verschwindet.

Auch Untersuchungen aus dem militärischen Bereich zeigen die Gefährlichkeit von C-14. Berechnungen der integralen Erwartungsdosis (bis $t=\infty$) resultierend aus den Atombombenexplosionen haben ergeben, dass die von C-14 herrührende Belastung der Gonaden 75% und des Knochenmarkes mehr als 50% der Gesamtbelastung durch atmosphärische Bombentests beträgt⁹⁾. Die Berechnung der absoluten Werte nach Abschluss der grossen Testserien durch das UNSCEAR²⁹⁾ ergaben für die Gonaden eine integrale Erwartungsdosis von 140 mrad aus C-14 bei insgesamt 170 mrad. Die entsprechenden Zahlen für das Knochenmark lauten auf 170 mrad (C-14) von total 230 mrad (alle Nuklide). Für die nächsten 30 Jahre beläuft sich die zusätzliche genetische Strahlenbelastung durch C-14 aus Bombentests auf 12 mrad oder 0,4 mrad pro Jahr.

Das in Reaktoren entstehende C-14 ist wegen der vielen kurzlebigen Nuklide, die gleichzeitig gebildet werden, oft nicht oder nur nach chemischer Abtrennung nachzuweisen. Dazu ein eindrückliches Beispiel : In Luft, die mit thermischen Neutronen in Berührung kommt (z.B. an Druckgefässoberflächen) entstehen aus Stickstoff-14 und Argon-40 C-14- und Ar-41-Atome im Verhältnis von 168:1. Das daraus resultierende anfängliche Aktivitätsverhältnis beträgt jedoch infolge der Unterschiede in den Halbwertszeiten 1:55'000 (C-14 : Ar-41).

2. EIGENSCHAFTEN UND ENTSTEHUNG VON C-14

2.1 ZERFALL VON C-14

Halbwertszeit	5736 Jahre
Zerfallsart	β^- 156 keV Maximalenergie 45 keV Mittlere Energie
Spezifische Aktivität	4,5 Ci/g
Reichweite in Weichgewebe	\sim 0,3 mm
Reichweite in Luft	\sim 250 mm
Effektive Energie im Körper	54 keV ¹¹⁾ (Ausnahme: Knochen: 270 keV)

2.2 ENTSTEHUNG VON C-14

2.2.1 Wichtigste Entstehungswege von C-14

Ausgangsnuklid	Reaktion	Produkt	σ_{th} (barn)	Isotopenhäufigkeit d. Ausgangsnuklides (Atom %)	Wichtigste Quellen des Ausgangsnuklides mit Gehalt in Gewichtsprozent
N-14	(n,p)	C-14	1,8	99,64	Luft 77 (Nitride(BS) 5 - 20*)
O-17	(n, α)	C-14	0,24	0,0039	Wasser (KM) 0,035 Oxide (BS) 0,0048
C-13	(n, γ)	C-14	0,0009	1,11	Graphit 1,11 Karbide (BS) 0,1

Bildungsreaktionen für die Ausgangsnuklide O-17 und C-13 :

O-16	(n, γ)	O-17	0,00018	99,76	Wasser 89 Oxide 9
C-12	(n, γ)	C-13	0,0034	98,89	Graphit 99 Karbide 9

*) Es ist noch unsicher, ob Nitride je als Brennstoff eingesetzt werden.

TAB. 1 : Entstehungsdaten von C-14 und seinen Vorläufern, Isotopenhäufigkeiten und wichtigste Quellen in der Kernenergie (BS: Brennstoff, KM : Kühlmittel)

2.2.2 Entstehungsorte im Kernreaktor

Aus den in Tab.1 aufgeführten Ausgangsnukliden geht hervor, dass im Kraftwerk folgende Entstehungsorte zu berücksichtigen sind :

Kühlmedium	(Wasser, Luft)
Brennelemente	(Oxide, Karbide)
Brennelement-Umhüllung	
Strukturmaterialien	(Kohlenstoff)
Aeussere Druckgefäßoberfläche	(Luft)

2.2.3 Natürliche Produktionsrate

In den oberen Schichten der Atmosphäre bildet sich dauernd aus Neutronen und Luftstickstoff C-14. Die Bildungsrate beträgt 2,3 Atome C-14 pro Sekunde und cm^2 Erdoberfläche⁸⁾. Dies führt zu einer Gleichgewichtskonzentration - bestimmt durch Bildungsrate und Kohlenstoffinventar - von ~ 7 pCi C-14/g Kohlenstoff⁸⁾ (UNSCEAR 6.13²⁹⁾). Das entsprechende C-14/C-12-Isotopenverhältnis beträgt ungefähr $1,5 \cdot 10^{-12}$. In der Tiefsee, deren Kohlendioxid im Durchschnitt vor ungefähr 1500 Jahren die Atmosphäre verlassen hat, beläuft sich die C-14-Konzentration nur noch auf 84% der atmosphärischen⁴⁾. Auch in organischem Material (z.B. Holz) nimmt mit zunehmendem Alter die C-14-Aktivität entsprechend der Halbwertszeit ab. Sofern der C-14-Gehalt der Atmosphäre in den letzten Jahrtausenden bekannt ist, lässt sich daraus das Alter des Holzes ungefähr bestimmen (C-14-Datierungen in Geschichte, Geobotanik). Aus der Bildungsrate lässt sich - Gleichgewicht vorausgesetzt - das C-14-Aktivitätsinventar der Erde berechnen. Bei einer Erdoberfläche von $5,01 \cdot 10^{18} \text{cm}^2$ ergibt sich :

$$2,3 \cdot 5,01 \cdot 10^{18} \text{ Zerfälle (bzw. Bildungen) von C-14-Atomen/Sekunde.}$$

Diese Zahl entspricht 311 Millionen Curie.

3. C-14 AUS KERNKRAFTWERKEN

3.1 EINFUEHRUNG

Die Bildungsrate pro 1000 Megawatt elektrischer Leistung und Jahr (30 - 200 Ci je nach Reaktortyp, vergleiche 3.2) erscheint im Vergleich zum C-14-Aktivitätsinventar der Erde niedrig. Dieser Schein trägt jedoch aus zwei Gründen :

- 93% des C-14-Inventars (kleineres C-14/C-12-Verhältnis berücksichtigt) befindet sich in der Tiefsee, 75m

unter der Meeresoberfläche und tiefer. Dieser Kohlenstoff tauscht nur sehr langsam mit dem Kohlenstoff der Atmosphäre und Biosphäre aus. Das schnell austauschende C-14-Inventar der Atmosphäre, Biosphäre und oberflächlichen Meeresschichten beläuft sich auf nur etwa 22 Millionen Curie. In diesen Kompartimenten, in denen auch die Assimilation (Synthese von Nahrungsmitteln aus $^{12}\text{CO}_2$ bzw. $^{14}\text{CO}_2$, H_2O und Sonnenlicht) stattfindet, wird sich in den nächsten Jahrzehnten und Jahrhunderten das künstlich gebildete C-14 zur Hauptsache verteilen.

- Infolge der langen Halbwertszeit von C-14 ergibt schon ein jährlicher Ausstoss von 37'600 Ci im Gleichgewichtszustand ein Aktivitätsinventar von 311 Millionen Curie C-14.

$$\frac{311 \cdot 10^6}{5736} \cdot \ln 2 = 37'582 \text{ Ci/Jahr}$$

3.2 GESCHAETZTE UND GEMESSENE BILDUNGS- UND ABGABERATEN IN ABHAENGIGKEIT DES REAKTORTYPS

In den letzten Monaten sind mehrere Abschätzungen der Bildungs- und Abgaberaten von C-14 durch die verschiedenen Reaktortypen erschienen 1), 2), 7), 8), 13). Zusätzlich hat KUNZ erstmals bei Siedewasser- und Druckwasserreaktoren die chemische Form und die Abgaberate experimentell bestimmt 5), 6). Die meisten Abschätzungen stimmen gut mit den bis heute bekannten Berechnungen überein. Die grössten Produktionsraten werden aus Russland gemeldet. Tabelle 2 gibt einen Ueberblick über die Bildungsraten pro Jahr und Gigawatt elektrische Leistung.

**TAB. 2 : Bildungsrate von C-14 in Ci. Gigawatt⁻¹ . Jahr⁻¹
Schätzungen für verschiedene Reaktortypen**

REAKTOR	Oberfläche Druckgefäß N-14	Kühlelementum 0-17,N-14	Brennelemente C-13 N-14,C-17	TOTAL	LITERATUR
PWR	◀ 0,1	11,1	19,3	30,4	14)
BWR	◀ 0,1	11,2	21,3	32,5	14)
PWR/BWR				50	1)
HTR (Kugel)	◀ 0,1	◀ 0,1	81,7	81,8	14)
HTR (Block)	◀ 0,1	◀ 0,1	76,1	76,1	14)
HTR				250	1)
NaSR	20	◀ 0,1	16,5	36,5	14)
wassermoderiert UdSSR				274 *	8)
graphitmoderiert UdSSR				820 *	8)

*) Ausstossrate

- BWR : Siedewasserreaktor (boiling water reactor)
- PWR : Druckwasserreaktor (pressurized water reactor)
- HTR : gasgekühlter Hochtemperaturreaktor
- NaSR : Natriumgekühlter schneller Brüter

Tabelle 3 zeigt für einige Reaktortypen die Aktivitätsanteile in Ci, die im Kraftwerk bzw. in der Wiederaufbereitungsanlage ausgestossen werden. Da in der Wiederaufbereitungsanlage (WAA) die C-14-Aktivitäten konzentrierter anfallen, könnten hier in einer ersten Phase Rückhaltesysteme (ev. zusammen mit Krypton) installiert und erprobt werden, die dann das technische "know how"

für solche Einrichtungen in Kernkraftwerken liefern würden. Beim Hochtemperaturreaktor würde sich der Ausstoss von C-14 mit dieser Massnahme um mehr als eine Grössenordnung verringern lassen.

TAB. 3 : Freisetzung von C-14 in Reaktor und Wiederaufbereitungsanlage (Ci/GW_{e1} und Jahr 14),⁸⁾

REAKTOR-TYP	f r e i g e s e t z t			FESTE ABFAELLE
	Reaktor	NAA	Gesamt	
PWR	11,0	15,5	26,5	3,9
BWR	11,2	18,3	29,5	3
HTR (Kugel)	≪ 0,1	81,8	81,8	-
HTR (Block)	≪ 0,1	76,1	76,1	-
NaSR (Loop)	20	2,1	22,1	14,4
UdSSR wassermoderiert	?	?	274	?
UdSSR graphitmoderiert	?	?	820	?

3.3 GLOBALE C-14-PRODUKTION DURCH KERNKRAFTWERKE; PROGNOSEN FUER DIE KOMMENDEN JAHRZEHNTE

Es existieren mehrere Prognosen über die Entwicklung der Stromproduktion aus Kernkraftwerken ^{23),24),25),8)}. Die Kurve in Abbildung 1 beruht auf Schätzungen der AEC. Neuere Daten lassen eine Verzögerung im Bau von Kernkraftwerken ganz allgemein und vor allem in der Einführung der Hochtemperatur-

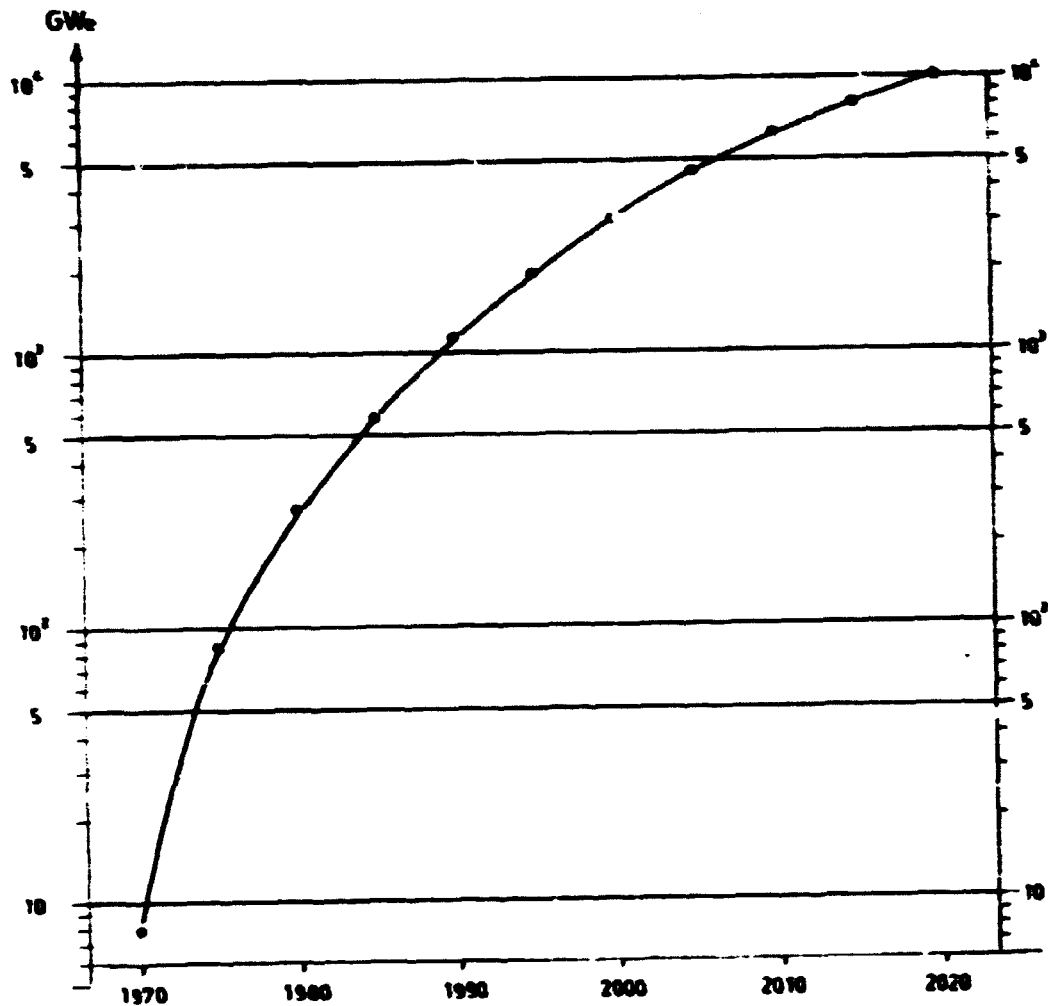


ABB. 1 : Entwicklung der global verfügbaren Leistung aus Atomkraftwerken in Gigawatt (Schätzung).

reaktoren gegenüber diesen Prognosen erwarten. Diese und folgende Extrapolationen sind daher als konservative, schlimmstmögliche Werte aufzufassen. Die daraus hergeleiteten Strahlenbelastungen sind Maximalwerte ohne Berücksichtigung von Rückhaltungsmöglichkeiten und der Wahrscheinlichkeit, dass die Wiederaufbereitung von Brennelementen aus HTR's erst nach ca. weiteren 10 Jahren einsetzen wird, wenn genügend Kraftwerke dieses Typs in Betrieb stehen und eine entsprechende Wiederaufbereitungsanlage durch sie ausgelastet werden kann.

Abbildung 2 zeigt :

- a) den jährlichen Ausstoss von C-14 unter der Annahme, dass pro Gigawattjahr elektrisch 5 Ci C-14 abgegeben werden ($\text{Ci}\cdot\text{a}^{-1}$)
- b) die natürliche C-14-Produktion in $\text{Ci}\cdot\text{a}^{-1}$
- c) die kumulierte Abgabe aus Kernkraftwerken in Ci und zum Vergleich
- d) das natürliche C-14-Inventar des rasch austauschenden Kohlenstoffes der Atmosphäre (5 MCi), Biosphäre (11 MCi) und Oberflächenschicht der Meere (5 MCi).

Aus Abbildung 2 geht hervor, dass die jährliche C-14-Abgabe (a) unter den angenommenen Bedingungen im Jahre 2020 nur 44-mal kleiner ist als das natürliche Inventar in der Atmosphäre, Biosphäre und Oberflächen der Ozeane (d). Bei konstanter Produktion ab dem Jahre 2020 würde deshalb ungefähr alle 50 Jahre eine zusätzliche Aktivitätsmenge in der Höhe des natürlichen Inventars in diese drei Kompartimente eingebracht. Dies bei einer mittleren Lebensdauer der C-14-Atome von 8275 Jahren. Auch der Vergleich mit der natürlichen Produktion von C-14 durch kosmische Neutronen (b), die uns - nach Erreichen des Gleichgewichtes - immerhin eine jährliche Strahlenbelastung von ungefähr 1 mrem beschert, beweist, dass der Limitierung des C-14-Ausstosses in den kommenden Jahrzehnten mehr Beachtung geschenkt werden muss.

In der Abbildung 3 schliesslich ist das C-14/C-12-Verhältnis in der Atmosphäre seit Beginn des Atomzeitalters bis zum Jahre 2020 aufgetragen. Die Kurve ab 1970 ist eine Schätzung, basierend auf den diesem Kapitel zugrundeliegenden Prognosen. Die Resultate (dick ausgezogene Kurve) ist das Ergebnis dreier teilweise gegenläufiger menschlicher Aktivitäten. Atom-bombentests und friedliche Atomenergienutzung erhöhen das C-14/C-12-Verhältnis; das Verbrennen fossiler Energieträger, deren C-14 schon längst abgeklungen ist, erniedrigen es. Im Sinne einer konservativen Abschätzung, wurde eine jährliche Zunahme des Verbrauches fossiler Brennstoffe um nur 3 % angenommen (siehe Seite 20). Würden Wachstumsraten entsprechend denjenigen

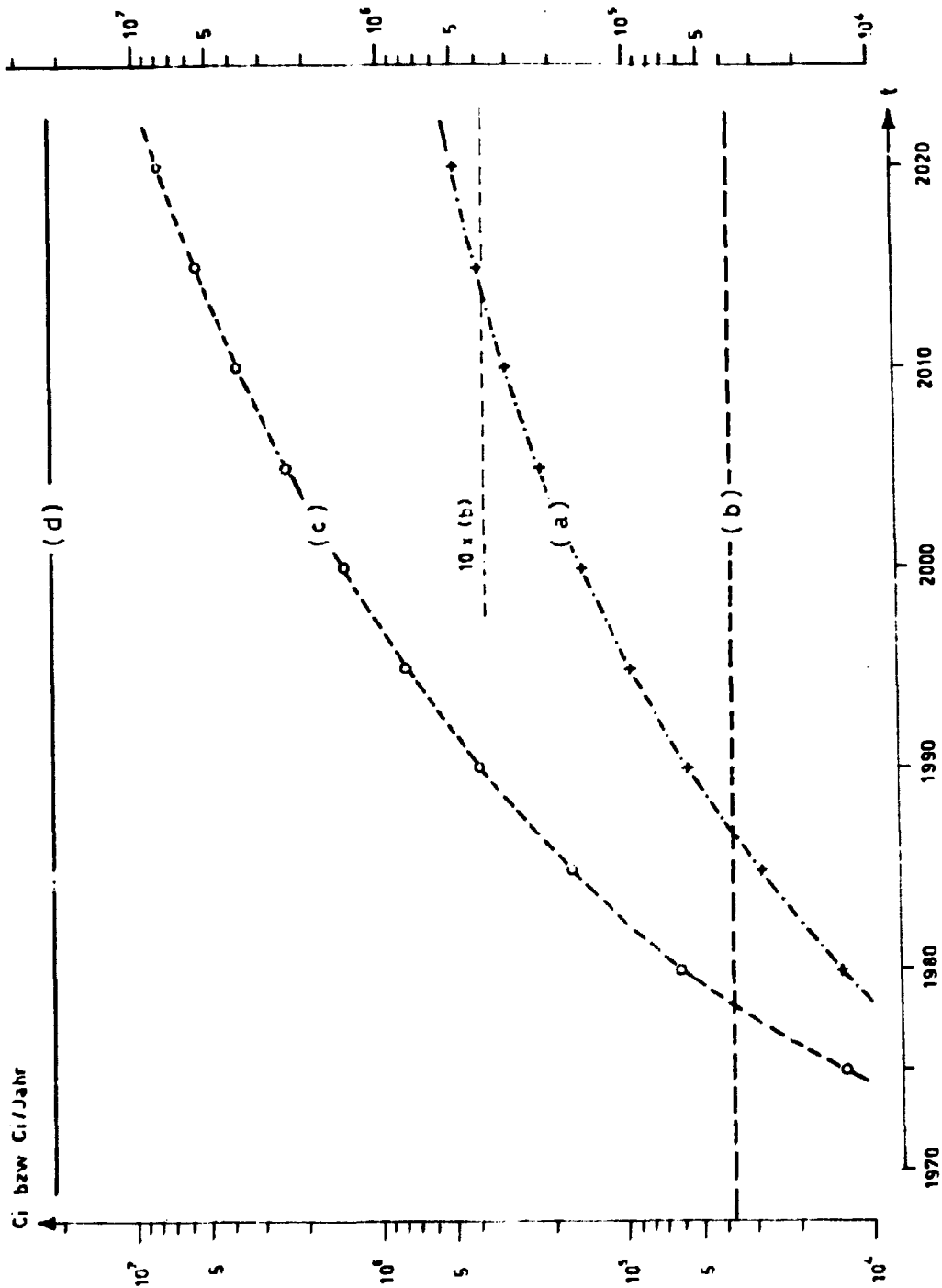


Abb. 2 : Bildungsraten und Inventare von C-14 in den nächsten Jahrzehnten :

- a) Jährlicher Ausstoss durch KKW
- b) natürliche Produktion
- c) kumulierter Ausstoss durch KKW
- d) natürliches Inventar des rasch austauschenden Kohlenstoffes

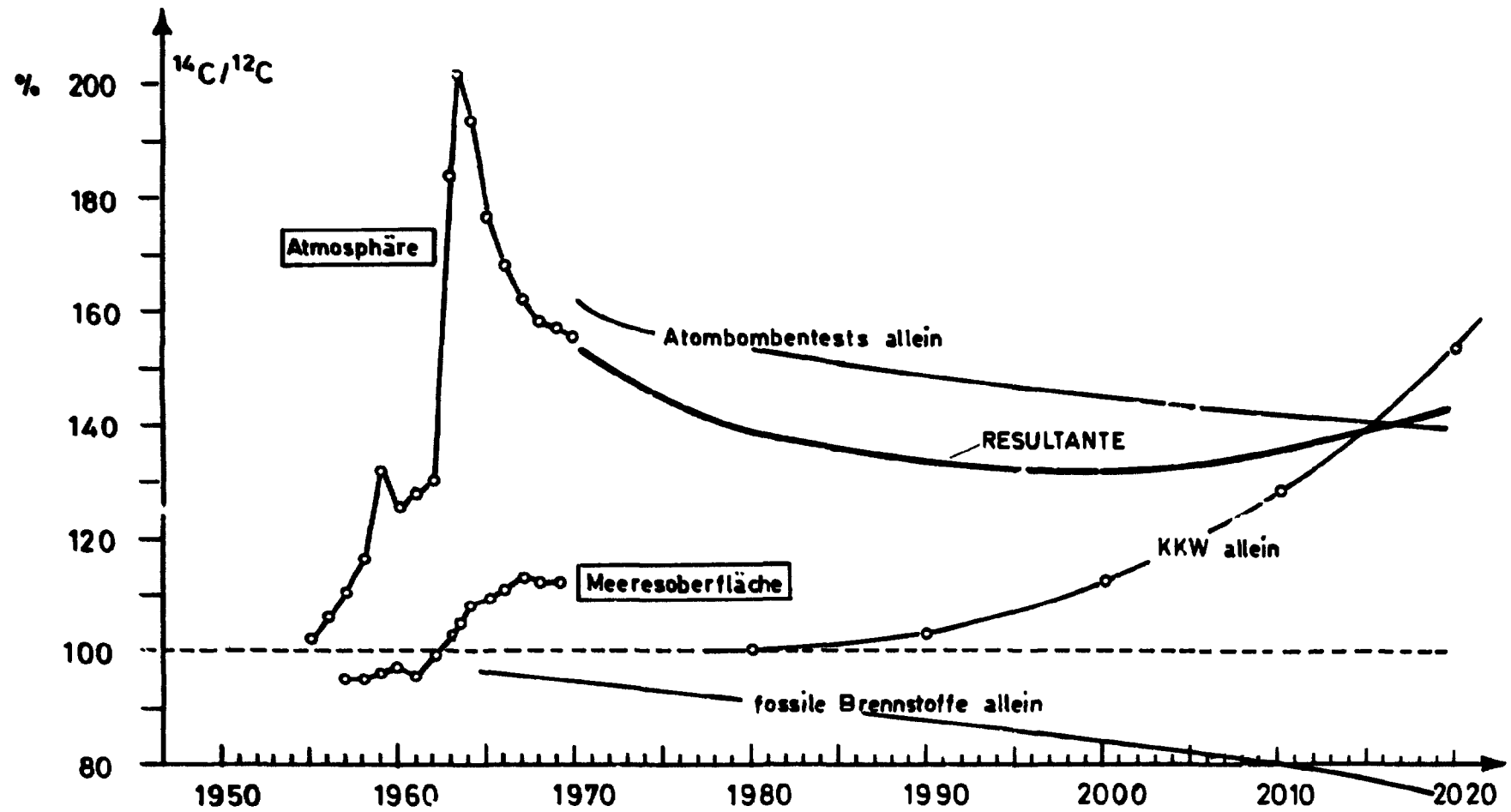


Abb. 3 : Prognose der Entwicklung des C-14/C-12-Verhältnisses in der Atmosphäre (Resultate). Erläuterungen im Text.

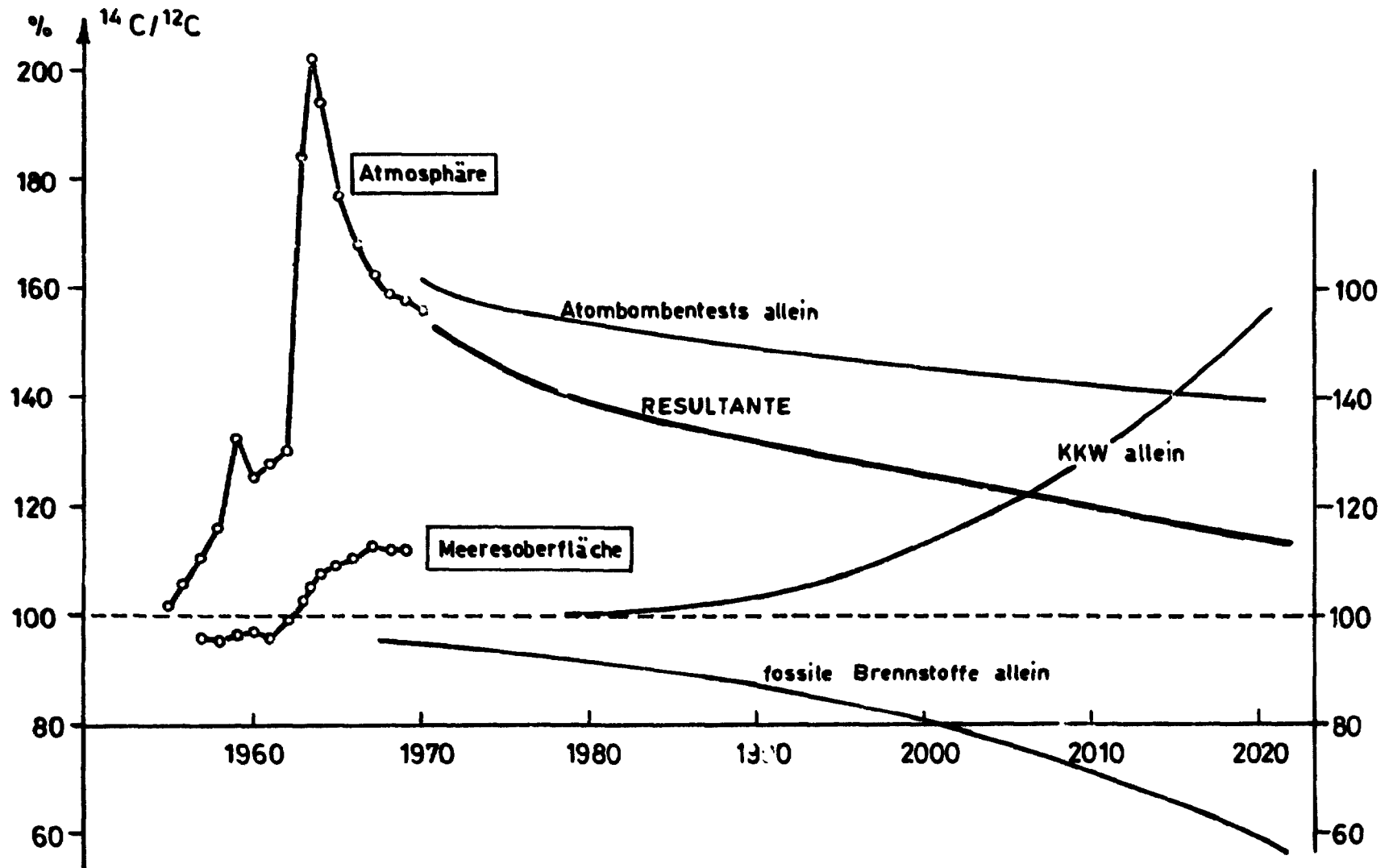


Abb. 3a : Jährliche Zunahme des Verbrauches fossiler Brennstoffe 6%.
 Sonstige Daten bzw. Annahmen wie in Abb. 3

der fünfziger und sechziger Jahre angenommen, würde sich der Verdünnungseffekt bis zum Jahre 2000 verdoppeln (siehe Abbildung 3a).

Die Messwerte für die Oberflächenschichte der Ozeane zeigen, dass auch die schnell miteinander austauschenden Kompartimente Jahrzehnte brauchen, um das Gleichgewicht wieder herzustellen.

4. C-14 AUS BOMBENTESTS IN DER ATMOSPHERE

Ein Teil der bei Uran-, Plutonium- und Wasserstoffbombenexplosionen entstehenden Neutronen reagiert vor dem Zerfall in Protonen und Elektronen mit dem Stickstoff der Luft zu C-14. Die integrale genetische Erwartungsdosis der Menschheit durch den Radiokohlenstoff der Bombentests in der Atmosphäre ist - wie schon auf Seite 2 erwähnt - dreimal so gross wie die Summe der Erwartungsdosen aller restlichen, bei den Explosionen entstehenden Radionuklide (zur Hauptsache Strontium-90 und Cäsium-137)⁹⁾. Tabelle 4 gibt die wichtigsten Daten über die C-14-Produktion durch militärische Tests an.

Die total entstandene C-14-Aktivität übersteigt das natürliche C-14-Inventar der Atmosphäre ($\sim 5 \cdot 10^6$ Ci) deutlich. Zu Beginn der sechziger Jahre wurde dann auch ein drastischer Anstieg der C-14-Aktivität der Luft um über 100% registriert (siehe Abb. 3).

TAB. 4 : Reaktionsprodukte von Nuklearexplosionen in der Atmosphäre ^{9) 17) 32)}

	ATOMBOMBE	WASSERSTOFF-BOMBE
Fissionen bzw. Fusionen/Megatonne (178 MeV/f) (17,8 MeV/f)	$1,45 \cdot 10^{26}$	$1,45 \cdot 10^{27}$
Neutronen/Fission bzw. Fusion	2,5 - 1	1
Neutronen/Megatonne	$2,2 \cdot 10^{26}$	$1,45 \cdot 10^{27}$
Aktivität/Megatonne : C-14	$\ll 2,3 \cdot 10^4$	$\ll 1,5 \cdot 10^5$
(Ci) H-3	-	$6,67 \cdot 10^6$
Cs-137	$1,57 \cdot 10^5$	-
Sr-90	$1,45 \cdot 10^5$	-
Sprengkraft aller bisherigen Tests in der Atmosphäre (-1972) (in Megatonnen Trinitrotoluol)	200	500 300
dabei maximal entstandene C-14-Aktivität (Ci)	$\ll 4,5 \cdot 10^6$	$5 \cdot 10^7$ $\ll 4,9 \cdot 10^7$
Schätzung aus Anstieg der C-14-Aktivität in der Atmosphäre (Ci)		$\sim 10^7$ (UNSCEAR 72: $6,2 \cdot 10^6$)

*) diese Zahl ist ein Maximalwert, da bei starken Explosionen oder bei Explosionen in Bodennähe die C-14-Ausbeute sinkt.

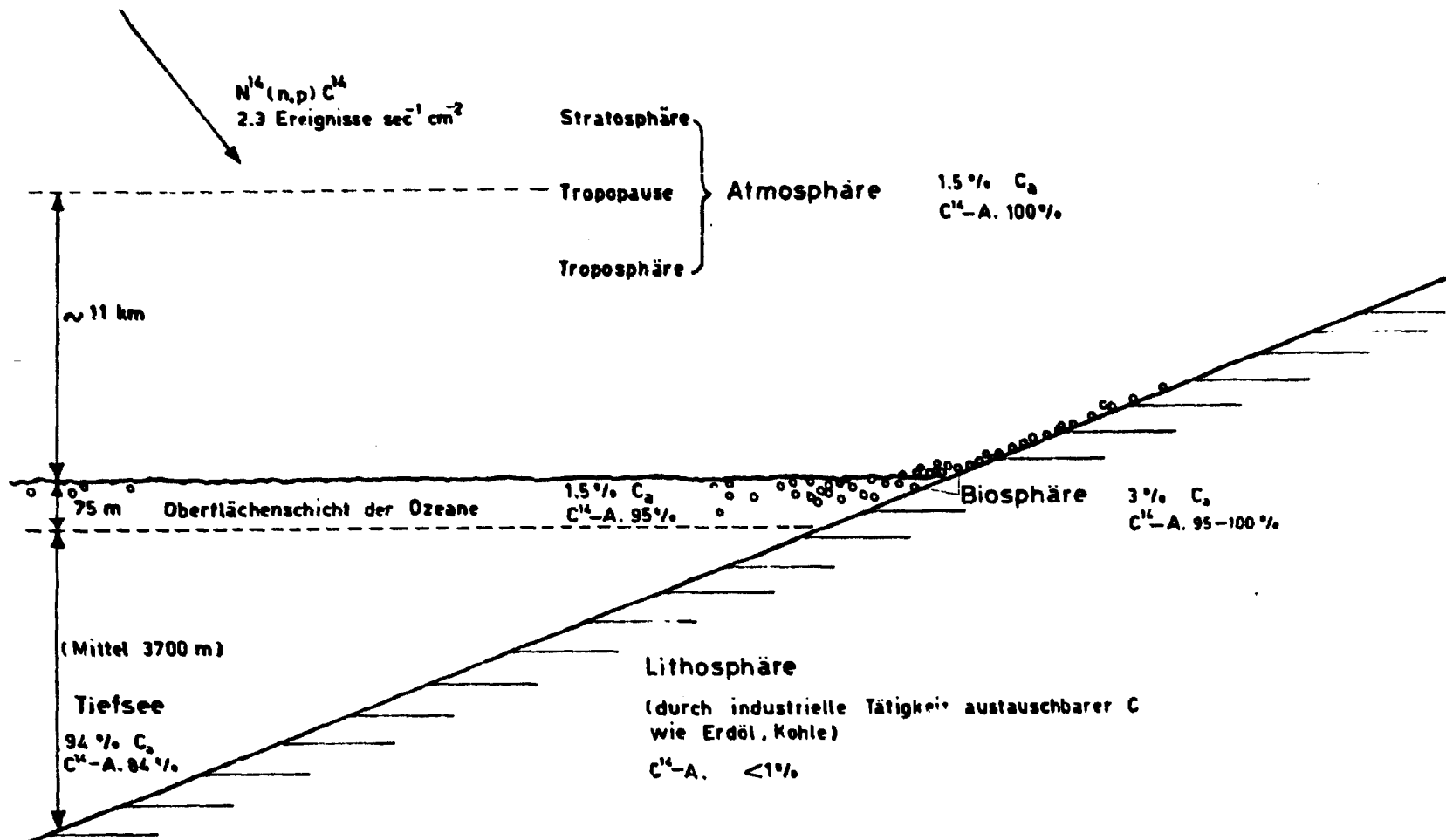


Abb. 4 : $\%C_a$: die Kompartimente des austauschenden Kohlenstoffes (Zahlen in % des austauschbaren Kohlenstoffes)

$C^{14}\text{-A.}\dots\%$: spezifische Aktivität des C^{14} (C^{14}/C^{12} -Verhältnis in der Atmosphäre $\hat{=}$ 100 %).

5. GLOBALE KOHLENSTOFF-KREISLAUFMODELLE

Die schlussendlich aus der Produktion des Nuklides resultierende Erwartungsdosis für Gonaden oder Knochenmark hängt neben der Produktionsmenge auch vom Verhalten des Nuklides in der Oekosphäre (Biosphäre, Atmosphäre, oberste Schichten der Litho- und Hydrosphäre) ab. Da dem Kohlenstoff schon in den Anfängen der Oekologie gebührende Beachtung geschenkt wurde, existiert eine grössere Anzahl von Modellen des Kohlenstoffkreislaufes. Auch im Hinblick auf die erhöhte CO_2 -Freisetzung durch Verbrennung fossiler Kohlenstoffverbindungen (Kohle, Erdöl, Erdgas), die globale Klimaveränderungen bewirken könnten, entstanden in letzter Zeit Modelle, die durch Korrelation des CO_2 -Anstieges in der Atmosphäre mit dem Erdöl- und Kohleverbrauch der letzten Jahrzehnte auf ihre Tauglichkeit überprüft werden konnten 3), 4).

Es kann angenommen werden, dass der Radiokohlenstoff unabhängig vom Entstehungsort nach seiner Entstehung in kurzer Zeit in CO_2 übergeführt wird und in wenigen Jahren mit dem atmosphärischen Kohlenstoff homogen vermischt wird. Abbildung 5 zeigt die Hauptrouten des Kohlenstoffkreislaufes, die Austauschgeschwindigkeiten und die Kohlenstoffmengen in den einzelnen Kompartimenten. Die Zahlen sind Mittelwerte der Angaben aus 4), 15), 16) und in Einheiten von 10^{10} Tonnen angegeben. Weitere wichtige Zahlenwerte sind im Anhang I "Der Kohlenstoff der Erde: Berechnungsgrundlagen" auf Seite 30 zusammengefasst.

Die Darstellung zeigt mit aller Deutlichkeit, dass die Uebergangsgeschwindigkeiten zwischen den einzelnen Kompartimenten für unsere Zeitbegriffe langsam verlaufen. Trotz des relativ schnellen Austausches zwischen Atmosphäre und Meer beträgt die Halbwertszeit für C-14 in der Atmosphäre (Rückreaktion nicht berücksichtigt) immerhin 5 Jahre.

Die jährliche Assimilation von 4 % des atmosphärischen CO_2 durch grüne Pflanzen bedeutet keine echte Entlastung der Atmosphäre, weil der grösste Teil des organischen Materials (Blätter, Gräser) noch im gleichen Jahr wieder veratmet wird und der Kohlenstoff von neuem als CO_2 in die Luft gelangt.

Zur Berechnung der Strahlenbelastung im Verlaufe der nächsten 100 Jahre infolge der Abgabe der C-14-Aktivität erscheint es daher angezeigt, eine Verteilung des durch die Kernkraftwerke gebildeten C-14 anzunehmen, bei der mindestens 50% der Aktivität in Atmosphäre, Biosphäre und den obersten Schichten (-75m Tiefe) der Ozeane vorliegt, in einem Kompartiment also, das ungefähr $2,1 \cdot 10^7 \text{ Ci}$ natürlich gebildetes C-14 enthält (siehe Abb.2) 2), 14).

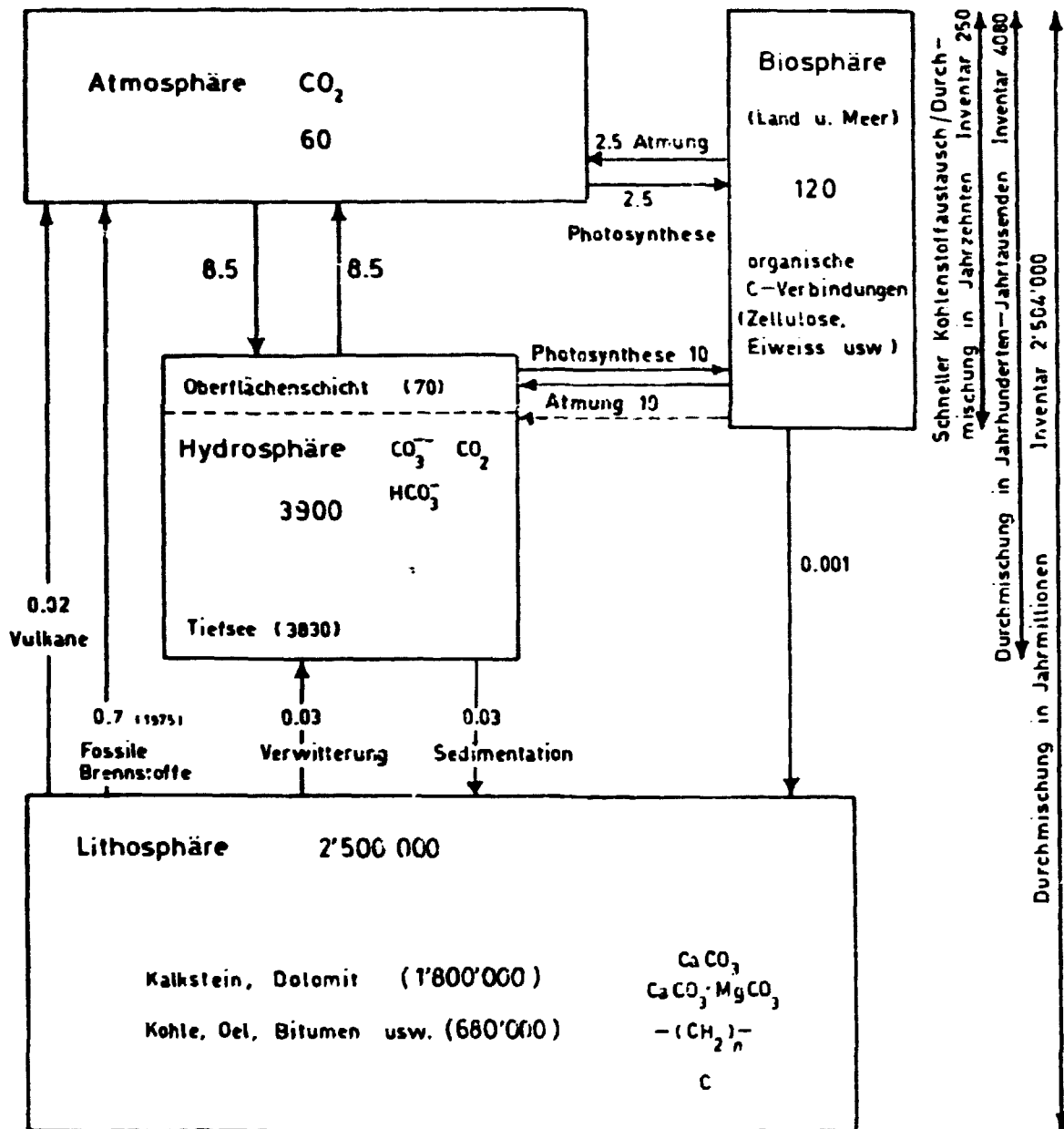


Abb. 5 : Der Kohlenstoff der Erde. Inventare der einzelnen Kompartimente in $10^{10}t$ und Austauschgeschwindigkeiten in $10^{10}t \cdot a^{-1}$.

6. ABSCHÄTZUNG DER GENETISCHEN STRAHLENBELASTUNG DURCH KÜNSTLICH ERZEUGTES C-14

In den folgenden Berechnungen wird anstelle von absoluten C-14-Konzentrationen mit dem C-14/C-12-Verhältnis gearbeitet. Diese Konvention ermöglicht eine einfache und gut verständliche quantitative Bestimmung von Strahlenbelastungen. Leider eignet sich die Methode nur für flüchtige oder regelmässig flüchtige Zustände durchlaufende Nuklide, die in kurzer Zeit mit dem(n) stabilen Nuklid(en) im Gleichgewicht stehen, d.h. für C-14, Edelgase, H-3, und (für konservative Abschätzungen) I-129²⁸).

6.1 KORRELATION DER STRAHLENBELASTUNG MIT DEM C-14/C-12-VERHAELTNIS

Da eine mathematische Herleitung der Strahlendosis den Rahmen dieser Arbeit sprengen würde und zugleich die ICRP-Richtwerte¹¹⁾ nur für Inhalation und Ingestion von Kohlenstoff in der Form von Kohlendioxid (CO₂) angegeben sind - weil der Mensch selber nicht assimiliert, erfolgt jedoch die Hauptbelastung durch Aufnahme von C-14 enthaltenden Nahrungsmitteln (Zucker, Fette usw.), die für den Aufbau des menschlichen Körpers verwendet werden -, beziehen wir uns auf die folgenden zwei von den internationalen Strahlenschutzbehörden anerkannten Werte.

1. Die genetische Strahlenbelastung (zugleich Ganzkörperdosis) durch das natürlich entstandene C-14 beträgt ungefähr 1 mrad/Jahr¹⁸⁾. Der Umrechnungsfaktor beträgt 0,16 mrad/Jahr und pCi C-14 pro g Kohlenstoff.
2. Die ICRP gibt für den Ganzkörper als kritisches Organ als maximal erlaubte dauernde C-14-Aktivität im Körper von beruflich strahlenexponierten Personen 400 µCi an¹¹⁾. Dieser "Body Burden" würde nach den Berechnungsgrundlagen der ICRP für Keimdrüsen eine Dosis von ungefähr 5000 mrem pro Jahr ergeben.

Aus beiden Werten lässt sich leicht das C-14/C-12-Verhältnis herleiten, das eine jährliche Strahlenbelastung von 1 mrem ergibt.

Zu 1. Aus 16) berechnet sich das natürliche Isotopenverhältnis C-14/C-12 auf $1,5 \cdot 10^{-12}$.

⇒ ein C-14/C-12-Verhältnis von $1,25 \cdot 10^{-12}$ ergibt eine jährliche Ganzkörperbelastung von 0,83 mrad oder 1 mrem/Jahr (Effektive Energie Ganzkörper 54 keV¹¹⁾, Zerfallsenergie 45 keV).

Zu 2. Der "Standard Man" der ICRP 2 ¹¹⁾ enthält 12,6 kg Kohlenstoff, der "Reference Man" der ICRP 25 ¹²⁾ 16 kg Kohlenstoff. 400 μ Ci C-14-Aktivität (maximal erlaubter "body burden" für Ganzkörper) in 14,3 kg Kohlenstoff (Mittelwert) entsprechen einem C-14/C-12-Verhältnis von $6,22 \cdot 10^{-9}$ bzw. 5000 mrem/Jahr.

$$\implies \text{ein C-14/C-12-Verhältnis von } \frac{6,22 \cdot 10^{-9}}{5000} = \frac{1,24 \cdot 10^{-12}}{1 \text{ mrem/Jahr.}}$$

Beide Ansätze ergeben die gleiche Beziehung zwischen spezifischer C-14-Aktivität und Dosiserwartung. Diese Beziehung dürfte somit gesichert sein. Mit ihr werden auf den folgenden Seiten die zu erwartenden Dosen berechnet.

6.2 VERSCHIEBUNG DES C-14/C-12-VERHAELTNISSES IN DER ATMOSPHAERE DURCH KERNKRAFTWERKE UND VERBRENNUNG FOSSILER ENERGIETRAEGER IN DEN KOMMENDEN JAHREN

Laut Prognosen auf Seite 9 werden bis zum Jahre 2000 Kernkraftwerke mit einer Gesamtleistung von 3060 Gigawatt elektrisch und für das Jahr 2020 10'000 Gigawatt elektrisch installiert sein. Diese Werte können besonders im Lichte der industriellen Entwicklung der letzten 2 Jahre als obere Grenze betrachtet werden und eignen sich deshalb gut für eine konservative Abschätzung der Umweltbelastung.

Magno ¹⁾ erhält mit diesen Prognosen und unter der Annahme, dass pro Gigawattjahr elektrisch 70 Ci C-14 freigesetzt würden (LWR und HTR) bis zum Jahre 2020 einen kumulativen C-14-Ausstoss von 11 Millionen Ci. Dies würde bedeuten, dass innerhalb der nächsten 44 Jahre das C-14-Inventar der schnell austauschenden Kohlenstoffkompartimente Atmosphäre, Biosphäre und Meeresoberfläche um 52 % zunehmen würde. Unter der Annahme, dass die Freisetzung von Kohlenstoff durch Verbrennung von Erdöl, Kohle, Erdgas, die im Jahre 1975 ungefähr $0,7 \cdot 10^{10}$ t erreichte, jährlich um 3 % ansteigen wird, vergrößert sich bis zum Jahre 2020 das rasch austauschende Kohlenstoffinventar von Abbildung 5 um $66 \cdot 10^{10}$ Tonnen oder 26 %.

$$0,7 \cdot 10^{10} \int_0^{2020-1975} (1,03)^x dx = 65,87 \cdot 10^{10}$$

Das C-14/C-12-Verhältnis würde sich entsprechend um 21 % erhöhen :

TAB. 5 : Das C-14 und C-12-Inventar der schnell austauschenden Kompartimente in den Jahren 1975 und 2020 (Einfluss der Bombentests nicht berücksichtigt).

	C-14	C-12	C-14/C-12
1975	$21 \cdot 10^6$ Ci	$250 \cdot 10^{10}$ t	$1,86 \cdot 10^{-12}$ *
2020	$32 \cdot 10^6$ Ci	$316 \cdot 10^{10}$ t	$2,25 \cdot 10^{-12}$
Prognose	Magno	+3%/Jahr	
Erhöhung (%)	52	26	21

*) Die Abweichung dieses Wertes von der Zahl auf Seite 12 um 24% gibt einen Einblick in die Genauigkeit solcher Ueberschlagsrechnungen.

Aus Tabelle 5 geht hervor, dass bei vollständiger Durchmischung der drei schnell austauschenden Kompartimente Atmosphäre, Biosphäre und Oberfläche der Ozeane bis zum Jahre 2020 eine zusätzliche Strahlenbelastung von

$$\frac{0,39 \cdot 10^{-12}}{1,25 \cdot 10^{-12}} = 0,31 \text{ mrem/Jahr}$$

resultieren würde. Da die vollständige Durchmischung jedoch Jahrzehnte benötigt, und in den ersten Jahren die zusätzliche Aktivität sich vor allem in der Atmosphäre und neugebildeten Biosphäre (=Nahrungsmittel) aufhält, wird die effektive Strahlenbelastung auf ungefähr das Doppelte dieses Wertes zu veranschlagen sein.

Obwohl eine zusätzliche Strahlenbelastung der gesamten Wohnbevölkerung von etwa 0,5 - 0,7 mrem im Jahre 2020 durch C-14-Aktivität aus Kernkraftanlagen tragbar erscheint, mahnt ein Vergleich der Produktionsraten zum Aufsehen. Die 10'000 Gigawatt elektrischer Leistung bedeuten unter den angegebenen Annahmen einen jährlichen C-14-Ausstoss von 700'000 Ci oder

eine 18-mal grössere C-14-Produktion als durch die natürliche C-14-Quelle, die kosmische Strahlung.

Völlige und schnelle Durchmischung mit der Tiefsee vorausgesetzt, würde sich diese zusätzliche C-14-Erzeugung erst nach einer Produktionsdauer in der Grössenordnung der Halbwertszeit von C-14 mit einer zusätzlichen Strahlenbelastung von 20 mrem/Jahr auswirken. Wie wir schon früher gesehen haben und wie auch die merkliche Erhöhung der CO₂-Konzentration in der Luft - verursacht durch Verbrennung fossiler Brennstoffe - zeigt, läuft die Verdünnung des C-14 durch das riesige Potential an austauschbarem Kohlenstoff der Ozeane jedoch sehr langsam ab. Eine drastische Erhöhung der Strahlenbelastung durch C-14 um mehrere mrem/Jahr könnte sich deshalb schon wenige Jahrzehnte nach Installierung einer Leistung von 10'000 Gigawatt elektrisch ergeben, falls keine geeigneten Rückhaltmassnahmen ergriffen werden.

6.3 VERGLEICH MIT DER NATUERLICHEN UND MEDIZINISCHEN STRAHLENBELASTUNG

Die folgenden Zahlen stammen aus dem Bericht des "UN Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiations" von 1972 ²⁹). Sie können je nach geologischem Untergrund, Behausung und Niveau der medizinischen Versorgung stark schwanken. Es war bis heute nicht möglich, zwischen menschlichen Populationen mit unterschiedlicher natürlicher Strahlenbelastung statistisch signifikante Unterschiede in Krebshäufigkeit, Zahl der Todesgeburten etc. festzustellen. Dies ist einerseits auf die gleichzeitig bestehenden Unterschiede in Ernährung, Erbeigenschaften und Lebensgewohnheiten zwischen den Vergleichspopulationen zurückzuführen, andererseits aber auch auf die äusserst geringen Schädigungen, die eine jährliche Bestrahlung von 100 mrem in einer Population erzeugt.

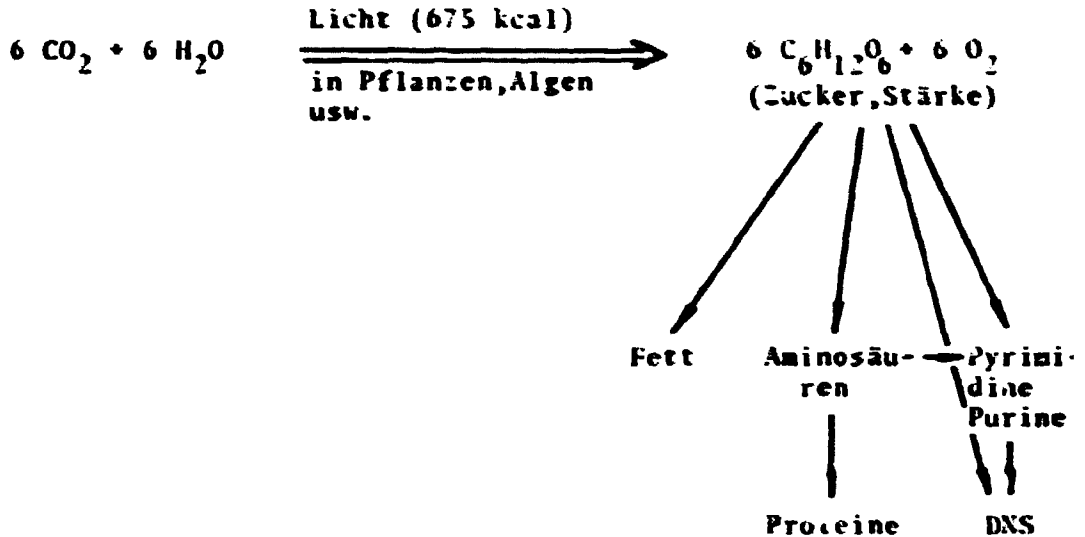
7. BERECHNUNG DER MAXIMAL ZULÄSSIGEN CHRONISCHEN KONZENTRATION VON C-14 IN LUFT UND NAHRUNGSMITTELN FÜR DIE GESAMTBEVÖLKERUNG

Die MPC-Werte der ICRP 2 und der Schweizerischen Strahlenschutzverordnung beziehen sich auf C-14 in der Form von Kohlendioxyd (CO_2). Obwohl diese chemische Form in Kernkraftwerken und Isotopenproduktionsstätten hauptsächlich auftritt, ist für die Gesamtbevölkerung - wie Anhang IIc (Kohlenstoffbilanz des "Reference Man" zeigt) - die Aufnahme von Kohlenstoff in der Form von CO_2 vernachlässigbar. Entscheidend für die chronische Strahlenbelastung ist das C-14/C-12-Verhältnis in der Nahrung und somit das C-14/C-12-Verhältnis des Kohlendioxids der Luft, aus der die Pflanzen, von denen unsere Nahrung direkt (Brot, Zucker, Gemüse etc.) oder indirekt (Milch, Fleisch) abstammt, den Kohlenstoff assimiliert haben.

TAB. 6 : Jährliche Belastung der Gonaden durch natürliche und künstliche Strahlenquellen (mrad/Jahr) (26), (27), (29), (30)

	DURCH-SCHNITT	MAX. WERTE
<u>"</u> <u>NATURLICHE QUELLEN</u>		
"		
Aussere Strahlung : kosmische Strahlung	28	40
terrestrische Strahlung	44	8000
Interne Bestrahlung:Kalium-40	19	20
Kohlenstoff-14	0,7	1
Radium und Zerfallsprodukte	0,7	10
Total	93	
<u>ZIVILISATIONSBEDINGTE BELASTUNG</u>		
Medizin (CH, Poretti, 1971)	42 (GSD)	
mittlere Gonadendosis	~ 80	
Fallout von Atombombenversuchen (CH, NURE, 1974)	5	30
Kernkraftwerke (CH, 1975)	« 1	3
Uhren, Fernseher Beruflich. Strahlenbelastung Flugreisen	« 1	

Grundreaktion :



Die C-14-Konzentration der Luft, die indirekt über die Nahrung eine Strahlenbelastung (Ganzkörper) der Gesamtbevölkerung von 5 rem in 30 Jahren ergibt, berechnet sich wie folgt :

Aus Abschnitt 6.1 geht hervor, dass ein C-14/C-12-Verhältnis im menschlichen Körper von ungefähr $1,25 \cdot 10^{-12}$ eine Dosiserwartung von $1 \text{ mrem} \cdot \text{a}^{-1}$ ergibt. Die maximal erlaubte Dosis (5 rem in 30 Jahren) wird deshalb mit einem Verhältnis von

$$\frac{5000 \cdot 1,25 \cdot 10^{-12}}{30} = 2,08 \cdot 10^{-10}$$

erreicht. Da der Kohlenstoff des menschlichen Körpers zu über 99 % aus dem organischen Kohlenstoff der Nahrung entsteht und in biologischen Systemen keine ins Gewicht fallende Fraktionierung der verschiedenen Kohlenstoff-Isotope auftritt, bedeutet dies, dass auch das Isotopenverhältnis der Atmosphäre diesen Wert nicht überschreiten darf.

Die Luft auf 1000 m über Meeresspiegel enthält 0,0314 Mol % CO_2 oder 0,145 g Kohlenstoff pro m^3 (Anhang I). Der Gehalt an C-14, der über die Nahrungskette 5rem/30 Jahre Ganzkörperdosis ergibt, beläuft sich deshalb auf :

$$\frac{2,8 \cdot 10^{-10}}{12} \cdot 14 \cdot 0,145 \text{ gm}^{-3} = 3,52 \cdot 10^{-11} \text{ g C-14/m}^3 \text{ Luft}$$

oder 157 pCi C-14/m³ Luft

(nat. Gehalt = 1 pCi/m³)

Zum Vergleich :

Der ICRP-Inhalationsrichtwert, der die Umwandlung von CO₂ in organisches Material und die Aufnahme desselben durch die Nahrungskette nicht berücksichtigt, liegt bei

$$\text{ICRP 2 : } \frac{10^{-6} \text{ (MPC}_a \text{ für 168 Stundenwoche)}}{30} \text{ Ci}\cdot\text{m}^{-3} \text{ oder}$$

$$\frac{33'333 \text{ pCi C-14/m}^3 \text{ Luft}}{\text{-----}}$$

$$\text{ICRP 10: } \frac{2 \cdot 10^6}{30} = \frac{66'667 \text{ pCi C-14/m}^3 \text{ Luft}}{\text{-----}}$$

Der Richtwert, der die Umwandlung des C-14 in der Oekosphäre berücksichtigt, liegt somit um einen Faktor 424 niedriger als der Wert der ICRP 10.

Aus den ICRP-Richtwerten für ¹⁴CO₂ lassen sich somit nur durch Berücksichtigung des Verdünnungsfaktors keine Strahlenbelastungen für die Umgebung von Kernkraftwerken berechnen.

TAB. 7 : Einige maximal zulässige chronische C-14-Aktivitäten für die Gesamtbevölkerung (5 rem Ganzkörper in dreissig Jahren, falls der Stoffwechsel mit diesen Stoffen bestritten wird)

	chem. Form	Aktivität
L U F T		
ohne Berücksichtigung der Nahrungskette	CO ₂	66'667 pCi/m ³
mit Berücksichtigung der Nahrungskette	CO ₂ organ. Material	157 pCi/m ³
Z U C K E R	C ₆ H ₁₂ O ₆	440 nCi/kg
F E T T	z.B. C ₅₄ H ₁₀₄ O ₆	830 nCi/kg

8. DIE GEFÄHRLICHKEIT VON C-14 IM VERGLEICH MIT ANDEREN NUKLIDEN

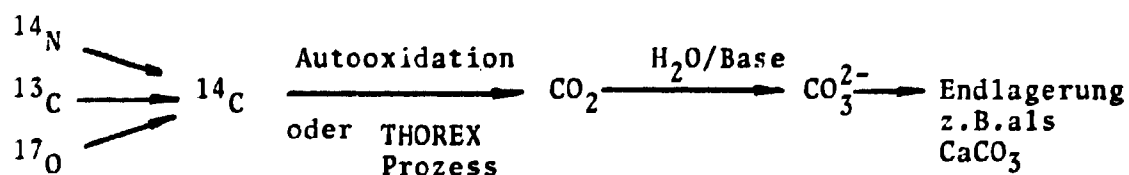
8.1 ABGABERATEN EINIGER KRITISCHER NUKLIDE ¹⁹⁾, ²⁰⁾

Bei den Atombombentests zeigte sich, das Cäsium-137 und Strontium-90 wegen ihrer langen biologischen (70 bzw. 13'000 Tage) und physikalischen (30,1 bzw. 28,5 Jahre) Halbwertszeiten in den ersten Jahrzehnten den grössten Beitrag an die Strahlenbelastung der Menschheit erbringen. In den Kernkraftwerken und Wiederaufbereitungsanlagen können diese Elemente weitgehend zurückgehalten werden. Hier treten deshalb nur Nuklide in den Vordergrund, die wegen ihrer Flüchtigkeit nicht bzw. noch nicht zurückgehalten werden. Die wichtigsten Vertreter dieser Gruppe neben C-14 sind Krypton-85 (Edelgas) und Tritium (meist in Form von Tritiumwasser). Tabelle 8 gibt einen Ueberblick über Produktions- und Abgaberaten, Halbwertszeiten und maximal erlaubte Luft- und Wasserkonzentrationen (MPC-Werte der ICRP für beruflich strahlenexponierte Personen, 168 Stundenwoche) dieser Nuklide. Die Rückhaltevermögen entsprechen denjenigen von Anlagen der jüngsten Generation.

Bei Berücksichtigung aller 3 Faktoren - Halbwertszeit, Abgabe pro Gigawattjahr elektrisch und MPC-Wert für Luft - erscheinen C-14 und Krypton-85 als kritische Nuklide der friedlichen Atomenergienutzung. Der Ausstoss beider Nuklide kann jedoch durch aufwendige Installationen in den Wiederaufbereitungsanlagen und Kernkraftwerken drastisch gesenkt werden.

9. MOEGlichkeiten DER RÜCKHALTUNG VON C-14

Wie im Falle des Kryptons fällt ein Grossteil der C-14-Aktivität in relativ konzentrierter Form in den Brennstoffstäben oder z.B. beim HTR im Graphit an. In seiner hauptsächlichsten chemischen Form als CO₂ kann C-14 billig und effizient mit basischen Lösungen aus Luft und Gasen ausgewaschen werden (1. Dissoziationskonstante: pK₁ = 6.37).



Tab. 8 : Produktion, Abgabe und Endlagerung ausgewählter Nuklide in Ci pro 1000 MW_{el} (LWR), ihre Halbwertszeiten und MPC-Werte 19) 20) 21) 22). Erläuterungen im Text.

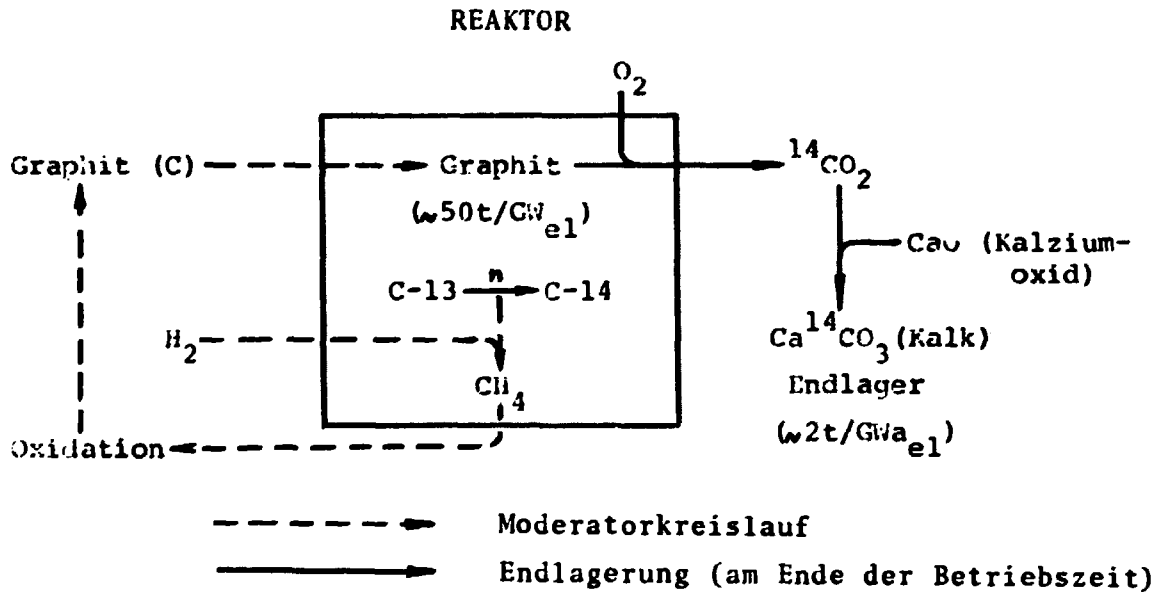
Nuklid	HWZ a				Abgabe in Oekosphäre total Luft ↕ Wasser	$\frac{MPC_{Luft}}{MPC_{Wasser}}$ (Ci/m ³)
Sr-90	28.5				0.011 ↑ 40.1 ↓ 40.1	$\frac{10^{-10}}{10^{-6}}$
Cs-137	30.1				0.017 ↑ 44 ↓ 44	$\frac{2 \cdot 10^{-8}}{2 \cdot 10^{-4}}$
C-14	5736				29 ↑ 29 ↓	$\frac{10^{-6}}{8 \cdot 10^{-3}}$
Kr-85	10.8				3.73 · 10 ⁵ ↑	$3 \cdot 10^{-5}$
H-3	12.3				20610 ↑ 3790 ↓	$\frac{2 \cdot 10^{-6}}{0.03}$

* Belastung über Nahrungskette nicht berücksichtigt

** Rückhaltung wird erprobt.

Der Einbau solcher Waschanlagen in die Wiederaufbereitungsanlagen würde beim Leichtwasserreaktor den C-14-Ausstoss um 60% von ungefähr 29 Ci/GW_{el} auf 11 Ci/GW_{el} erniedrigen (siehe Abbildung 8). Der Unterhalt und Betrieb einer solchen Anlage würde nur einen Bruchteil der Kosten für die teilweise bereits fest eingeplanten Kryptonverflüssigungsanlagen betragen.

Auch für die Hochtemperaturreaktoren existieren bereits Vorschläge, deren Verwirklichung die geschätzte Produktion von 80 - 250 Ci pro Gigawattjahr elektrisch bis auf wenige Prozente zurückhalten würden. Da eine Aufzählung der technischen Möglichkeiten den Rahmen dieser Arbeit sprengen würde, sei nur ein Beispiel aufgeführt. Huwylar und Seifritz³¹⁾ schlagen einen geschlossenen Moderatorkreislauf vor. Dabei wird der C-14-haltige Moderatorgraphit nicht wie beim THOREX-Prozess zu CO₂ verbrannt und in die Atmosphäre abgelassen, sondern mit Wasserstoff zu Methan vergast und rezykliert, wie es in folgender Abbildung dargestellt ist :



Bei einer Lebensdauer von 40 Jahren bilden sich pro Gigawatt elektrisch etwa 4'000 Ci C-14 in 50 Tonnen Graphit. Am Ende der Betriebszeit wird dieser Graphit verbrannt und das entstehende und in C-14 angereicherte CO₂ mit gelöschtem Kalk in Kalziumcarbonat (CaCO₃ bzw. Ca¹⁴CO₃) übergeführt. Pro Gigawattjahr elektrisch würden somit nur ungefähr 2 Tonnen "Moderator-Abfall" anfallen.

Mit solchen, technisch und finanziell leicht zu meisternden Methoden sollte es möglich sein, den C-14-Ausstoss pro Gigawattjahr elektrisch auf 10 Ci zu begrenzen. Im Jahre 2020 würde sich dann die zusätzliche Strahlenbelastung durch C-14 aus Kernkraftwerken noch auf ungefähr 0,1 mrem/Jahr belaufen und der globale Ausstoss von C-14 läge in der Grössenordnung der natürlichen Produktion (siehe Seite 5). Dies wären Maximalwerte unter der Bedingung, dass die sehr optimistischen Prognosen über die Entwicklung der Energieproduktion aus Atomkraftwerken von Seite 9 eintreffen werden.

10. ZUSAMMENFASSUNG

Die vorliegenden Daten über Bildungsraten und ökologisches Verhalten zeigen klar, dass auf lange Sicht Kohlenstoff-14 als eines der kritischen Nuklide der friedlichen Atomenergienutzung zu betrachten ist. Die in Atomkraftwerken gebildeten Aktivitätsmengen könnten - falls sich die ehrgeizigen Entwicklungsprognosen der Atomindustrie und die in diesem Bericht konservativ eingesetzten C-14-Ausstossraten bewahrheiten - schon um das Jahr 1990 die natürliche Produktion von C-14 durch die kosmische Strahlung erreichen und im Jahre 2010 um mehr als das Zehnfache übertreffen. Da der Austausch mit der Tiefsee, dem Hauptreservoir an austauschbarem Kohlenstoff, nur langsam erfolgt, könnte aus der Freisetzung dieser Aktivitäten schon in der 2. Hälfte des nächsten Jahrhunderts eine zusätzliche Strahlenbelastung der Menschheit von mehreren mrem/Jahr resultieren. Die technischen Verfahren zur wenigstens teilweisen Rückhaltung der C-14-Aktivitäten sollten deshalb schon heute entwickelt werden. Dies umso mehr, als davon ausgegangen werden muss, dass auch bei neueren Technologien (Fusion) die C-14-Ausgangsprodukte Kohlenstoff, Stickstoff und Sauerstoff Neutronenflüssen ausgesetzt sein werden. Eine kurze Abschätzung der Rückhaltungsmöglichkeiten zeigt, dass für Leichtwasser- und für Hochtemperaturreaktoren mit geringem technischem Aufwand der Ausstoss pro Gigawattjahr elektrisch auf 10 Ci, das heisst auf 20% des in dieser Arbeit prognostizierten Wertes beschränkt werden kann.

Globale Abschätzungen ergeben, dass wahrscheinlich bis zum Jahre 2020 das C-14/C-12-Verhältnis in der Atmosphäre wegen der gleichzeitigen Verbrennung steigender Mengen fossiler Brennstoffe nur wenig ansteigen wird. Diese Symbiose der beiden Energieträger wird jedoch nur wenige Jahrzehnte zum Tragen kommen, da 1. die Reserven an billigen fossilen Brennstoffen beschränkt sind, 2. beim Verbrennen grosse Mengen Schadstoffe in die Luft gelangen und 3. die massive Erhöhung des CO₂-Gehaltes der Luft wegen der Störung der Strahlungsbilanz der Erde irreversible Klimaveränderungen zur Folge haben könnte, und somit längerfristig Kohle, Öl und Gas weitgehend durch andere Energieträger ersetzt werden dürften.

Die Berücksichtigung der Nahrungskette als Hauptpfad der C-14-Aufnahme in den menschlichen Organismus führt zu einem gegenüber dem ICRP-Inhalationsrichtwert für Kohlendioxid 4¹/₄-mal niedrigeren Grenzwert für chronische C-14-Konzentrationen in der Luft.

ANHANG I : DER KOHLENSTOFF DER ERDE

Berechnungsgrundlagen (Mittelwerte aus 4)8)11),

Erdoberfläche in cm^2	$5,01 \cdot 10^{18}$	
Austauschender Kohlenstoff in g/cm^2	8,3	(100 %)
Tiefsee	7,8	(94 %)
Oberflächenschicht der Ozeane)	0,13	(1,5%)
Biosphäre	0,25	(3 %)
Atmosphäre	0,12	(1,5%)
Gesamtmenge des austauschenden Kohlenstoffes	$4,1 \cdot 10^{13} \text{ t}$	
Tiefsee	$3800 \cdot 10^{10} \text{ t}$	
Oberflächenschicht der Ozeane	$70 \cdot 10^{10} \text{ t}$	
Biosphäre	$120 \cdot 10^{10} \text{ t}$	
Atmosphäre	$60 \cdot 10^{10} \text{ t}$	
Bildungsrate von C-14		
(≈ Mittlere Neutronenintensität)	$2,3 \text{ Entstehungen} \cdot \text{sec}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$	
	(UNSCEAR 72: $1,81 \text{ Zerfälle} \cdot \text{sec}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$)	
Weltinventar an natürlich gebildetem C-14	$311 \cdot 10^6 \text{ Ci}$	
$\frac{2,3 \cdot 5,01 \cdot 10^{18}}{3,7 \cdot 10^{10}}$	(UNSCEAR 72: 280 MCi)	
Natürliche C-14-Produktion global	$37'600 \text{ Ci/Jahr}$	
(Inventar $\cdot \ln 2/\text{HWZ}$)		
CO_2 -Gehalt der Luft	$0,0314 \text{ Mol/\%}$	
Kohlenstoff der Luft in 1000m Höhe	$0,145 \text{ g} \cdot \text{m}^{-3}$	
(Gewicht von Luft in 1000m Höhe)	$1111,7 \text{ g} \cdot \text{m}^{-3}$	
Natürliche C-14-Aktivität	$\sim 16 \text{ dpm/g Kohlenstoff}$	
	$\sim 7 \text{ pCi/g Kohlenstoff}$	
Natürliches C-14/C-12-Verhältnis	$\sim 1,5 \cdot 10^{-12}$	

ANHANG II :

A) STRAHLENSCHUTZRICHTWERTE FÜR C-14 (ICRP 2¹¹⁾)

TAB. 10 : Maximal zulässige Belastungen des Körpers und maximal zulässige Konzentration der Radionuklide in Luft und Wasser für berufliche Strahlenbelastung

Radionuklid and type of decay	Organ of reference ^a (critical organ bold face)	Maximum permissible burden in total body q(μC)	Maximum permissible concentrations			
			For 40 hr week		For 168 hr week	
			(MPC) _a (μC/cm ³)	(MPC) _b (μC/cm ³)	(MPC) _a (μC/cm ³)	(MPC) _b (μC/cm ³)
³ H ² (HTO or H ₂ O) β ⁻ (sol.)	Body tissue	10 ²	0.1	5 × 10 ⁻⁶	0.03	2 × 10 ⁻⁶
	Total body	2 × 10 ²	0.2	8 × 10 ⁻⁶	0.05	3 × 10 ⁻⁶
(H ₂) (submersion)	Skin			2 × 10 ⁻³		4 × 10 ⁻³
⁹⁰ Be ²⁺ (sol.) α, γ	GI (LLI)		0.05	10 ⁻⁵	0.02	4 × 10 ⁻⁶
	Total body	600	6	6 × 10 ⁻⁶	2	2 × 10 ⁻⁶
	Kidney	800	9	8 × 10 ⁻⁶	3	3 × 10 ⁻⁶
	Liver	800	9	8 × 10 ⁻⁶	3	3 × 10 ⁻⁶
	Bone	2 × 10 ³	20	2 × 10 ⁻⁵	7	6 × 10 ⁻⁶
	Spleen	4 × 10 ²	50	4 × 10 ⁻⁵	20	2 × 10 ⁻⁵
	(insol.)	Lung		0.05	10 ⁻⁶	0.02
GI (LLI)						3 × 10 ⁻⁶
¹⁴ C ¹⁴ (CO ₂) (sol.) β ⁻	Fat	300	0.02	4 × 10 ⁻⁶	8 × 10 ⁻³	10 ⁻⁶
	Total body	400	0.03	5 × 10 ⁻⁶	0.01	2 × 10 ⁻⁶
	Bone	400	0.04	6 × 10 ⁻⁶	0.01	2 × 10 ⁻⁶
(submersion)	Total body			5 × 10 ⁻⁵		10 ⁻⁵

ANHANG II :

TAB. 11 : Effektive Energien

Z	Radionuclide (T , in days)	Organ of reference*	$\Sigma EF(RBE)_n$ (E in MeV)
1	H^3 (HTO or H_2O) (4.5×10^3)	Total body	0.010
		Submersion	0.010
		Body tissue	0.010
4	Bc^7 (53.6)	Total body	0.035
		Lung (insol.)	0.016
		GI (S)	0.016
		GI (SI)	0.035
		GI (LI)	0.0085
		Kidney	0.012
		Liver	0.016
		Bone	0.0085
		Spleen	0.012
6	C^{14} (CO_2) (2.0×10^4)	Total body	0.054
		GI (S)	0.054
		GI (SI)	0.054
		GI (LI)	0.054
		Submersion	0.054
		Fat	0.054
		Bone	0.27

ANHANG II :

TAB. 12 : Biologische und zugehörige physikalische Konstanten

Chem. ref. Z	Element and radio-nuclide	Average daily ingestion I (g/day)	Organ of reference, mass (g) effective radius (cm)	Average concentration, C (g/g wet tissue)	Half-life (days)			Fraction from $4;3$ tract to blood f_1	Fraction in organ of reference of that in total body f_2		Fraction from blood to organ of reference f_3	Fraction reaching organ of reference												
					Physical T_p	Bio-logical T_b	Effective T		Element	Radio-nuclide		By ingestion f_0	By inhalation f_0											
														eq. 44, 45	eq. 49	eq. 41, 42	eq. 47	eq. 46						
	B		Liver 1.7×10^3 g 10 cm	$< 1.4 \times 10^{-7}$ (Ti-1 through Ti-7)	0.5			0.13 (Ti-1 through Ti-7)		0.13 (same as f_1)	0.12	0.09												
			Brain 1.5×10^3 g 15 cm	$< 1.4 \times 10^{-7}$ (Ti-1 through Ti-7)	0.5			0.07 (Ti-1 through Ti-7)		0.07 (same as f_1)	0.06	0.05												
			Pancreas 70 g 5 cm	$< 1.1 \times 10^{-7}$ (Ti-1 through Ti-7)	0.5			0.03 (Ti-1 through Ti-7)		0.03 (same as f_1)	0.03	0.02												
6	C	300 (Hw-1)	Total body 7×10^3 g 20 cm	0.18 (Ch-1)		10 (Na-2)		1.0 (Hw-1)	1.0 (D)		1.0 (D)	1.0	0.75											
	C ¹⁰														2×10^6	10		1.0 (D)						
	C													Fat 10 ³ g	0.75 (Ev-1)		12 (Su-3)			0.6 (Hw-1)		0.5 (eq. 47)	0.5 (Hw-1 G)	0.36
	C ¹⁰															2×10^6	12			0.6				
	C		Bone 7×10^3 g 5 cm	0.13 (Ev-1)		40 (Sr-1) Br-2 Dh-1)		0.1 (Hw-1 Ev-1)		0.025 (Sh-2)	0.025	0.02												
	C ¹⁰				2×10^6	40			0.1															
7	N	16 (Ev-1)	Total body 7×10^3 g 20 cm	0.03 (Ch-1)		80 (eq. 48)		1.0 (Sp-1 Ev-1)	1.0 (D)		1.0 (D)	1.0	0.75											

ANHANG II :

B) KOHLENSTOFFGEHALT EINIGER ORGANE UND GEWEBE DES "REFERENCE MAN" ¹²⁾

ORGAN	G E H A L T	
	g	%
Ganzkörper (Total Body)	16'000	23
Fettgewebe (Adipose Tissue)	9'600	64
Leber (Liver)	260	14
Skelett (Skeleton)	2'500	25
Knochenmark (Red+Yellow Marrow)	1'570	52
Hoden (DNS)	3,1	9 (37)

C) KOHLENSTOFFBILANZ DES "REFERENCE MAN" ¹²⁾ (g/Tag)

AUFNAHME	feste und flüssige Nahrung Inhalation	300 vernachlässigbar
VERLUSTE	Exhalation Faeces Urin Andere (Schweiss, Schleim etc)	270 7 5 18

LITERATURVERZEICHNIS

- 1 **MAGNO P.J. ET AL:** A consideration of the significance of carbon-14 discharges from the nuclear power industry, 13th AEC air cleaning conference (1975)

- 2 **MARTIN A.**
 FRY T.M. : Population dose commitments from releases of tritium, carbon-14 and krypton-85, Society for Radiological Protection, Aviemore (1974)

- 3 **OESCHGER H. ET AL:** A box diffusion model to study the carbon dioxide exchange in nature, *Tellus* 27, 168 (1975)

- 4 **OESCHGER H.**
 SIGGENTHALER U. : Klimaveränderungen durch Kohlendioxid, *NZZ-Forschungsbeilage* , 23.4.1975, p.53

- 5 **KUNZ C.O. ET AL :** C-14 gaseous effluent from pressurized water reactors, Health Physics Society Symposium on population exposures, Knoxville, (1974)

- 6 **KUNZ C.O. ET AL :** C-14 gaseous effluents from boiling water reactors, American Nuclear Society, Annual Meeting in New Orleans (1975)

- 7 **MARTIN A.**
 APSIMON H.: Population Dose Evaluation and Standards for Man and his Environment, IAEA-SM-1899 Wien (1974)

- 8 **RUBLEVSKIY V.P.**
 ET AL : "Atomic electric power stations as sources of carbon-14 discharge". Third International Congress of the IRPA, Washington D.C. (1973)

LITERATURVERZEICHNIS

- 9 MORGAN K.Z.
TURNER J.E. : Principles of Radiation Protection
John Wiley a.Sons Inc., p.36, New
York (1967)
- 10 BURKART W. : Plutonium - Eine Einführung für den
Strahlenschutz, AN-SU-326, Eidg.In-
stitut für Reaktorforschung, CH-
5303 Würenlingen, (1975)
- 11 ICRP 2 : Report of Committee II on Permissib-
le Dose for Internal Radiation, Per-
gamon Press (1959)
- 12 ICRP 23 : Report of the Task Group on Refe-
rence Man, Pergamon Press Oxford
(1975)
- 14 BONKA H. ET AL : Umweltbelastung durch Radiokohlen-
stoff aus kerntechnischen Anlagen,
Reaktortagung, Berlin (April 74)
- 15 STUMM
MORGAN K.Z. : Aquatic Chemistry, Wiley Intersci-
ence, New York (1970)
- 16 LIBBY W.F. : Altersbestimmung mit der C-14-Metho-
de B.1 Hochschultaschenbücher 403/
403a Mannheim (1969)
- 17 ZANDER I. : Nuclear Explosions 1945 - 1972, Ba-
sic Data Raport F OA4 A 4505 - A 1
(1973)
- 18 UNITED NATIONS
SCIENTIFIC COM-
MITTEE ON EFFECTS
OF ATOMIC RADIA-
TIONS "Ionizing Radiations Level, and
Effects" Vol. 1, paragraph 67, Uni-
ted Nations, New York (1972)

LITERATURVERZEICHNIS

- 19 **SCHIESSER P. :** Erzeugung und Freisetzung von Sr-89, Sr-90, Ru-105, Ru-106, Cs-134, Cs-135, Ce-141 und Ce-144 durch Kernreaktoren und NAA und die voraussichtliche radioaktive Belastung bis zum Jahre 2000 (KFK-2153, Karlsruhe (1975)).
- 20 **ASK** Mündliche Mitteilungen, ASK, CH-5303 Kürenlingen
- 21 **DEJONGHE P.:** Engineering and Technology Aspects of the Development and Production of Nuclear Power with the Safety of Men and his Environment in Mind (WHO/CP/CEP 804 (1) II Brüssel 1975)
- 22 **SCHUBERT J.:** The Radiochemical and Toxicological Aspects of the Development and Production of Nuclear Power and their Effects of Human Health, WHO/CP/CEP 804(1)/10 Brüssel (1975)
- 23 **OSCARSON E.C.**
ET AL : Considerations Regarding Timing of Krypton-85 Control Implementation Presented at the International Symposium on Radiation Protection, Aviemore, Scotland, June (1974)
- 24 **HOFMANN P.L.:** U.S. Civilian Nuclear Power Cost-Benefit Analysis, Fourth United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, Switzerland, A/CONF-49/p/072, September (1971)
- 25 **U.S.ATOMIC**
ENERGY COMMISSION "Nuclear Power 1973 - 2000", "WASH 1139 (1972), U.S. Government, Printing Office Washington D.C., December 1972

LITERATURVERZEICHNIS :

- 26 UN SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE EFFECTS OF ATOMIC RADIATIONS UNSCEAR (1966)
- 27 SAUTER E.: Grundlagen des Strahlenschutzes, SIEMENS, Berlin-München (1971)
- 28 BURKART W.: AN-SU-336 : Stellt Iod-129 eine potentielle Gefährdung der Biosphäre dar ?
- 29 UN SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE EFFECTS OF ATOMIC RADIATIONS UNSCEAR (1972)
"Ionizing Radiation, Levels and Effects"
- 30 POCHIN E.E. : Estimated Population Exposure from Nuclear Power Production and Other Radiation Sources, NEA 1976.
- 31 HUWYLER S., SEIFRITZ W. : A symbiotic Nuclear Energy Park as the Ultimate Primary Energy Source for Switzerland - Genesis and Rationale, EIR-Bericht Nr. 291, Würenlingen (1976)
- 32 STEPHAUS F. : A Nonlinear Eight Level Tandem Model to Calculate the Future CO₂ and C-14-Burdens to the Atmosphere, International Institute for Applied Systems Analysis, Laxenburg, Austria (1976)