

## **Tritium**

Eine Übersicht für Mitglieder der Begleitgruppe zum Rückbau BER II

G. Buchert, HZB, GF-SZ 30.09.2019





Tritium und BER II sind ein wichtiges
Thema für einige Mitglieder der
Begleitgruppe:

- Fragen zum Scoping-Bericht
- Diskussion im Dialogprozess.

### Inhalt



- Was ist Tritium und wie entsteht es im BER II?
- Wieviel Tritium ist im Beckenwasser des BER II enthalten (Aktivität, Menge) und kann man es daraus entfernen?
- Wieviel Tritium wird im Normal- und Nachbetrieb des BER II über den Kamin abgeleitet?
- Wie messen wir die einzelnen Bestandteile der Abluft?
- Wie weisen wir die Einhaltung der Genehmigungswerte nach?
- Welche Strahlendosen werden durch die Ableitungen verursacht?
- Kann sich Tritium in der Anlage anreichern?
- Anmerkungen zu den Darstellungen im Strahlentelex vom 5. Juli 2018.





### Was ist Tritium und wie wird es gebildet?

- "Normaler" Wasserstoff besitzt in seinem Atomkern nur ein Proton.
- "Schwerer Wasserstoff" Deuterium chemisches Symbol <sup>2</sup>H<sub>1</sub> oder D. Dessen Atomkern besteht aus einem Proton und einem Neutron und ist stabil. Deuterium ist im natürlichen Wasserstoff zu 0,01% enthalten.
- "Überschwerer Wasserstoff" Tritium chemisches Symbol <sup>3</sup>H<sub>1</sub> oder T. Der Atomkern besteht aus einem Proton und zwei Neutronen. Tritium ist radioaktiv; Halbwertszeit 12,3 Jahre; zerfällt unter sog. β<sup>-</sup>-Zerfall und Emission eines Betateilchens (Elektron). Dieses Elektron besitzt eine Maximalenergie von ca. 18 keV. Diese Energie ist im Vergleich zur Betaenergie anderer Nuklide sehr niedrig. Darum wird Tritium als "weicher" Betastrahler bezeichnet.





### Im BER II wird Tritium durch folgende Prozesse gebildet:

- Neutroneneinfang im schweren Wasserstoff des Beckenwassers.
- Neutroneneinfang im Lithium der Aluminium-Kerneinbauten und Freisetzung aus dem Aluminium.
- Neutronenreaktionen an Berylliumkernen und Freisetzung aus dem Beryllium-Reflektor.
- Bildung durch ternäre Spaltung von U-235 und Freisetzung aus der Brennstoffmatrix.





#### Wieviel Tritium ist im Beckenwasser des BER II enthalten?

- Messung der Aktivitätskonzentration erfolgt durch Flüssigszintillationsspektroskopie.
- Messung der Strahlenmessstelle Berlin in 2008: Aktivitätskonzentration: 9,18 E+08 Bg/m³ (918.000.000 Bg/m³).
- Aktuelle Messungen, durchgeführt im Messlabor der ZRA Juni/Juli 2019:

Aktivitätskonzentration im Umsetzbecken:

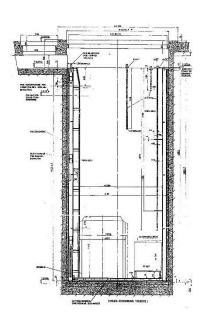
2,37 E+08 Bq/m<sup>3</sup>

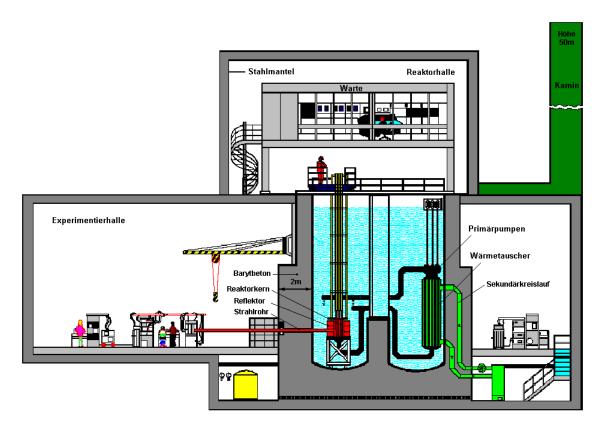
Aktivitätskonzentration Betriebsbecken (Primärkreislauf): 7,43 E+08 Bq/m³

Aktivitätskonzentration Betriebsbecken (Oberfläche): 7,38 E+08 Bq/m³

### Wieviel Tritium ist im Beckenwasser enthalten?







Schnitt durch die Reaktoranlage und das Betriebsbecken



Umsetzbecken im hinteren Teil der Experimentierhalle







### Welche Menge (Masse) Tritium ist im Beckenwasser des BER II enthalten?

- Aktivitätskonzentration Tritium im Betriebsbecken:  $C_A = 7.43 \text{ E} + 08 \text{ Bq/m}^3$
- Inhalt des Betriebsbeckens: V = 200 m<sup>3</sup>
- Aktivität Tritium im Betriebsbecken:  $A = C_A \cdot V = 1.5 E + 11 Bq$
- Die Einheit der Aktivität ist das Becquerel, wobei 1 Bq = 1 Zerfall pro Sekunde ist; Schreibweise:  $\left[\frac{1}{s}\right]$  oder  $\left[s^{-1}\right]$

#### Wieviel Tritium ist im Beckenwasser enthalten?





- Die vorhandene Menge (Teilchenzahl N) einer Substanz kann aus der Aktivität berechnet werden: Teilchenzahl N:  $N = \frac{A}{\lambda}$
- Zerfallskonstante  $\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}}$
- Die Halbwertszeit  $T_{1/2}$  des Tritiums beträgt ca. 12,3 Jahre, das sind umgerechnet 388.000.000 s = 3,88 E+08 s
- Daraus ergibt sich:  $\lambda = 1.8 \text{ E} 09 [s^{-1}]$
- Die Teilchenzahl beträgt somit

$$N = \frac{1.5 E + 11 [s^{-1}]}{1.8 E - 09 [s^{-1}]} = 8.3 E + 19$$
 Atome Tritium im Reaktorbecken.

#### Wieviel Tritium ist im Beckenwasser enthalten?



• Die Masse m einer Substanz verhält sich zu ihrer Molmasse M wie die Teilchenzahl N zur Teilchenzahl in einem Mol dieser Substanz, der Avogadro-Konstanten  $N_A$ .

Also: 
$$\frac{m}{M} = \frac{N}{N_A}$$

• Berechnen der Masse:  $m = \frac{M \cdot N}{N_A}$  mit

 $M = Molmasse ^3H = 3 g/mol$ ,

N = Teilchenzahl = 8,3 E+19,

 $N_A$  = Avogadro-Konstante = 6,022 E+23 mol<sup>-1</sup>

$$m = \frac{3 g \cdot mol^{-1} \cdot 8,3 E + 19}{6,022 E + 23 mol^{-1}} = 4 E - 4 g = 0,0004 g = 0,4 mg Tritium im Reaktorbecken.$$

• Unter der Annahme, dass die überwiegende Aktivität des Tritiums chemisch als HTO vorliegt, ergibt sich mit  $M = 20g \cdot mol^{-1}$  (H=1, T=3, O=16)

 $m = 2.6 mg = 2.6 \mu l$  HTO in 200 m<sup>3</sup> Beckenwasser.





#### Lässt sich Tritium aus dem Beckenwasser entfernen?

- Die tritiumhaltigen Moleküle HTO liegen in einer Verdünnung von ca. 1: 100.000.000.000 (1: 1 E+11) im Beckenwasser vor.
- Die chemischen Eigenschaften der tritiumhaltigen und der nicht tritiumhaltigen Moleküle sind identisch, die physikalischen Eigenschaften (Schmelz- und Siedepunkt, Dichte...) sehr ähnlich.
- Mit keiner physikalischen oder chemischen Methode ist ein Abtrennen oder Entfernen von HTO aus dem Beckenwasser machbar.





### Wieviel Tritium wird im Normalbetrieb aus dem BER II abgeleitet?

### 1. Luftpfad

- Der einzige Pfad, über den Tritium aus der Anlage über die Luft abgeleitet wird, ist über den Fortluftkamin. Um eine nicht überwachte Ableitung auf anderem Weg sicher auszuschließen, erfolgt in den Räumen des Reaktorgebäudes eine permanente Unterdruckhaltung und gerichtete Luftführung.
- Die mit der Fortluft abgeleiteten radioaktiven Stoffe werden durch die Strahlenschutzinstrumentierung der Fortluftüberwachung nach den Vorschriften der REI und der KTA-Regel 1507 gemessen, bilanziert und die Ergebnisse in regelmäßigen Berichten an die Aufsichts- und Genehmigungsbehörde (SenUVK) berichtet.







- In den zurückliegenden Betriebsjahren wurden jeweils zwischen
   ca. 10 50 GBq Tritium über den Kamin abgeleitet. Die Werte sind stark abhängig von den jeweiligen Betriebs- und Wartungszeiten im betrachteten Jahr.
- Für die Ableitung von Tritium und C-14 wurde in der Betriebsgenehmigung des BER II keine gesonderte Reglementierung eingeführt, da diese nach Ansicht des Gutachters durch betriebliche Maßnahmen nicht beeinflussbar ist.
- Gemessen an der radioökologischen Relevanz dieser beiden Nuklide wurde keine Notwendigkeit gesehen, einen Ableitungsgrenzwert festzulegen. Die Überwachung der Ableitungen dieser Nuklide ist jedoch sichergestellt.







- Die im Nachbetrieb zu erwartenden abgeleiteten Mengen werden erheblich geringer sein aufgrund
  - des Endes der Nachbildung,
  - des Zerfalls des Tritiums und
  - der Abkühlung des Beckenwassers





### 2. Wasserpfad

- Über den Abwasserpfad werden ebenfalls geringe Mengen tritiumhaltige Abwässer an die Landessammelstelle abgegeben. Diese Abwässer entstehen z.B. bei Dekontaminationsarbeiten an Werkzeugen oder Anlagenteilen.
- Kühlwasser aus dem Reaktorbecken wird im Normalbetrieb nicht an die Landessammelstelle abgegeben. Dieses Wasser wird permanent über Reinigungskreisläufe gereinigt und Verluste durch Verdunstung werden durch Nachspeisen mit vollentsalztem Wasser aufgefüllt.





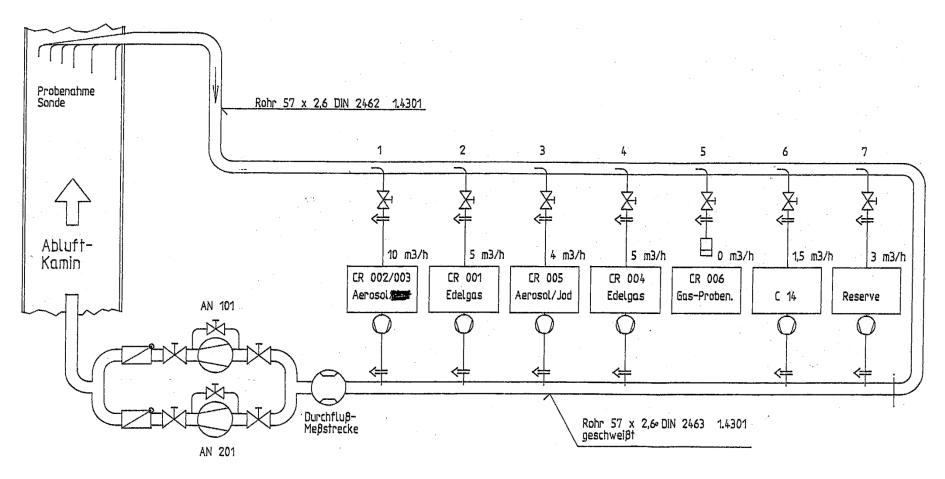
### Strahlenschutzinstrumentierung der Fortluft

- Edelgasaktivität
- Aerosolaktivität Alpha+Beta, sowie künstlich und langlebig (> 8 Tage)
- Aerosol- und Jodprobensammler zur Aerosol- und Jodbilanzierung
- H-3/C-14-Sammler
- Jodmonitor zur Direktmessung der Jodaktivität



### Fortluft - Probennahmeeinrichtung



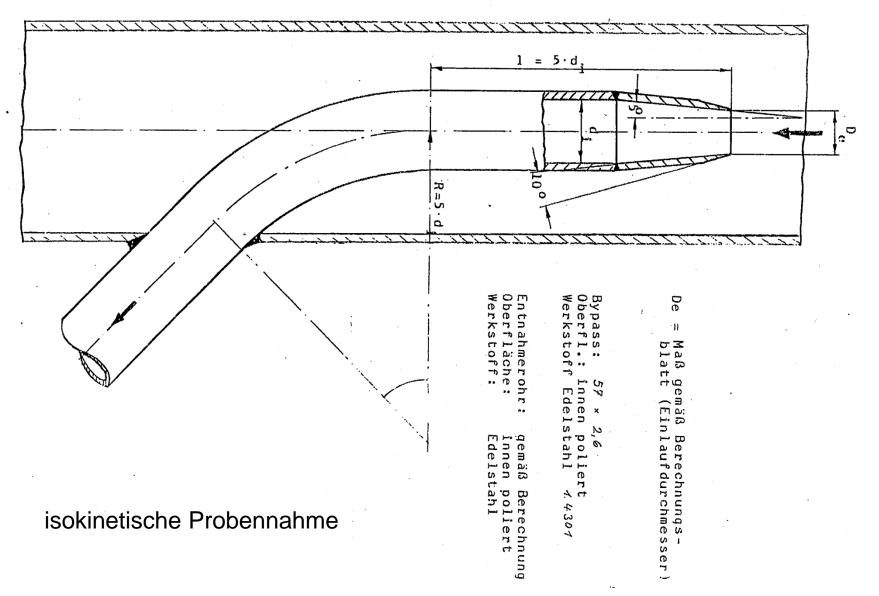


alle Verbindungen von und zu Meßgeräten:

PTFE-Schlauch 5/8" dl = 15,86 mm mit einfacher Edelstahlumspinnung









HZB Helmholtz
Zentrum Berlin

Standort: UKC 0511

Bypass-Pumpen,

Durchsatz ca. 40 m<sup>3</sup>/h

















KLK03 CR005 (Jodsammler) CR008 (Jodmonitor) CR007 (H-3, C-14 Sammler)









Welche Strahlendosen werden durch die Ableitungen mit der Fortluft aus dem BER II verursacht?

- Die von den mit der Fortluft abgeleiteten Nukliden verursachte Dosis für die Bevölkerung ist nicht direkt messbar, sondern wird aus den Messergebnissen der Fortluftüberwachung nach den Vorgaben der entsprechenden Allgemeinen Verwaltungsvorschrift berechnet.
- Betrachtet wird hierbei die über die Jahres-Wetterstatistik ermittelte ungünstigste Einwirkungsstelle außerhalb des Betriebsgeländes.





Tabelle: Effektive Dosis für die Bevölkerung an der ungünstigsten Einwirkungsstelle in [µSv] durch die Tritiumableitung aus dem BER II in 2018 Quelle: Jahresbericht gemäß REI an SenUVK

Nuklid	< 1 Jahr	1-2 Jahre	2-7 Jahre	7-12 Jahre	12-17 Jahre	> 17 Jahre
H-3 als HTO	4,02 E-3	2,95 E-3	2,50 E-3	2,13 E-3	1,76 E-3	1,59 E-3

In der Summe über alle Nuklide (Edelgase, Jod, Aerosole) errechnet sich eine effektive Dosis von ca.  $0,1~\mu Sv$ .

### Zum Vergleich:

Die mit Festkörperdosimetern im Jahr 2018 ermittelte Jahresdosis am Zaun durch die natürliche Umgebungsstrahlung betrug 640 µSv.





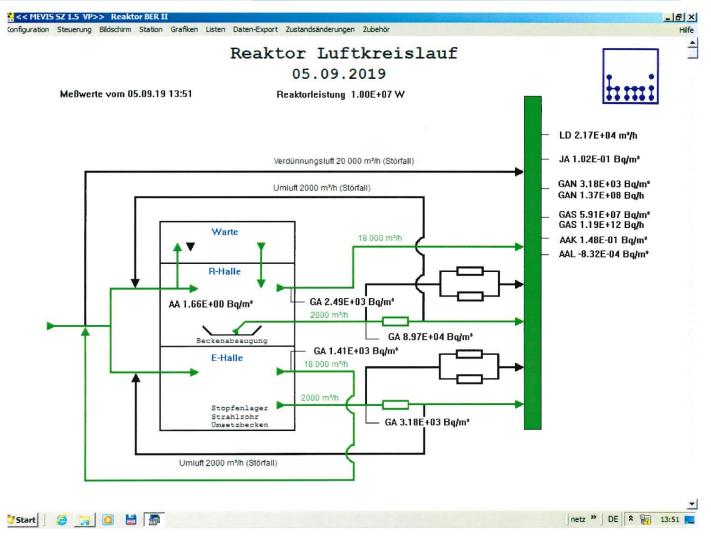
### Kann sich Tritium in der Anlage anreichern?

- Tritium wird ausschließlich im Beckenwasser durch Neutronenaktivierung gebildet. Wichtigstes Reaktionsprodukt ist HTO.
- Durch das unvermeidbare Verdampfen von Beckenwasser geht HTO mit in die Dampfphase über, wird größtenteils direkt über dem Becken abgesaugt und über den Kamin abgeleitet.
- Es gibt keinen Grund zur Annahme, Tritium könnte sich an irgendeiner
   Stelle in der Anlage anreichern.
- Der maximale Aufpunkt der über den Kamin abgegebenen Fortluft liegt ca. 200 m von der Reaktoranlage entfernt.



### Kann sich Tritium in der Anlage anreichern?





Schema der Luftkreisläufe am BER II; Abbildung aus dem MEVIS-Überwachungssystem der Strahlenschutzinstrumentierung







Abschnitt: Tritium aus dem Forschungsreaktor BER II in Berlin-Wannsee

#### Strahlentelex

#### Kommentar

Wegen der Verdunstung aus dem offenen Reaktorbecken des Forschungsreaktors BER II in Berlin-Wannsee wird täglich etwa 1 Tonne Wasserdampf mit der Abluft abgegeben. Dies entspricht 1 Milliarde Becquerel (1 Gigabecquerel= 1 GBq) Tritium pro Tag.

Die Freigrenze zur uneingeschränkten Freigabe von flüssigen und festen Stoffen soll laut dem am 30. Mai 2018 veröffentlichten Referentenentwurf zur weiteren Modernisierung des Strahlenschutzrechts von 1.000 Bq/g auf 100 Bq/g gesenkt werden.

- Der Leser schließt daraus auf eine jährliche Ableitung von 365 GBq.
- Die tatsächliche Ableitung beträgt (s. Jahresberichte an die Aufsichtsbehörde) ca. 10 – 50 GBq pro Jahr.
- Es ist korrekt, dass dieser Freigabewert gesenkt wurde, aber hier geht es um Ableitung, nicht um Freigabe.
- Die Freigrenze für den Umgang und alle anderen Grenzwerte für Tritium sind in der Novelle der Strahlenschutzverordnung, die am 31.12.2018 in Kraft getreten ist, unverändert gegenüber der alten Strahlenschutzverordnung.







Abschnitt: Freisetzungen im Restbetrieb

#### Strahlentelex

#### Kommentar

Im sogenannten Restbetrieb, das heißt für die mindestens 10 Jahre dauernde Phase nach der Abschaltung des BER II...will das HZB weiterhin über den Fortluftkamin freisetzen dürfen:

Radioaktive Gase: 1 E+13 Bq/Jahr Radioaktive Aerosole: 1 E+8 Bq/Jahr

Jod-131:

in der Weidezeit 7,4 E+5 Bq/Woche außerhalb der Weidezeit 1,5 E+6 Bq/Woche

 Die genehmigten Ableitungswerte aus der Betriebsgenehmigung wurden in den Grundantrag übernommen.

- Diese wurden stets nur zu wenigen Prozent ausgeschöpft, wie im Strahlentelex korrekt zitiert.
- Selbst das Ausschöpfen der Grenzwerte hätte zu Dosen von max.
   1 µSv am max. Aufpunkt geführt.
- Niedrigere Werte zu beantragen war also nicht erforderlich.
- Die tatsächlichen Ableitungswerte werden in der Nachbetriebsphase, insbesondere für Edelgase und Jod nochmals erheblich niedriger ausfallen. Nachträgliche Änderungen wurden bereits intern diskutiert.







Abschnitt: Tritium im Atommüll

#### Strahlentelex

Tritium (H-3) diffundiert wie gewöhnlicher Wasserstoff auch in (Beton-)Wände und läßt sich mit keinem praktikablen technischen Verfahren zurückhalten. Die vorstehend genannten Freigabewerte für Tritium sind so exorbitant hoch gewählt, dass gar nicht versucht wird, die tatsächlichen Werte im Beton der Anlagen und der umliegenden Wohnbebauung zu messen...

#### Kommentar

- Die genehmigten Ableitungswerte aus der Betriebsgenehmigung gelten für die Ableitung mit der Fortluft über den Kamin, es sind keine Freigabewerte.
- Es handelt sich bei der Ableitung um Tritium in Form von HTO, nicht um elementares Tritium.
- Selbstverständlich wird beim Rückbau des Betons auch die Tritiumaktivität bestimmt und im Falle einer möglichen Freigabe alle gesetzlich vorgegebenen Grenzwerte eingehalten.
- Die zuständigen Behörden können davon ausgehen, dass bei Einhaltung dieser Werte das 10 µSv-Konzept eingehalten wird.





Abschnitt: Nachweis von Tritium

#### Strahlentelex

...Es kann jedoch mit dem allerdings relativ unempfindlichen Verfahren der Flüssig- oder Liquid-Szintillations-Spektroskopie nachgewiesen werden. Die Nachweisgrenze in Wasser liegt dabei um 100 Becquerel Tritium pro Liter...

#### Kommentar

- Zum Umweltmessprogramm des BER II gehört die quartalsweise Entnahme einer Grundwasserprobe auf dem Gelände des HZB.
- Diese Proben werden beim BfS auf Tritium untersucht. Die Messergebnisse liegen stets unterhalb der Nachweisgrenze, die vom BfS mit 3 Bq Tritium pro Liter angegeben wird.
- Die AVV-IMIS schreibt für die Messstellen des Bundes und der Länder eine Nachweisgrenze von 10 Bq pro Liter vor.







Abschnitt: Herkunft von Tritium

#### Strahlentelex

#### Kommentar

...Tritium entsteht jedoch auch bei jeder Atomexplosion und in jedem Atomreaktor. Es ist das mit Abstand häufigste Spaltprodukt....

- Bei der Spaltung entstehen in den allermeisten Fällen zwei Spaltprodukte, die in etwa im Massenverhältnis 2:3 gebildet werden (z.B. 95:138 + 2 Neutronen).
- Nur in sehr seltenen Fällen findet die sog. ternäre Spaltung statt. Dabei entsteht neben den beiden großen Bruchstücken noch ein weiteres, leichtes, wie z.B. Tritium.
- ...Im Reaktor befindet sich Tritium teils als Zirkonium-Hydrid in den Brennstabhüllen, teils eingeschlossen als Gas...
- Die Brennelemente des BER II enthalten kein Zirkonium-Hydrid. Der Brennstoff ist zwischen Platten aus Aluminium hermetisch dicht eingewalzt.





### EU-Studie "Radiation Protection 146" von 2007

### Radioaktive Zusätze und Verwendung in Verbraucherprodukten

- Ionisationsrauchmelder
- Radiolumineszente Produkte (Uhren, Kompasse, Taschenlampen, Schlüsselringe, Angelposen, Waffenvisiere, Leuchtfarbe für Schilder, gasgefüllte Leuchten)
- Starter f

  ür Fluoreszenzleuchten
- Elektronikprodukte (z.B. Bauteile zum Überspannungsschutz)
- Antistatikprodukte
- Blitzableiter
- thoriumhaltige Gasglühstrümpfe
- thorierte optische Linsen
- thorierte Schweißelektroden
- Gläser, Geschirr, Keramik
- uranhaltiger Zahnersatz
- aktivierte Edelsteine
- Produkte aus früheren Anwendungen radioaktiver Zusatzstoffe (Radontrinkbecher, Radonheilbäder, radiumhaltige Leuchtziffern in Uhren, radioaktive Schokolade, radioaktive Zahncreme, ...)





- Viele dieser Anwendungen bzw. Zusätze in Konsumgütern zählen seit einer Überarbeitung der Strahlenschutzverordnung 2011 gemäß
   § 4 Abs. 3 zu den sogenannten nicht gerechtfertigten Tätigkeiten, die in Anlage XVI explizit gelistet wurden.
- In der novellierten Fassung der Strahlenschutzverordnung sind die nicht gerechtfertigten Tätigkeiten in § 2 genannt und in der Anlage 1 gelistet.
- Der Grundsatz der Rechtfertigung und des Verbots von T\u00e4tigkeiten leitet sich aus der Richtlinie 2013/59 Euratom, der sog. EU-Grundnormen-Richtlinie ab. Dort findet er sich in Artikel 5 sowie in Kapitel V, Abschnitt I, dort in den Artikeln 19 21 i.V.m. Anhang IV. Diese Richtlinie ist die Grundlage f\u00fcr das Strahlenschutzgesetz und die Novelle der Strahlenschutzverordnung.



# Vielen Dank!