

KfK 3013
Dezember 1980

**Berechnungen und
Sensitivitätsbetrachtungen
zur Aktivitätsfreisetzung
aus einem ersoffenen Endlager
für radioaktive Abfälle
anhand eines einfachen
Störfallmodelles**

B. Kienzler, R. Köster, E. Korthaus
Institut für Nukleare Entsorgungstechnik

Kernforschungszentrum Karlsruhe

K E R N F O R S C H U N G S Z E N T R U M K A R L S R U H E

Institut für Nukleare Entsorgungstechnik

KfK 3013

Berechnungen und Sensitivitätsbetrachtungen zur Aktivitätsfreisetzung aus einem ersoffenen Endlager für radioaktive Abfälle anhand eines einfachen Störfallmodelles

von

B. Kienzler, R. Köster, E. Korthaus

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

Zusammenfassung

Unter der Annahme eines Störfalls, der zum Vollaufen eines Endlagers für radioaktive Abfälle zur Entsorgung einer 1400 jato Wiederaufarbeitungsanlage während der Betriebsphase führt, wird versucht, sensitive Parameter für die Radionuklidfreisetzung in eine grundwasserführende Schicht aufzuzeigen. Hierzu wird die Freisetzung von einigen ausgewählten Radionukliden aus verschiedenen Abfallprodukten mittels mehrerer Freisetzungsmodelle untersucht. Es zeigt sich, daß die mittelaktiven Abfälle bezüglich der Radionuklidfreisetzung in die Lauge gegenüber dem hochaktiven Abfall nicht vernachlässigbar sind.

Geht man von einer schnellen und homogenen Verteilung der ausgelaugten Radionuklide in der Grubenlauge und ihrer Freisetzung in eine grundwasserführende Schicht durch Konvergenz des Endlagerbergwerks aus, läßt sich mit numerisch integrierten Lösungen der Dispersionsgleichung die Ausbreitung der kontaminierten Salzlauge berechnen. Unter den hier gewählten Annahmen bleiben die resultierenden Strontium-90 und Cäsium-137-Konzentrationen bereits in Entfernungen über 500 m vom Austrittsort der Lauge in diese Schicht unter Konzentrationswerten, die, um zu einer Vergleichsbasis zu gelangen, aus der Strahlenschutzverordnung für Trinkwasser abgeleitet wurden. Dies gilt auch für Plutonium bei Verwendung eines Verteilungskoeffizienten über $10^3 \text{ cm}^3 \text{ g}^{-1}$. Für die langlebigen Radionuklide mit sehr geringen Verteilungskoeffizienten wie Technetium oder Jod ergibt sich dagegen, daß die Konzentration erst in ca. 1 km von dem vollgelaufenen Bergwerk im Bereich der Vergleichswerte liegen.

Die erzielten Ergebnisse hängen naturgemäß sowohl absolut als auch relativ zueinander davon ab, welche Modellannahmen angewandt wurden. So führt z.B. die Berücksichtigung der Verzögerung der Verteilung der ausgelaugten Radionuklide durch Puffer-, Versatz- und Verfüllmaterialien zu deutlich verminderten Konzentrationen in der grundwasserführenden Schicht.

Der für die hier durchgeführten Untersuchungen gewählte Ansatz sollte daher durch eine genauere Modellierung von Teilen des gesamten Transportprozesses der Radionuklide aus den Abfällen durch das Grubengebäude bis ins Grundwasser vervollständigt werden. Dadurch wird es möglich sein, zu belastbaren Aussagen über die Nuklidfreisetzung aus einem Endlager beim Störfall zu gelangen, aus denen dann z.B. auch Mindestanforderungen an die Qualität der Abfallprodukte abgeleitet werden können.

Calculations and Considerations of Sensitivity by an Accident Model Related to Activity Release from a Drowned Repository for Radioactive Waste

Abstract

Assuming an accidental drowning of a nuclear waste repository in a salt dome during the period of operation it is attempted to propose sensitive parameters for the release of radionuclides in an aquifer. For this purpose, leaching of some radionuclides out of different waste products is calculated. It is shown that the release of nuclides from MAW products is not negligible against the release from HAW. In the case of fast and homogeneous dispersion of the leached nuclides in the brine and discharge of the contaminated brine in an aquifer by convergence of the mine it is possible to calculate the concentrations of nuclides in the ground water. Under these conditions the concentration of strontium-90 and cesium-137 already within 500 m from the source do not reach the MPC values given in Radiation Protection Ordinance which are derived as a standard of comparison. The same applies to plutonium, if the distribution coefficient is larger than $10^3 \text{cm}^3 \text{g}^{-1}$. For the longlived radionuclides like technetium and jodine with very small distribution coefficients the MPC values are reached at 1000 m distance. The results are functions of the models used. If the retardation of nuclide transport in the repository by backfill materials is considered, the calculated concentrations in the aquifer will decrease.

This evaluation should be completed by a more sophisticated modelling of parts of the nuclide transport from the wastes through the mine into groundwater. In this manner, it will be possible to get more reliable results from which, e.g., the minimum requirements on the quality of the waste products can be derived.

Gliederung

| | Seite |
|--|-------|
| Zusammenfassung | |
| 1. Einleitung | 1 |
| 2. Untersuchte Abfallarten | 4 |
| 3. Aktivitätsfreisetzung aus den Abfällen | 5 |
| 3.1 Vergleich HAW-Bohrloch / MAW-Kammer | 7 |
| 3.2 Freisetzung aus einer gesamten Jahrescharge | 8 |
| 3.3 Vergleich verschiedener Auslaugmodelle | 9 |
| 3.4 Standzeiten verschiedener Abfallprodukte | 9 |
| 3.5 Einfluß von Behältern auf die Auslaugung | 11 |
| 3.6 Folgerungen aus den Auslaugrechnungen | 13 |
| 4. Ausbreitung der Aktivität im Endlager und in einer grundwasserführenden Schicht | 14 |
| 5. Diskussion | 17 |
| 6. Quellenverzeichnis | 20 |
| Tabellen | |
| Abbildungen. | |

1. Einleitung

Das Ziel der im folgenden dargestellten Modelle und Rechnungen ist die Durchführung einer analytischen Sicherheitsbetrachtung für den angenommenen Auslegungstörfall Wassereinbruch in ein Endlager für radioaktive Abfälle während der Betriebsphase. Die Modelle enthalten zwar im Prinzip alle Prozesse des Transports in der flüssigen Phase, die Radionuklide aus eingelagerten Abfällen bis in grundwasserführende Schichten bringen können, sie sind jedoch sehr vereinfachend und das z.Zt. vorhandene Datenmaterial unvollständig, so daß zum jetzigen Zeitpunkt lediglich eine Art Sensitivitätsanalyse der betrachteten Parameter der Modelle erreicht werden kann.

Für eine weitere Präzisierung der Modelle müßten realistischere Beschreibungen von Teilvorgängen vorgenommen werden, wie z.B. der Ausbreitung von Radionukliden im Grubengebäude und im Schacht und der damit verbundenen Verzögerung, der Konvergenz des vollgelaufenen Grubengebäudes als Funktion der Zeit sowie der Wirkung von Kammer- und Streckenverschlüssen.

Bei Verwendung hinreichend genauer Daten und Modelle wird es möglich sein, aus den Ergebnissen der Rechnungen Folgerungen für die Spezifikationen der Abfallprodukte in Form von Mindestanforderungen an ihre Qualität zu gewinnen.

Als erster Schritt zu diesem Ziel sollen die sensitiven Teilschritte des Radionuklidtransportes aufgezeigt werden. Hierzu sind weniger die absoluten Werte der Rechnungen als vielmehr der Vergleich zwischen verschiedenen Nukliden, Abfallarten und Verteilungskoeffizienten von Interesse.

Für die Berechnungen wird von dem Endlager eines integrierten Entsorgungszentrums für die Wiederaufarbeitung von LWR Brennstoff nach dem Purexprozeß bei 1400 t Uran/a (entsprechend

45 GWe Kernkraftwerksleistung) ausgegangen.

Obwohl für ein neu aufzufahrendes Endlager in einem Salzstock solch ein Störfall äußerst unwahrscheinlich ist, wird ein Störfall angenommen, in dessen Folge ein Kontakt zwischen den eingelagerten konditionierten Abfällen und einer grundwasserführenden Schicht außerhalb des Salzstocks entsteht.

Zunächst wird ein Vergleich des verglasten HAW mit konditioniertem mittelaktiven Abfall vorgenommen und anschließend die freigesetzte Radionuklidkonzentration aus dem Endlager und deren Ausbreitung in grundwasserführenden Schichten untersucht.

Folgende Randbedingungen werden angenommen:

- Das Ersaufen des Bergwerks erfolgt während der Betriebsphase durch den Schacht. Es wird angenommen, daß sich zum Zeitpunkt des Wasserzuflusses ein bestimmter Teil der Abfälle in nicht verschlossenen Lagerräumen befindet.
- Die Strecken sind zum Zeitpunkt des Wasserzuflusses und danach unverfüllt. Es wird keine Wirksamkeit der Notverfüllung des Schachtes unterstellt.
- Durch Konvergenz aus dem Bergwerk verdrängte Lauge kann nur in die grundwasserführende Schicht, aus der der Wasserzufluß angenommen wurde, abfließen, da das Grundwasser in dieser Schicht mit dem Schacht modellmäßig ein kommunizierendes System darstellt. +)

Durch die Konvergenz wird ein hydraulischer Gradient zwischen Schacht und Grundwasser erzeugt, der um ca. 3 Zehnerpotenzen über demjenigen liegt, der die Grundwasserbewegung verursacht (Daten nach Kap. 4).

- Für die Auslaugung der Abfälle werden lediglich die Produkte betrachtet, d.h. es wird primär kein Einfluß von Verpackungen auf die Auslaugung angenommen.
- Es wird vorausgesetzt, daß sich die ausgelaugte Aktivität im Vergleich zur Ausbreitung im Deckgebirge schnell im Grubengebäude und Schacht verteilt. Prozesse dieser Art können durch thermische Konvektion bzw. Umlösevorgänge bewirkt werden. Verzögerungen des RN-Transportes im Grubengebäude und Schacht bleiben dabei unberücksichtigt.
- Durch den Ersaufvorgang erfährt das Grubengebäude keine Veränderung seiner Standfestigkeit.
- Für die Ausbreitungsrechnungen wird das Deckgebirge als homogenes Medium angesetzt. Hierbei wird angenommen, daß in der gesamten grundwasserführenden Schicht die Verteilungskoeffizienten gleich sind, und daß keine Klüfte bzw. Spalte vorhanden sind, die schnellere Transportprozesse ermöglichen könnten.
- Es wird angenommen, daß in hinreichender Entfernung von der Kontaktstelle zwischen Lauge und Grundwasser die Ausbreitung gemäß einer Punktquelle im Halbraum berechnet werden kann. Diese Annahme ist konservativ, wie ein Vergleich zwischen einer punkt- und einer linienförmigen Quelle zeigt.

Abbildung 1 zeigt eine schematische Darstellung des zugrunde gelegten Störfallmodells für das Grubengebäude, die grundwasserführende Schicht und den voll Wasser gelaufenen Schacht.

2. Untersuchte Abfallarten

Für die Untersuchung wurde eine Auswahl der Abfallströme einer Wiederaufarbeitungsanlage getroffen, die die Abfallarten mit dem größten Gefährdungspotential beinhaltet. Diese Abfälle sind verglaste HAW, zementierte wäßrige mittelaktive Abfälle (MAW-Konzentrate aus der Wiederaufarbeitung und Chemieabwässer aus der Brennelementfabrikation), Brennelementhülsen und Strukturteile, Feedklärschlamm, plutoniumhaltiger LAW aus der Brennelementfabrikation und Kesselfilter. Da die Chemieabwässer aus der Plutoniumbrennelementfabrikation nur einen volumenmäßig geringen Anteil dieses Abfallstromes ausmachen, unterscheiden sich die Radionuklidkonzentrationen dieser zusammengefaßten Abfallart nur unwesentlich von den reinen MAW-Konzentraten. In diesen Abfällen werden die Spaltprodukte Sr-90, Tc-99, Cs-137 und J-129 sowie die Alpha-Strahler Pu-238, Pu-239 sowie das aus Pu-241 entstandene Am-241 und Np-237 untersucht. Tabelle 1 gibt die spezifische Aktivität dieser Nuklide in den oben genannten Abfällen an. Zusätzlich wird die Anzahl der Abfallbehälter pro Jahr aus einer 1400 t/a Wiederaufarbeitungsanlage angegeben. Der HAW ist in 75 l-Glasblöcken mit einem Oberflächen zu Volumen-Verhältnis von $0,15 \text{ cm}^{-1}$ fixiert, die übrigen Abfälle liegen in 400 l-Fässern mit einem Verhältnis von Oberfläche zu Volumen von $0,07 \text{ cm}^{-1}$ vor. Die hier genannten Oberflächen zu Volumen-Verhältnisse beziehen sich auf die geometrischen Oberflächen der Produkte.

Die Dichten der Abfälle sind in Tabelle 1 aufgeführt.

In Tabelle 2 sind die Auslaugraten für die verschiedenen Nuklide und Abfallarten in quinärer Lauge angegeben. Quinäre Lauge hat die Zusammensetzung (in Gew.-% nach D'Ans /7/):

MgCl_2 : 24,8%, MgSO_4 : 2,0%, NaCl: 2,4%, KCl: 3,9%, H_2O : 66,9%.

Es ist eine der thermodynamisch möglichen Gleichgewichtslaugen, die bei Anwesenheit der entsprechenden Salzminerale auftreten könnte. Wegen ihres hohen $MgCl_2$ -Gehaltes wirkt sie besonders korrosiv und wird deshalb hier als konservatives Auslaugmedium angesehen.

Die Auslaugraten für die Spaltprodukte Strontium und Cäsium gelten bei Zimmertemperatur in quinärer Lauge, die Auslaugrate für Technetium gilt in destilliertem Wasser ebenfalls bei Zimmertemperatur. Für Plutonium ist die Auslaugrate im Falle des HAW in quinärer Lauge sowohl bei Zimmertemperatur als auch bei $115^\circ C$ angegeben. Die Auslaugraten wurden bei Atmosphärendruck gemessen. In dieser Tabelle ist die gleiche Auslaugrate für Feedklärschlamm und plutoniumhaltigen LAW aus der Plutoniumbrennelementfabrikation wie für zementierte MAW-Konzentrate angenommen worden. Obzwar das Konditionierungskonzept für Feedklärschlamm und dem plutoniumhaltigen LAW aus der Brennelementfabrikation (Kat. III) eine heterogene Fixierung vorsieht, wird mangels Daten bei den folgenden Berechnungen die Auslaugrate für verglasten HAW angesetzt.

3. Aktivitätsfreisetzung aus den Abfällen

Entsprechend den oben angegebenen Randbedingungen wird angenommen, daß sich die Abfälle sofort nach dem Vollaufen des Endlagerbergwerks in Kontakt mit der Lauge befinden, d.h. es wird keine Wirksamkeit eines Behälters unterstellt. Die aus den Abfällen freigesetzte Aktivität als Funktion der Zeit wird nach den Formeln in Tabelle 3 berechnet. In der 1. Formel wird die freigesetzte Aktivität aus der Wurzel der Zeit berechnet. Diese Abhängigkeit entspricht einem durch Diffusionsvorgänge bestimmten Transportprozeß von Radionukliden aus dem Produkt. Die 2. Formel berücksichtigt zusätzlich zum Auslaugvorgang eine evtl. Veränderung des Oberflächen zu Volumen-Verhältnisses mit der Zeit. Änderungen dieses Verhältnisses könnten z.B. durch mecha-

nische Einwirkung auf das Produkt entstehen. Die 3. Formel gibt schließlich die ausgelaugte Aktivität als lineare Funktion der Zeit an. Diese Auslaugung kann formal einem Korrosionsvorgang zugeordnet werden.

Zunächst wurden nach der Formel 1 in Tabelle 3 die ausgelaugten Aktivitäten mit der Wurzel aus der Zeit für die verschiedenen Radionuklide und Abfallarten der Tabelle 1 mit den Auslaugraten nach Tabelle 2 berechnet. Hierbei wurden 2 Alternativen betrachtet:

- Die ausgelaugte Aktivität wird auf die gesamten Abfälle von 1400 t wiederaufgearbeitetem Uran bezogen (entsprechend 45 GWe). Diese Menge entspricht ca. 7 HAW-Bohrlöchern bzw. 1,5 MAW-Kammern. Es wird davon ausgegangen, daß nur diese Abfälle für die Auslaugung zur Verfügung stehen.
- Zum anderen wird die ausgelaugte Aktivität auf ein Bohrloch mit verglastem HAW (300 m tief) bzw. eine MAW-Lagerkammer (5000 m³) mit zementierten wäßrigen mittelaktiven Abfällen bezogen. Weiter wird vorausgesetzt, daß die übrigen Lagerkammern bzw. Bohrlöcher dicht verschlossen sind, so daß aus diesen keine Aktivität freigesetzt werden kann. Das zur Verfügung stehende Aktivitätsinventar beträgt im Falle des HAW-Bohrloches nach dem Konzept der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt /10/ ca. 14% einer Jahrescharge der 1400 t Wiederaufarbeitungsanlage, bei der MAW-Kammer ca. 67% einer Jahrescharge.

Die Abbildungen 2 und 3 zeigen den Verlauf der freigesetzten Aktivität aus den verschiedenen Abfallprodukten für die Radionuklide Sr-90 und Pu-239 bezogen auf den gesamten Abfall von 1400 t wiederaufgearbeiteten Uran. Hierbei sind die Auslaugraten nach Tabelle 2 für Normaldruck und Zimmertemperatur zugrunde gelegt.

Bei beiden Radionukliden zeigt sich, daß das Maximum der ausgelaugten Aktivität zu einem Zeitpunkt auftritt, der kleiner als die Halbwertszeit des Nuklids ist. Insbesondere hängt dieser Zeitpunkt nicht von der Auslaugrate ab. Diese Tatsache rührt daher, daß bei der Bestimmung des Maximums nach Formel 1 in Tab.3 das Maximum der ausgelaugten Aktivität nur eine Funktion von der Halbwertszeit des Nuklids ist. Für alle Abfallarten, die hier untersucht wurden, liegt das Maximum für Sr-90 bei 20,6 Jahren, für Pu-239 bei 17.000 Jahren. Der in diesen beiden Abbildungen gezeigte Kurvenverlauf gilt, solange Abreicherungs-effekte im Produkt vernachlässigbar sind und sich das Produkt in seiner chemischen und physikalischen Beschaffenheit nicht ändert. Insbesondere kann auch die Wirksamkeit von Schutzschichten, die sich unter gewissen Bedingungen auf Glasprodukten bilden, nicht erfaßt werden.

In den Abschnitten 3.1 bis 3.5 werden die aus den Auslaugrechnungen gewonnenen Ergebnisse dargestellt.

3.1 Vergleich HAW-Bohrloch / MAW-Kammer

Betrachtet man ein HAW-Bohrloch mit verglastem HAW und eine MAW-Lagerkammer mit zementiertem MAW, so ergibt sich, daß nach 20,6 Jahren insgesamt 4700 Ci Sr-90 ausgelaugt sind, wobei 28% dieser Aktivität aus den zementierten MAW-Abfällen stammen. Für Cs-137 tritt das Maximum nach 21,6 Jahren mit einer gesamten ausgelaugten Aktivität von 26.000 Ci auf, wovon 81% aus dem MAW stammen. Für diesen Vergleich wurden die bei Normaldruck und Zimmertemperatur gemessenen Auslaugraten sowohl für HAW als auch für MAW benutzt. Für Pu-239 gilt, daß mit einer Auslaugrate, die für Zimmertemperatur bestimmt wurde, im Maximum ca. 15 Ci ausgelaugt sind. Davon stammt ca. 1% aus dem verglasten HAW. Entsprechend dem Einlagerungskonzept für HAW im Bohrloch trägt die Temperatur des Glases außen, d.h. an der Stelle, wo die Auslaugung im Störfall stattfinden könnte, ca. 200°C. Die z.Zt. verfügbaren nuklidspezifischen Auslaugraten beziehen sich

maximal auf die Auslaugung bis 115°C. Wird die Auslaugrate in quinärer Lauge bei 115°C zugrunde gelegt, ergibt sich im Maximum eine ausgelaugte Aktivität von ca. 250 Ci, davon stammen 6% aus dem MAW. Mit dieser um den Faktor 3300 höheren Auslaugrate ergibt sich, daß nach ca. 3000 Jahren die gesamte Pu-239-Aktivität aus dem HAW ausgelaugt wäre. Entsprechende Temperaturabhängigkeiten müßten auch für die Nuklide Strontium und Cäsium untersucht werden, doch fehlen z.Zt. hierzu die erforderlichen Daten.

Ein Vergleich der anderen MAW-Teilströme folgt im nächsten Kapitel.

3.2 Freisetzung aus einer gesamten Jahrescharge

Führt man diese Auslaugrechnungen für die gesamten Abfälle, die einer Wiederaufarbeitung von 1400 t Uran entsprechen, durch, erhält man folgende Ergebnisse:

Im Maximum beträgt die ausgelaugte Sr-90-Aktivität ca. 30.000 Ci, davon stammen 70% aus dem verglasten HAW, 25% aus zementierten Hülsen. Für Cs-137 ergibt sich eine maximal ausgelaugte Aktivität von 200.000 Ci, 50% hiervon kommen aus den Brennelementhülsen und Strukturteilen, 20% aus den zementierten wäßrigen MAW-Produkten. Diese Rechnungen wurden wieder mit den bei Zimmertemperatur gemessenen Auslaugraten durchgeführt.

Mit der Auslaugrate für Pu-239 aus HAW bei 115°C wäre nach ca. 3000 Jahren die gesamte Plutoniumaktivität aus dem HAW ausgelaugt. Im Maximum des Aktivitätsverlaufs stammen über 90% des Plutoniums aus dem HAW.

3.3 Vergleich verschiedener Auslaugmodelle

In den Abbildungen 4 und 5 ist die ausgelaugte Aktivität als Funktion der Zeit für verschiedene Auslaugmodelle dargestellt. Abbildung 4 zeigt die ausgelaugte Sr-90-Aktivität aus dem HAW. Die durch x charakterisierte Kurve entspricht der HAW-Kurve in Abbildung 2. Die beiden eng zusammenliegenden durch Quadrat und Pluszeichen gekennzeichneten Kurven entsprechen Korrosionsmodellen nach Formel 3 in Tabelle 3. Die durch Symbole Dreieck und Kreis bezeichnete Kurven entsprechen Auslaugvorgängen, bei denen eine zeitliche Änderung des Oberflächen zu Volumen-Verhältnisses auftritt. Je nach verwendetem Auslaugmodell ändert sich der Zeitpunkt des Maximums.

Wesentliche Unterschiede zeigen sich auch im Absolutwert der ausgelaugten Aktivität zum Zeitpunkt des Maximums. Die Auslaugung nach einer linearen Zeitabhängigkeit liefert eine ca. 10 mal höhere ausgelaugte Aktivität, bei einem variablen Oberflächenvolumenverhältnis ist eine weitere Erhöhung um einen Faktor 10 möglich im Vergleich zu einer nach der \sqrt{t} -Abhängigkeit berechneten Auslaugung (für $g = 1$ in Gleichung 2 in Tab. 3).

In Abb. 5 ist die ausgelaugte Pu-239-Aktivität aus verglastem hochaktivem Abfall als Funktion der Zeit dargestellt. Es zeigt sich, daß mit der Auslaugrate, die für quinäre Lauge bei 115°C gilt, nach ca. 50 Jahren die gesamte Aktivität freigesetzt wäre, wenn die Auslaugung nach Formel 3 in Tabelle 3 berechnet wird. Mit einer Auslaugung nach Formel 1 wäre erst nach ca. 3000 Jahren die gesamte Aktivität freigesetzt. Danach wird die Zeitabhängigkeit allein durch den radioaktiven Zerfall bestimmt.

3.4 Standzeiten verschiedener Abfallprodukte

Für die Anwendbarkeit der verschiedenen Auslaugformeln nach Tabelle 3 gilt die Voraussetzung, daß sich das Produkt über den

gesamten Zeitraum, für den die Auslaugung betrachtet werden soll, hinsichtlich der Auslaugemechanismen nicht ändert. Ebenso wird die die Auslaugrate bestimmende Diffusionskonstante, die für kurze Zeiten im Labor gemessen wurde, als zeitlich konstant angenommen. Insbesondere im Falle des Plutoniums, bei dem das Maximum der freigesetzten Aktivität nach ca. 3000 bzw. 17.000 Jahren auftritt, erscheint dies unwahrscheinlich. Aus diesem Grund wird ein weiterer Parameter in die Betrachtungen eingeführt, nämlich die Standzeit der Abfallprodukte. Die angenommenen Zeiten sind in Tabelle 4 aufgeführt. Diese Annahme wird ungeachtet der Beobachtungen eingeführt, daß sich unter Einwirkung von hydrostatischem Druck Schutzschichten auf dem Produkt bilden, die die Auslaugung verzögern können /11/.

Als Schätzwert für Zementprodukte wird 50 a, für HAW-Produkte eine um den Faktor 10 längere Standzeit angenommen.

Bis zum Erreichen der Standzeit wird die ausgelaugte Aktivität nach Formel 1 berechnet. Bei Erreichen der Standzeit wird angenommen, daß das Produkt den noch darin verbliebenen Anteil des Radionuklids instantan freisetzt. Die Standzeiten stellen im Sinne der in der Einleitung aufgeführten Betrachtungen einen möglichen Parameter zur Beschreibung der Freisetzungsvorgänge dar. Für die beiden Isotope Sr-90 und Pu-239 sind in den Abb. 6 und 7 die ausgelaugten Aktivitäten als Funktion der Zeit bei Berücksichtigung von Standzeiten der Abfallprodukte dargestellt. Bis zum Erreichen der Standzeit entsprechen die Kurvenverläufe denen in Abb.2 und 3. Betrachtet man die Auslaugrate von Sr-90, ergibt sich für den verglasten HAW, daß das Maximum der ausgelaugten Aktivität nach 20,6 Jahren auftritt. Bei einer Standzeit von 500 Jahren für HAW bringt die dann eintretende instantane Freisetzung keinen wesentlichen Beitrag mehr, da bereits das meiste Sr-90 zerfallen ist. Wesentlich anders sieht der Kurvenverlauf im Falle des Feedklärschlammes aus, da die schlagartige Freisetzung der gebundenen Aktivität nur kurze Zeit nach dem

nach Formel 1 berechneten Maximum auftritt. Dadurch vergrößert sich die freigesetzte Aktivität um 3 Zehnerpotenzen auf der Basis der getroffenen Annahme.

Die Freisetzungskurven für Pu-239 sind in Abb. 7 dargestellt.

In Abb. 8 sind die Summenkurven der ausgelaugten Aktivitäten der betrachteten Abfälle aufgetragen. Hierbei sind die jeweiligen Standzeiten der Abfallprodukte berücksichtigt, wobei die bei Zimmertemperatur und Normaldruck gemessenen Auslaugraten zugrunde liegen.

3.5 Einfluß von Behältern auf die Auslaugung

Die Abbildungen 9 und 10 zeigen den Einfluß unterschiedlicher Behälterstandzeiten auf die Auslaugkurve der Nuklide Sr-90 und Pu-239 aus hochaktiven verglasten Abfällen. Bei der Berechnung dieser Kurven wurde davon ausgegangen, daß bis zum Erreichen der Behälterstandzeit keine Aktivitätsfreisetzung erfolgt. Danach wird nach der Formel 1 in Tabelle 3 die Auslaugung nach der \sqrt{t} Abhängigkeit berechnet bis zum Erreichen der Standzeit des Abfallprodukts. In Abb. 9 sind die Kurven für 4 verschiedene Behälterstandzeiten dargestellt. Die durch Rechtecke gekennzeichnete Kurve zeigt die ausgelaugte Aktivität als Funktion der Zeit ohne Wirksamkeit eines Behälters, d.h. die Auslaugung beginnt zum Zeitpunkt 0. Die durch Kreise bezeichnete Kurve zeigt einen Behälter der Standzeit 50 Jahre. Bis zum Erreichen der Standzeit wird keine Aktivität freigesetzt, danach wird ausgelaugt und zum Zeitpunkt 550 Jahren wird der Rest der noch im Produkt vorhandenen Aktivität instantan freigesetzt. Die beiden anderen Kurven zeigen analoge Vorgänge für einen Behälter mit 100 Jahren und einen mit 300 Jahren Standzeit. Man kann diesen Kurven entnehmen, daß das Vorhandensein eines Behälters mit Standzeiten zwischen 50 und 300 Jahren die im Maximum freigesetzte Sr-90-Aktivität um mehrere Zehnerpotenzen vermindern

kann. Für Pu-239 ist in Abb. 10 der Einfluß eines 300 Jahre standhaltenden Behälters dargestellt. Es zeigt sich, daß im Fall dieses Isotops nahezu die gesamte Anfangsaktivität auch bei Vorhandensein eines 300-Jahre-Behälters aus dem Produkt freigesetzt wird. In diesem Falle treten jedoch Effekte auf, die bei dieser Betrachtung primär nicht berücksichtigt sind. Z.B. ändert sich innerhalb von 300 Jahren die Temperatur der Abfallprodukte, so daß auch die Auslaugrate des Glases abnehmen wird.

Abbildung 11 zeigt den Verlauf der ausgelaugten Sr-90-Aktivität als Funktion der Zeit unter dem Aspekt, daß die Auslaugrate eine Funktion der Temperatur ist. Wie in Kap. 3.1 erwähnt, beträgt die Außentemperatur der Glasblöcke relativ kurze Zeit nach der Einlagerung ca. 200°C. Das HAW-Glas erfährt eine Temperaturabnahme von dieser Temperatur auf ca. 140°C innerhalb von ca. 200 Jahren und auf ca. 100°C innerhalb von 500 Jahren /12/. Für die Auslaugraten werden bei 200°C $R_L=10^{-3}$ g cm⁻²d⁻¹ bei 100°C $R_L=10^{-4}$ g cm⁻²d⁻¹ und bei 20°C $R_L=10^{-5}$ g cm⁻²d⁻¹ angesetzt. Die Zwischenwerte werden nach

$$R_L = 1,0 \cdot 10^{-5} \exp(0,0256 \cdot T) \cdot (\text{g cm}^{-2} \text{ d}^{-1})$$

interpoliert (T in Celsiusgraden). Die mit dieser Interpolation berechneten Auslaugraten werden in die Formel 1 der Tabelle 3 eingesetzt und über den weiteren Zeitverlauf konstant gehalten.

Für Sr-90 vermindert sich die im Maximum ausgelaugte Aktivität aufgrund der reduzierten Auslaugrate bei einem 200 Jahre-Behälter um den Faktor 10^4 und bei einem 500 Jahre überdauernden Behälter um ca. 6 Zehnerpotenzen. Hierbei ist auch die Abnahme der Aktivität des Glases während der Behälterstandzeit berücksichtigt.

In Abb. 11a ist der Verlauf der ausgelaugten Pu-239-Aktivität als Funktion der Zeit, analog wie in Abb. 11 für Sr-90 dargestellt. Hierbei wurde die gleiche Temperaturabhängigkeit der Auslaugung wie für Sr-90 angenommen. Die Ergebnisse zeigen jedoch, daß im Gegensatz zu Sr-90 die im Maximum ausgelaugte Aktivität unverändert bleibt. Sie ist lediglich um die Behälterstandzeit verschoben. Bestimmend für dieses modellmäßige Verhalten des Plutoniums ist die Wahl der Standzeit des Glasproduktes (hier 500 a). Bei geringeren Glastemperaturen sind allerdings auch längere Standzeiten denkbar.

3.6 Folgerungen aus den Auslaugrechnungen

Zusammenfassend kann aus den vorliegenden Rechnungen gefolgert werden, daß die Annahme einer Standzeit für Produkte und Behälter einen wesentlichen Einfluß hat. Ausschlaggebend ist dabei nicht der absolute Betrag der Standzeit, sondern die Tatsache, daß ein intakter Behälter bzw. Produkt eine Aktivitätsfreisetzung verhindert in dem Zeitraum, in dem durch hohe Temperaturen die Auslaugrate hoch wäre und die Aktivität noch nicht abgeklungen ist. Jedoch sind Verzögerungszeiten für die Freisetzung von Radionukliden aus dem Endlager oder den Abfallprodukten nur dann wirksam, wenn sie wenigstens in der Größenordnung der Halbwertszeit der betrachteten Nuklide liegen.

Die dargestellten Ergebnisse zeigen, daß die aus mittelaktiven Abfällen (Konzentrate aus der Wiederaufarbeitung und Chemieabwässer aus der Pu-Brennelementfabrikation) im Falle des Störfalls "Wassereinbruch" freigesetzte Aktivität nicht vernachlässigbar gegenüber der aus dem HAW ist. Während für hochaktive Abfälle beispielsweise durch eine Verbesserung der Verpackung und Behälter die freigesetzte Aktivität verringert werden kann, ist bei dem mengenmäßig wesentlich größeren Anfall an mittelak-

tiven Abfällen eine besondere Bedeutung auf das Produkt selbst, den Versatz, die Verfüllung und den Verschluß der Lagerkammern zu legen.

4. Ausbreitung der Aktivität im Endlager und in einer grundwasserführenden Schicht

Nach dem von der PTB vorgeschlagenen Konzept hat das Endlager ein Volumen von ca. 900.000 m³. Entsprechend der Annahme einer schnellen Durchmischung des zugeflossenen Wassers bzw. der Lauge in dem Bergwerk durch Umlösevorgänge bzw. thermische Konvektionsströmungen berechnet sich der zeitliche Konzentrationsverlauf der Aktivität im Bergwerk aus den Aktivitäten in Abb. 8 dividiert durch das Volumen des Bergwerks. Da insbesondere neu aufgefahrene Bergwerke infolge des Gebirgsdrucks hohe Volumenkonzentrationsraten besitzen, wird angenommen, daß während der ersten Jahre nach dem Ersaufen des Endlagers jährlich ca. 1 Vol.-% kontaminierte Lauge in die grundwasserführende Schicht gedrückt wird, aus der der Wasserzufluß erfolgte.⁺) In der grundwasserführenden Schicht wird die Ausbreitung der Aktivität als ein Dispersionsvorgang in einem beliebig ausgedehnten dreidimensionalen Raum für eine Punktquelle beschrieben /13, 14/.

Für begrenzte Grundwasserleiter mit einer Mächtigkeit über 300 m zeigt sich, daß bis ca. 1 km Entfernung von der Quelle die Annahme eines unendlichen Halbraums, in dem die Ausbreitung stattfindet, eine hinreichende Näherung für die hier betrachteten Fälle ist.

In Tabelle 5 ist die Lösung der Dispersionsgleichung für eine Punktquelle dargestellt, wobei die Quelle nur zum Zeitpunkt $t=0$ Aktivität emittiert (Quellstoß). Die Berechnung der Konzentration als Funktion des Ortes und der Zeit für eine zeitlich kontinuierliche Quelle ergibt sich durch numerische Integration über die Zeit. Die zeitabhängige Auslaugung wurde hierbei be-

⁺) Nach /15/ beträgt die Konvergenzrate von laugegefüllten Kavernen ca. 0.6 Vol.-% in den ersten Monaten.

rücksichtigt. Die Rechnungen wurden mit den Daten in Tab. 6 durchgeführt. Die Ergebnisse der Ausbreitungsrechnungen sind in Abb. 12 bis 15 dargestellt.

Die Abb. 12 zeigt eine Prinzipdarstellung der Ausbreitung eines Radionuklids. Um den Stromfaden in Fließrichtung des Grundwassers ist der Bereich dargestellt, innerhalb dessen die im Stromfaden auftretende Konzentration auf 1% abgenommen hat. Räumlich entspricht dies einem Rotationskörper um den Stromfaden. Die folgenden Abbildungen zeigen die Konzentration der Pu-239-Aktivität im Grundwasser in Curie/m³ als Funktion des Ortes und der Zeit.

In Tabelle 7 sind außer den für die Ausbreitung von Radionukliden wichtigen Verteilungskoeffizienten und Retardationsfaktoren, die maximalen Konzentrationen der betrachteten Radionuklide im vollgelaufenen Bergwerk sowie die Zeiten, die für einen Radionuklidtransport über eine Entfernung von 1 km erforderlich wären, angegeben. In der letzten Spalte ist die aus der Anlage IV, Tab. IV der StrlSchV vom 13.10.1976 abgeleitete maximal zulässige Konzentration der jeweiligen Nuklide aufgeführt.

Die Transportzeit der Radionuklide berechnet sich aus der Grundwassergeschwindigkeit, dem Verteilungskoeffizienten, der Dichte und der Porosität der betrachteten Grundwasserschicht nach Tabelle 5. Für die beiden Isotope Pu-238 und Pu-239 wurde eine Variation des Verteilungskoeffizienten zwischen 0 und 1000 cm³ g⁻¹ vorgenommen. Während die beiden Spaltprodukte Tc-99 und J-129 nur geringe Wechselwirkung mit dem Medium, in dem die Ausbreitung stattfindet, zeigen (daher geringe K_d-Werte), hängt der K_d-Wert für Plutonium von vielen Faktoren, wie z.B. Oxidationsstufe, pH-Wert, Kolloidbildung usw. ab. Allein aufgrund der im Verhältnis zur Halbwertszeit langen Transportzeiten läßt sich für die Spaltprodukte Sr-90 und Cs-137 abschätzen, daß die Konzentrationen dieser Isotope in relativ geringer Entfernung von der Kontaktstelle zwischen Grubenlauge und Grund-

wasser auf Werte unter den zulässigen abgeklungen ist.

Für Tc-99 und J-129 ergibt sich unter der Annahme einer konstanten Freisetzungsrates mit dem Verteilungskoeffizienten $K_d = 0 \text{ cm}^3 \text{ g}^{-1}$ für 1 km Abstand von dem vollgelaufenen Endlager eine Grundwasserkontamination, die über den zulässigen Grenzwerten liegt. Für Pu-239 liegt die maximale Konzentration in 1000 m Entfernung bei $K_d = 100 \text{ cm}^3 \text{ g}^{-1}$ im Bereich des abgeleiteten MZK-Wertes, bei $K_d = 1000 \text{ cm}^3 \text{ g}^{-1}$ viele Zehnerpotenzen darunter.

Bei den vorhergehenden Betrachtungen wurde davon ausgegangen, daß die Konvergenzrate des Bergwerks unabhängig von der Zeit konstant bleibt. Dieser Ansatz ist unrealistisch und sehr pessimistisch. Insbesondere bei vollgelaufenen Bergwerken, in denen ein teilweiser Ausgleich des Gebirgsdrucks vorhanden ist, kann man davon ausgehen, daß die Konvergenzrate abnimmt. Da keine Daten über die Konvergenzen in vollgelaufenen Bergwerken vorliegen, wurde der zeitliche Verlauf der Konvergenzrate folgendermaßen postuliert. Bis 10 a nach dem Vollaufen ist die Rate 1 Vol.-%/a, bis 500 a 0,01 Vol.-%/a, bis 1000 a noch eine Zehnerpotenz geringer und für Zeiten über 1000 Jahren tritt keine Konvergenz mehr auf. Unter dieser Annahme würden bis ca. 100 a ca. 20% des gesamten Laugevolumens freigesetzt.

Für Pu-239 und Tc-99 sind die Ergebnisse der Ausbreitungsrechnungen nach den beiden verwendeten Modellen in Tab. 8 gegenübergestellt. Daraus ist ersichtlich, daß bei Berücksichtigung der zeitlich veränderlichen Konvergenzrate die maximale Konzentration der Radionuklide im Grundwasser nicht nur linear mit dem geringeren freigesetzten Laugevolumen abnimmt, sondern wesentlich, d.h. um den Faktor 100 bis 1000, niedriger liegt. Dies bedeutet, daß gegenüber dem einfachen Freisetzungsmodell Radionuklidkonzentrationen auch für die langlebigen Nuklide mit geringer Rückhaltung in Gesteinsschichten im Bereich der MZK-Werte

gefunden werden. Dieser Effekt ist auf die Wirksamkeit der Fixierung der Abfallprodukte bzw. Verpackungen zurückzuführen, in den Zeiträumen, in denen eine hohe Konvergenzrate der Lauge aus dem Bergwerk vorhanden ist. In längeren Zeiten (bis zur Standzeit) nimmt zwar die Kontamination der Lauge im Bergwerk zu, das freigesetzte Laugenvolumen pro Zeiteinheit nimmt jedoch ab.

5. Diskussion

Mit Hilfe der durchgeführten Rechnungen anhand eines einfachen Störfallmodells und angenommener Folgen des Störfalls kann die Grundwasserkontamination als Funktion von Ort und Zeit abgeschätzt werden. Daraus lassen sich Rückschlüsse auf Eigenschaften der im Endlager befindlichen Abfallprodukte bzw. Verpackungen der Produkte usw. ziehen. Außerdem zeigt diese Abschätzung, welche Parameter die Ergebnisse wesentlich beeinflussen.

Für die Abfälle gilt, daß sowohl die Auslaugrate als auch die Standzeit der Produkte den Quellterm (d.h. die Radionuklidkonzentration in der freigesetzten Lauge) wesentlich bestimmen. Behälter, die die Abfälle für bestimmte Zeit vor dem direkten Laugezutritt schützen, bewirken, daß kurzlebige Radionuklide zerfallen sind und die Temperatur besonders bei hochaktiven Abfällen deutlich vermindert ist, ehe eine Auslaugung erfolgt. Durch Einbringen von künstlichen Barrieren, wie z.B. Versatz bzw. Verfüllung der Abfallkammern und Strecken mit geeigneten Materialien mit hoher Dichtigkeit und guten Retentionseigenschaften für Radionuklide, läßt sich die Durchmischung der Lauge im Bergwerk verzögern. Durch den geringeren Resthohlraum ist das Ausmaß der Volumenkonvergenz und damit die Abgaberate kontaminierter Lauge bei dem hier unterstellten Störfall geringer. Eine Verzögerung der Verteilung der Kontamination in der im

Störfall zugeflossenen Lauge könnte evtl. auch durch eine geeignete Wahl der Geometrie des Streckensystems erreicht werden.-

Größen, die nicht durch künstliche Maßnahmen beeinflussbar scheinen, sind die Eigenschaften der geologischen Schicht, in der die Ausbreitung der Kontamination stattfindet. Hierzu gehören im wesentlichen der K_d -Wert und die Klüftigkeit der Schicht nach dem Vollaufen des Bergwerks.

Die Rechnungen zeigen aber auch, daß für die langlebigen Radionuklide die Konzentration im Grundwasser im wesentlichen durch die Retention in der geologischen Formation bestimmt wird. Besonders für Tc-99 und J-129 mit extrem geringer Wechselwirkung mit dem Gestein muß ein deutliches Gewicht auf zusätzliche Barrieren wie Produkt, Verpackung, Zwickelverfüllung sowie Verfüllung von Strecken und Schächten gelegt werden.

Die hier durchgeführten Rechnungen zeigen, daß für den betrachteten Störfall die heutigen Abfallprodukte im Zusammenwirken mit weiteren Barrieren zu akzeptablen Radionuklidkonzentrationen im Grundwasser führen. Das heißt, das Freisetzungsverhalten der heutigen Produkte erfüllt im wesentlichen die Anforderungen, die man aus dem betrachteten Störfall Wassereintrich in der Betriebsphase ableiten kann. Signifikante Änderungen der Ergebnisse sind jedoch möglich, wenn genauere Modellannahmen zugrunde gelegt werden. So führt z.B. die Berücksichtigung der Verzögerung der Verteilung der ausgelaugten Radionuklide im Grubengebäude durch Puffer-, Versatz- und Verfüllmaterialien zu deutlich verminderten Konzentrationen in der grundwasserführenden Schicht. Andererseits könnte die Ausbreitung in einem inhomogenen Aquifer die Verteilung und Retention der Nuklide möglicherweise negativ beeinflussen.

In Anbetracht der offenen Hohlräume des Endlagerbergwerks, der hohen Temperatur besonders des HAW und der hohen Spaltproduktin-

ventare ist der Störfall Wassereinbruch in der Betriebsphase ausschlaggebend bezüglich den Anforderungen an die Abfallprodukte.

Abschließend soll noch darauf hingewiesen werden, daß die Vergleiche der Aktivitätskonzentration der Radionuklide mit den nach der StrlSchV abgeleiteten maximalen Aktivitätskonzentrationen zwar hilfreich sind, jedoch nicht die Berechnung der tatsächlichen Dosisbelastung der Bevölkerung in der Umgebung eines vollgelaufenen Endlagers über die Nahrungskette ersetzen können.

6. Quellenverzeichnis

- /1/ G. Malow, V. Beran, W. Lutze, J. Borchardt,
J.A.C. Marples, J.T. Dalton, A.R. Hall. A. Houch,
K.A. Boulton, W. Heimerl, G. Schutz-Lembach,
N. Jacquet-Francillon, E. Vernaz, C. Sombret (1980)
Testing and evaluation of the properties of various
potential materials for immobilizing high activity waste.
European Appl. Res. Rept.-Nucl. Sci. Technol.
Vol. 2, No. 2, pp. 453-515
- /2/ D.J. Bradley, C.O. Harvey, R.P. Turcotte (1979)
Leaching of actinides and technetium from simulated
high level waste glass
PNL- 3152
- /3/ K. Scheffler, U. Riege, K. Louwrier, Hj. Matzke, J. Ray,
H. Thiele (1977)
Long term leaching of silicate systems:
Testing procedure, actinides behaviour and mechanism
KfK 2456
- /4/ K. Scheffler, U. Riege, C.T. Walker (1978)
Chemical compatibility of HLW borosilicate glasses with
actinides:
Solubilities and segregation problems
KfK 2552, EUR 5750 e
- /5/ J. Furrer (1979)
persönliche Mitteilung
- /6/ G. Rudolph, R. Köster (1979)
Stoffliche Untersuchungen zur Verfestigung mittelaktiver
Abfallösungen mit Zement: Auslaugbarkeit von Cäsium und
Strontium
KfK 2842

- /7/ D'Ans (1933)
Die Lösungsgleichgewichte der Systeme ozeanischer
Salzablagerungen
Verlagsanstalt für Ackerbau, Berlin
- /8/ M.J. Bell (1971)
An analysis of the diffusion of radioactivity from
encapsulated wastes
ORNL-TM 3232
- /9/ E. Ewest (1978)
Calculation of radioactivity release due to leaching of
vitrified high level waste
in Proc. Materials Research Society Meeting
Boston 19.11. - 1.12.1978, pp 161
- /10/ H. Röthemeyer (1979)
Site investigations and conceptual design for the mined
repository in the German nuclear "Entsorgungszentrum"
IAEA-SM-243/48
- /11/ L. Kahl, J. Saidl, Th. Dippel (1980)
"Herstellung und Charakterisierung eines verbesserten
Borosilikatglases zur Verfestigung von hochaktiven Spalt-
produktlösungen, Teil 2: Charakterisierung der verbesser-
ten Borosilikatglasprodukte GP 98/12 und GP 98/26",
KfK 2960
- /12/ E. Korthaus (1980)
in K.D. Closs: Vergleiche der verschiedenen Entsorgung-
alternativen und Beurteilung ihrer Realisierbarkeit
KfK 3000

- /13/ G. de Marsily, E. Ledoux, A. Barbreau, J. Margat (1977)
Nuclear waste disposal: Can the geologist guarantee
isolation
Science 197, No. 4303, pp 519
- /14/ E. Bütow, M. Gülker (1980)
persönliche Mitteilung
- /15/ H.U. Röhr (1969)
Über die beim Ausspülen eines Untergrundspeichers in
ein im Salzstock wirksamen Einflußgrößen im Hinblick
auf die Gewinnung von Planungs- und Überwachungsmaß-
nahmen
Erdöl und Kohle, Erdgas, Petrochemie 22, Nr. 12
S. 734 - 740

Tabelle 1: Aktivität Ci/Gebinde und Dichte der Abfälle für eine 1400 jato Wiederaufarbeitungsanlage

| Nuklid | HAW Ci | Zementierter wäBriger MAW ⁺) | BE-Hülsen, Strukturteile | FKS | LAW _{Pu} Kat.III | Kesselfilter mit Jod |
|--------------------------------------|-----------|---|-----------------------------|-------------------|------------------------------|-------------------------|
| Sr-90 | 5 1200 | 16,4 | 153 | 2392 | -- | 2,1 |
| Tc-99 | 12,3 | -- | -- | 5,14 | -- | -- |
| Cs-137 | 74700 | 25,7 | 220 | 3670 | -- | 3,0 |
| Pu-238 | 9,52 | 0,48 | 10,2 | 17,0 | 8,5 | 0,12 |
| Pu-239 | 0,94 | 0,048 | 1 | 1,67 | 0,84 | 0,01 |
| Pu-241 | 431,2 | 22,2 | 462 | 770 | 385 | 5,54 |
| Am-241 | 489 | 3,15 | 4 | 22,4 | 1,98 | 0,03 |
| Np-237 | 0,3 | -- | $8 \cdot 10^{-4}$ | $5 \cdot 10^{-6}$ | -- | -- |
| J-129 | -- | -- | -- | -- | -- | 0,145 |
| Anzahl/a | 1760 | 10417 | 2100 | 700 | 4760 | 400 |
| Anzahl/ Lagerkammer bzw. Bohrloch | 250 | 7000 | 270 | 270 | 8000 | |
| Dichte g cm ⁻³ | 2,8 | 2,3 | 3,15 | 2,3 | 1,4 | 2,0 |

+) MAW-Konzentrate aus der Wiederaufarbeitung und Chemieabwässer aus der Plutoniumbrennelement-fabrikation

Tabelle 2: Zusammenstellung von Auslaugraten in quinärer Lauge in $\text{g cm}^{-2}\text{d}^{-1}$ bei Normalbedingungen bezüglich Druck und Temperatur

| Nuklid | HAW | Zementierter wäßriger MAW | BE-Hülsen + Strukturteile | FKS | LAW _{Pu} | Kessel-Filter |
|------------|--|---------------------------|---------------------------|--------------------------------------|-------------------------|------------------------------------|
| Strontium | $10^{-5} - 10^{-6}$ /1/ | $10^{-3} - 10^{-4}$ /6/ | $10^{-3} - 10^{-4}$ /6/ | $10^{-3} - 10^{-4}$ /6/ | -- | |
| Technetium | $10^{-6} - 10^{-7}$ /2/ in Wasser | -- | -- | $10^{-6} - 10^{-7}$ /2/ in Wasser | -- | |
| Cäsium | $10^{-5} - 10^{-6}$ | $10^{-2} - 10^{-3}$ /6/ | $10^{-2} - 10^{-3}$ /6/ | $10^{-2} - 10^{-3}$ /6/ | -- | |
| Plutonium | $10^{-7} - 6 \cdot 10^{-7}$ /3/ 10^{-3} /4/ | $10^{-4} - 10^{-5}$ /3/ | $10^{-4} - 10^{-5}$ /3/ | $10^{-4} - 10^{-5}$ /3/ | $10^{-4} - 10^{-5}$ /3/ | $10^{-4} - 10^{-5}$ /3/ |
| Americium | $10^{-5} - 10^{-6}$ /3/ | $10^{-4} - 10^{-6}$ /3/ | $10^{-4} - 10^{-6}$ /3/ | $10^{-4} - 10^{-6}$ /3/ | $10^{-4} - 10^{-6}$ /3/ | |
| Neptunium | Wie Americium | | | | | |
| Jod | -- | -- | -- | -- | -- | $2 \cdot 10^{-6}\text{d}^{-5}$ /5/ |
| Alternativ | | | | wie HAW | wie HAW | |

Tabelle 3 : Zusammenstellung von Gleichungen zur Berechnung der ausgelaugten Aktivität

| Abhängigkeit | | Bemerkungen |
|--------------------------------|---|---|
| 1. \sqrt{t} - Abhängigkeit | $A(t) = 2 A_0 \cdot o/v \cdot \sqrt{\frac{D \cdot t}{\pi}} \cdot e^{-\lambda t}$ <p> A : Aktivität o : Oberfläche R_L : Auslaugrate v : Volumen t : Zeit D : Diffusionskonstante λ : Zerfallskonstante </p> | nach M.J. Bell [8] $D = \frac{1}{4} \frac{R_L^2}{g^2} \cdot 365 \text{ d} \cdot \pi \cdot e^{+2\lambda \cdot 365 \text{ d}}$ <p>R_L ist die mittlere Auslaugrate über 1 a.</p> |
| 2. Variables o/v - Verhältnis | $A(t) = 2 A_0 \cdot (o/v + g \cdot o/v \cdot t) \sqrt{\frac{D \cdot t}{\pi}} \cdot e^{-\lambda t}$ <p>g : Konstante</p> | z.B. mechanische o/v - Änderung |
| 3. lineare Zeit - abhängigkeit | $A(t) = A_0 \cdot o/v \cdot t \cdot R_L \cdot e^{-\lambda t} / g$ | entspricht Korrosionsmodell, z.B von E. Ewest [9] |

Tabelle 4: Angenommene Abfall-Standzeiten für Produkte

| Abfallart | Standzeit |
|------------------|-----------|
| HAW verglast | 500 a |
| MAW (zementiert) | 50 a |
| FKS | 100 a |
| LAW Pu-haltig | 100 a |

Bis zur Standzeit wird die Auslaugung gemäß der \sqrt{t} Abhängigkeit berechnet, bei Erreichen der Standzeit wird eine plötzliche Freisetzung des noch im Produkt verbliebenen Inventars angenommen.

Tab. 5:

Ausbreitungsrechnung

$$\text{DGL: } \frac{\partial c}{\partial t} = D_L \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + D_T \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} + D_T \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} - v \frac{\partial c}{\partial x} + q - \lambda c$$

$v = v_x = \text{const.}$: Porengeschwindigkeit

Lösung für δ -Quelle:

Punktquelle

in $x = y = z = 0$

$$C(x,y,z,t) = \frac{q_0}{8 \sqrt{\pi^3 t^3 D_L} \cdot D_T \varphi} e^{-\frac{(x-v \cdot t)^2}{4 D_L t} - \frac{y^2 + z^2}{4 D_T t} - \lambda t}$$

φ : Porosität

c : RN Konzentration

$D_{T,L}$: Diffusionskonstanten

q_0 : Quellstoß

t : Zeit

λ : Zerfallskonstante

Tabelle 6: Konstanten zur Ausbreitungsrechnung

| | |
|-------------------|-----------------------------|
| Bergwerkvolumen: | $9 \cdot 10^5 \text{ m}^3$ |
| Freisetzungsrate: | 1 Vol.-%/a |
| entsprechen | $9000 \text{ m}^3/\text{a}$ |

Grundwasserporengeschwindigkeit v : 10 m/a

Diffusionskonstanten:

$$\alpha_T = R_d \cdot D_T / v = 3 \text{ m}$$

$$\alpha_L = 10 \cdot \alpha_T = 30 \text{ m}$$

α = Dispersionskonstante m

R_d = Retardationsfaktor -

$$R_d = 1 + \frac{(1-P) \rho K_d}{P}$$

P = Porosität -

ρ = Gesteinsdichte g cm^{-3}

Tabelle 7:

AUSBREITUNG VON RADIONUKLIDEN IM GRUNDWASSER (Zeit für die Wanderung eines Quellstoßes)

ABSTAND 1000 M
 PORENWASSERGE SCHW. 10 M/A
 POROSITAET .1000
 DICHT E 2.00 G/CM³
 DISPERSIONSKONST. 30.00 M
 " TRANSVERS. 3.00 M

| NUKLID | MAXIMAL KONZENTR. CI/M ³ | +) KD CM ³ /G | RD | ZEIT A | ABGEL. MZK-WERT CI/M ³ |
|--------|---|-----------------------------|-------|-----------|--------------------------------------|
| SR -90 | .129E 00 | 1 | 19 | 1900 | .240E-07 |
| TC -99 | .270E-01 | 0 | 1 | 100 | .979E-05 |
| J -129 | .600E-04 | 0 | 1 | 100 | .109E-07 |
| CS-137 | .510E 00 | 10 | 181 | 18100 | .900E-06 |
| PU-238 | .300E-01 | 0 | 1 | 100 | .300E-06 |
| | | 10 | 181 | 18100 | .300E-06 |
| | | 100 | 1801 | 180100 | .300E-06 |
| PU-239 | .960E-02 | 0 | 1 | 100 | .280E-06 |
| | | 100 | 1801 | 180100 | .280E-06 |
| | | 1000 | 18001 | 1800100 | .280E-06 |

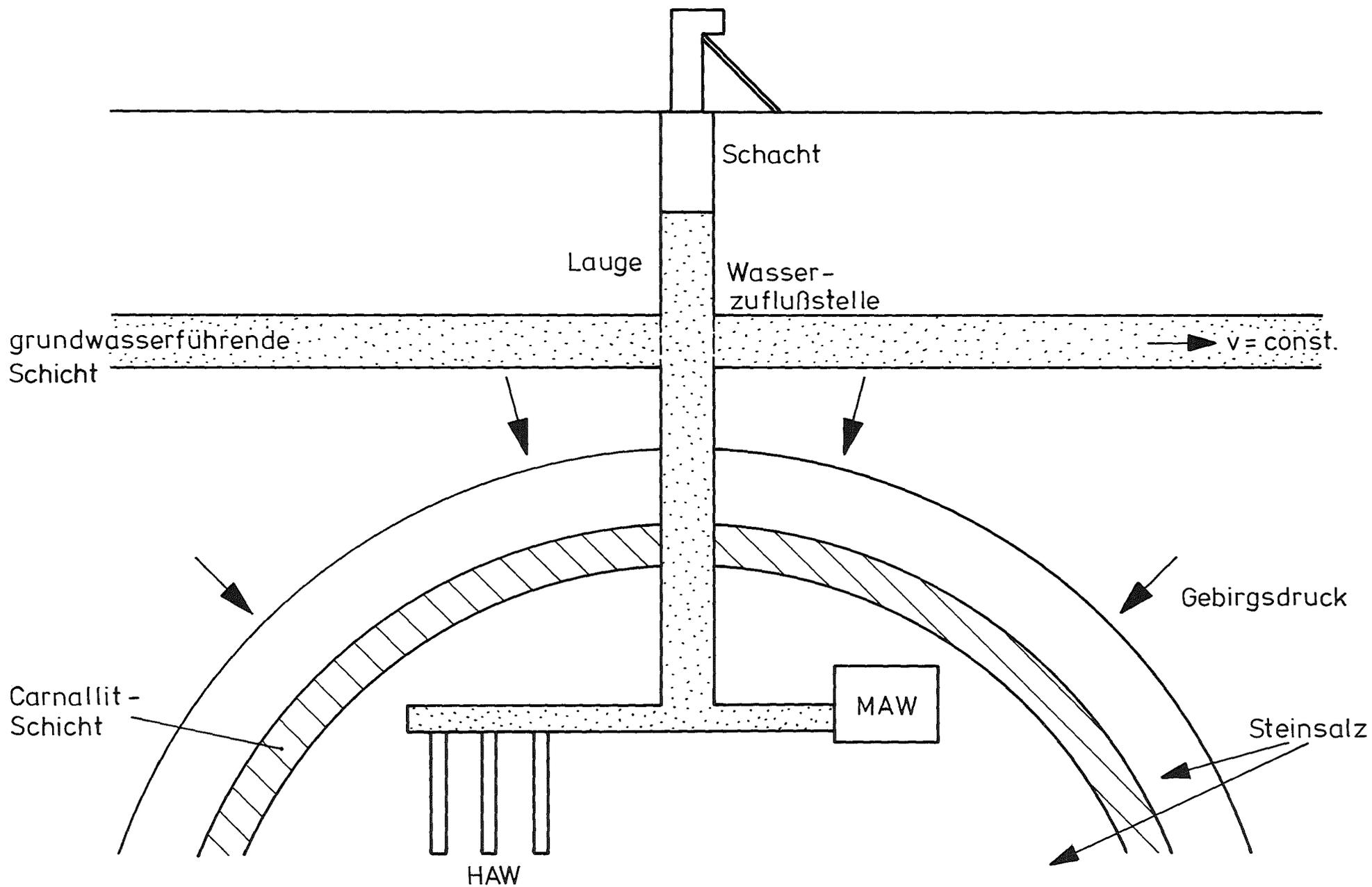
+) Radionuklidkonzentration im Bergwerk vor Eintritt in die grundwasserführende Schicht

Tabéllé 8:

Vergleich der verwendeten Ausbreitunsmodelle bei Berücksichtigung der Auslaugung und Standzeit der Abfälle sowie der zeitlich abnehmenden Freisetzungsráte aus dem Bergwerk durch Konvergenz

| Nuklid | $K_d \frac{\text{cm}^3}{\text{g}}$ | Konzentration in 1 km Entfernung (Ci/m^3) | |
|--------|------------------------------------|---|--|
| | | Auslaugung | Auslaugung und zeitlich veränderliche Freisetzungsráte |
| Sr-90 | 1 | $1 \cdot 10^{-23}$ | --- |
| TC-99 | 0 | $9,1 \cdot 10^{-4}$ | $9,1 \cdot 10^{-6}$ |
| Cs-137 | 10 | 0 | --- |
| J-129 | 0 | $7 \cdot 10^{-8}$ | --- |
| Pu-238 | 100 | 0 | --- |
| Pu-239 | 100 | $3,4 \cdot 10^{-7}$ | $2,5 \cdot 10^{-10}$ |

Abb. 1: Prinzipdarstellung des Störfallmodells



- x SUMME
- + HUELSEN
- ▲ FEED-KLAERSCHLAMM
- MAW KONZENTRATE
- HAW

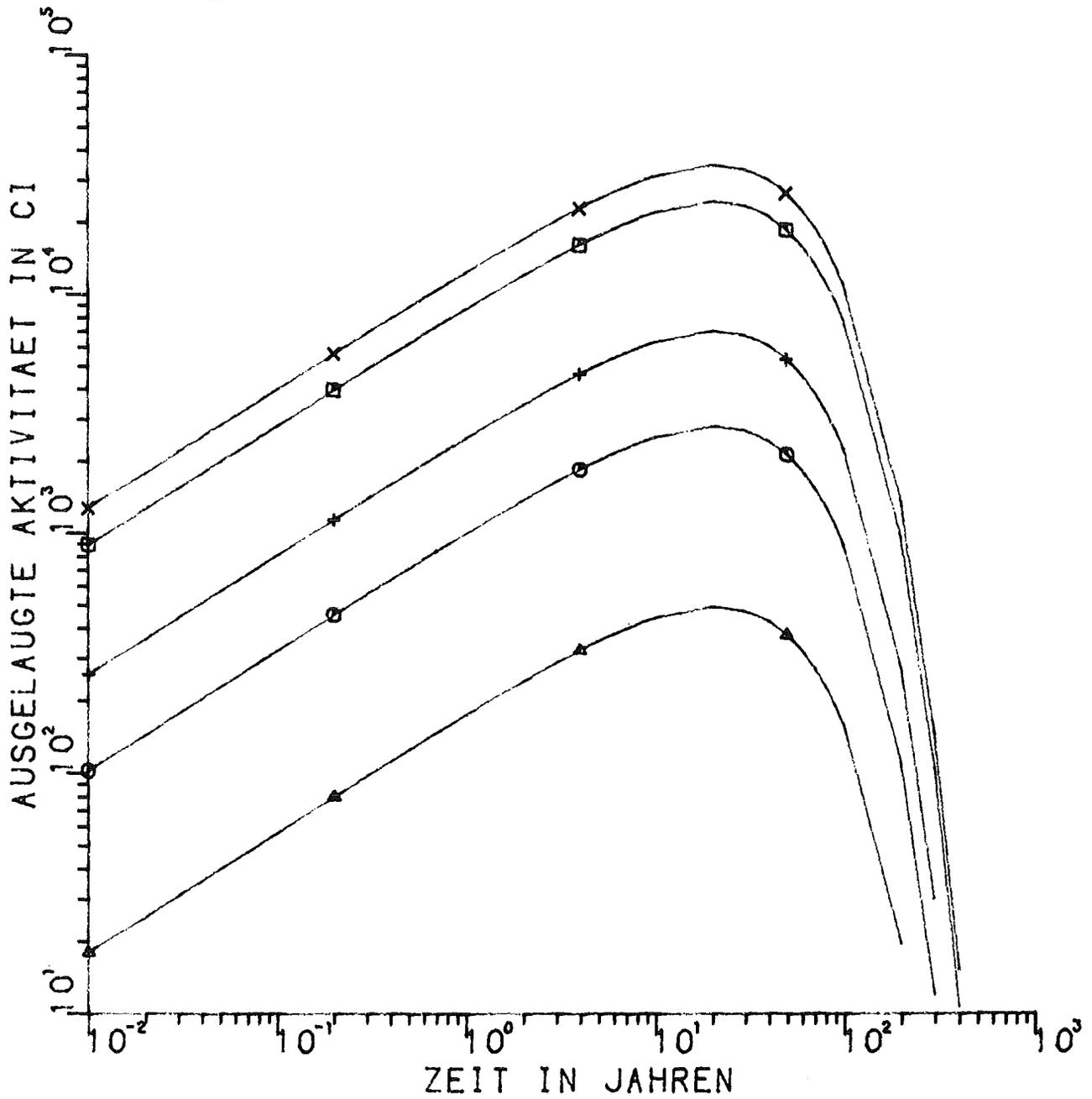


Abb. 2: Ausgelaugte Sr-90 Aktivität aus verschiedenen Abfallarten von 1400 t wiederaufgearbeitetem Uran als Funktion der Zeit nach \sqrt{t} -Abhängigkeit

- ◆ SUMME
- × HAW VERGLAST
- + MAW
- ▲ FEED-KLAERSCHLAMM
- LAW (Pu-haltig)
- HUELSEN

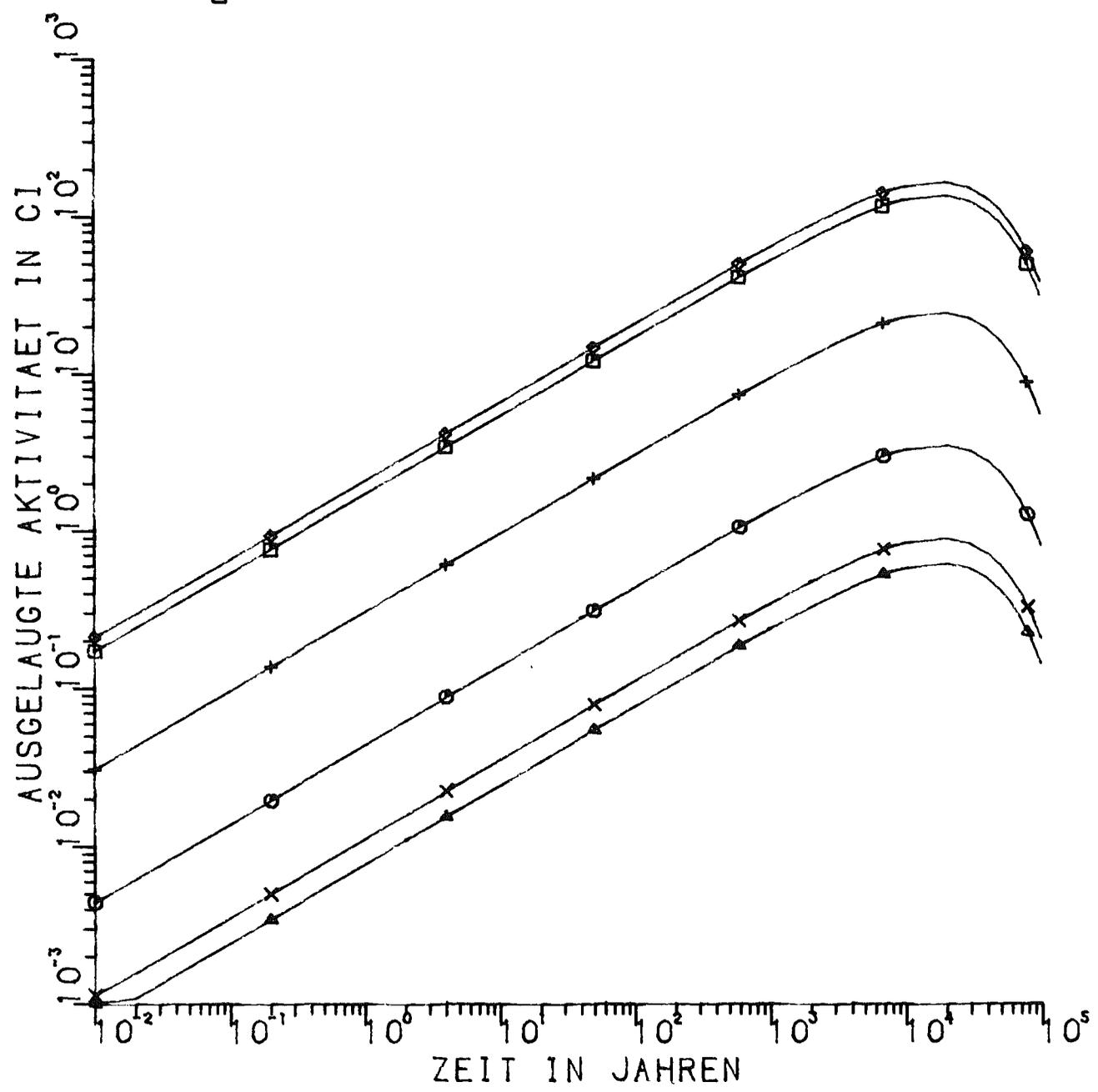


Abb. 3: Ausgelaugte Pu-239 Aktivität aus verschiedenen Abfallarten von 1400 t wiederaufgearbeitetem Uran als Funktion der Zeit nach \sqrt{t} - Abhängigkeit

- X SQRT (T) ABHAENGLIGK.
- + KORROSION
- ▲ 0V + .5 • 0V • T
- ⊙ 0V + 0V • T
- ◻ LIN. ZEITABH.

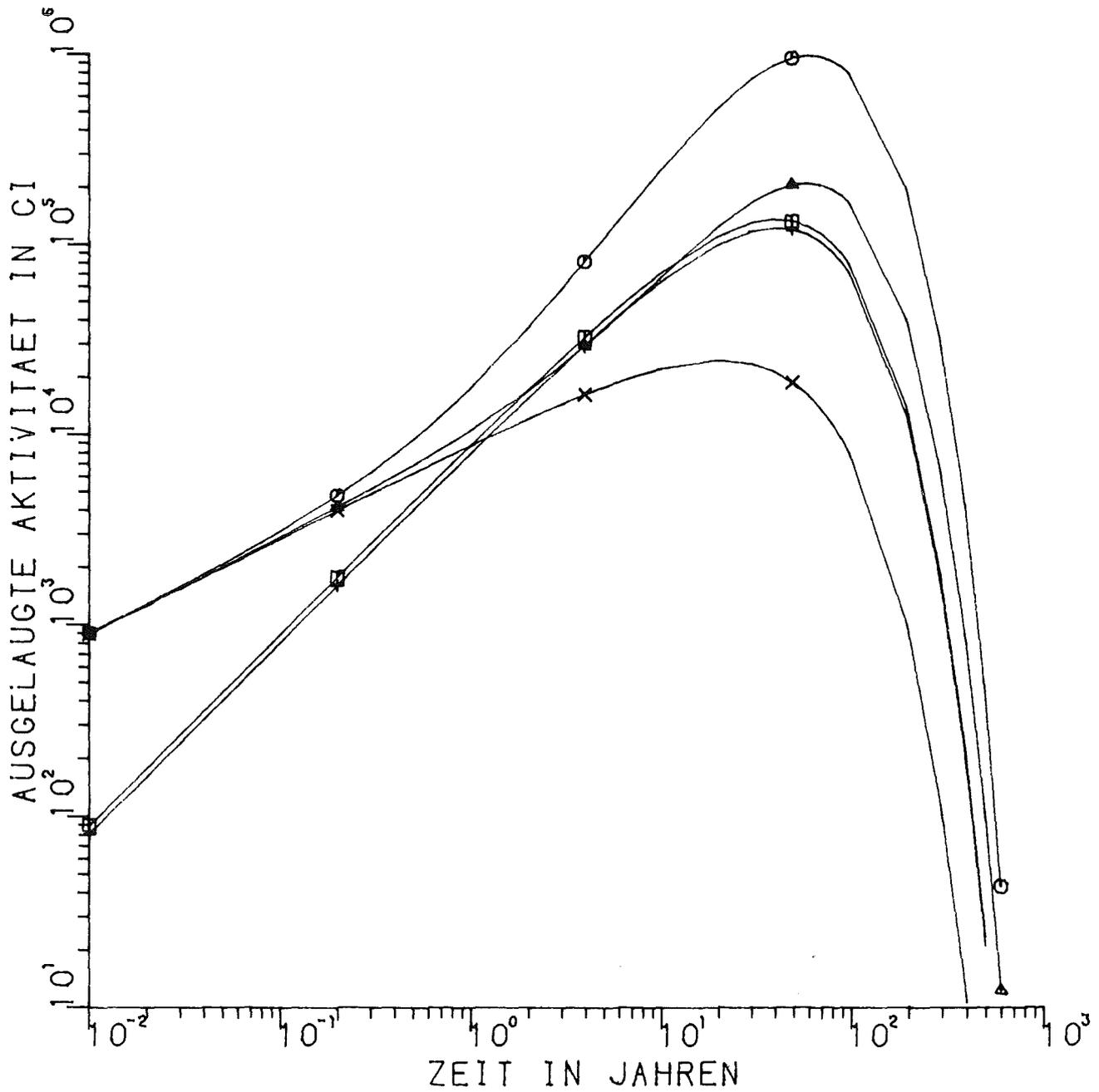


Abb. 4: Ausgelaugte Sr-90 Aktivität aus dem HAW von 1400 t wiederaufgearbeitetem Uran als Funktion der Zeit für verschiedene Auslaugmodelle

+ SQRT (T) ABHAENGLIGKEI

⊙ KORROSION

⊠ LIN. ZEITABHAENGLIGK.

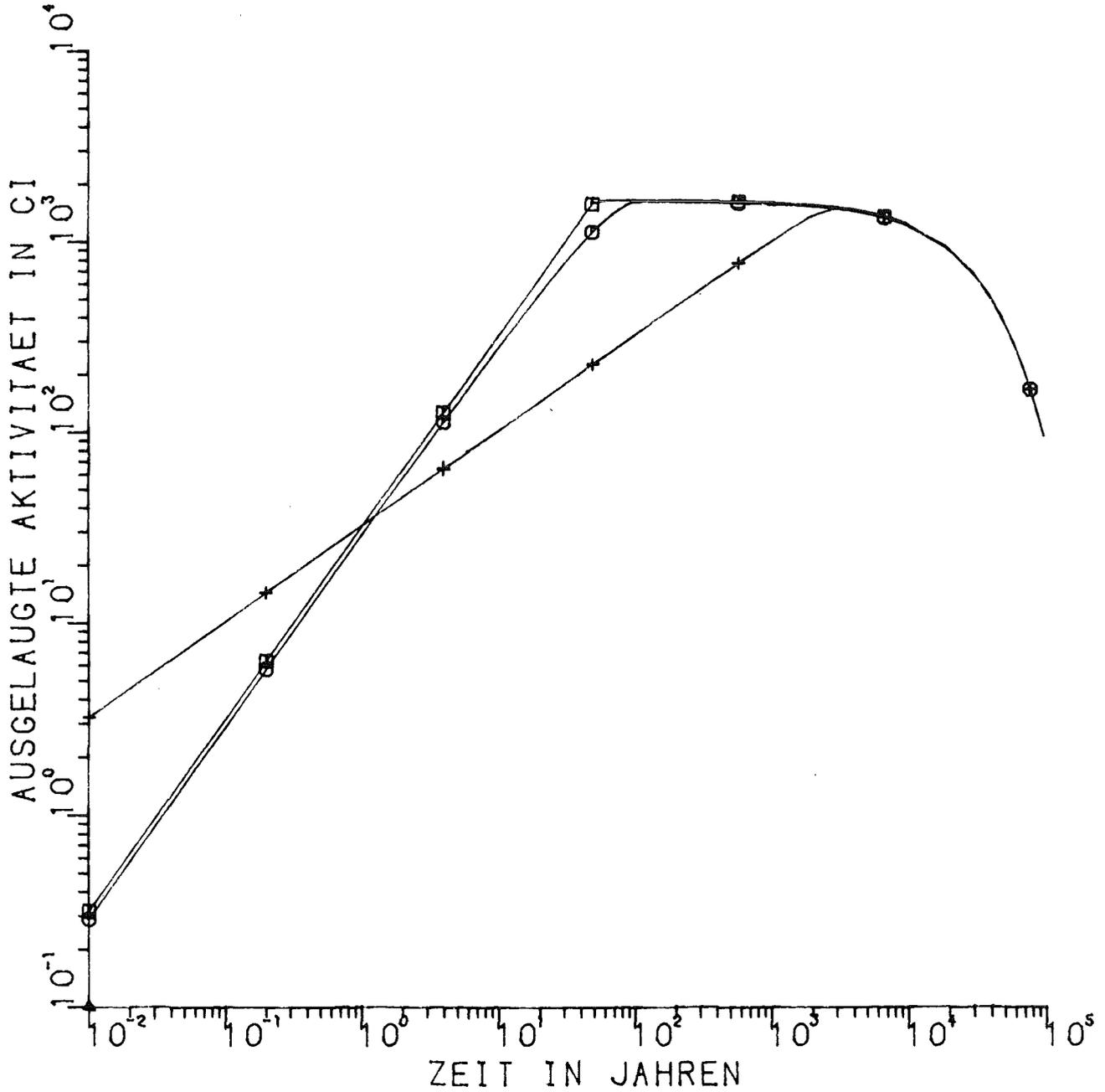


Abb. 5: Ausgelaugte Pu-239 Aktivität aus dem HAW von 1400 t wiederaufgearbeitetem Uran als Funktion der Zeit für verschiedene Auslaugmodelle
Auslaugrate nach Scheffler, et al, 1978 (für Glas) /4/

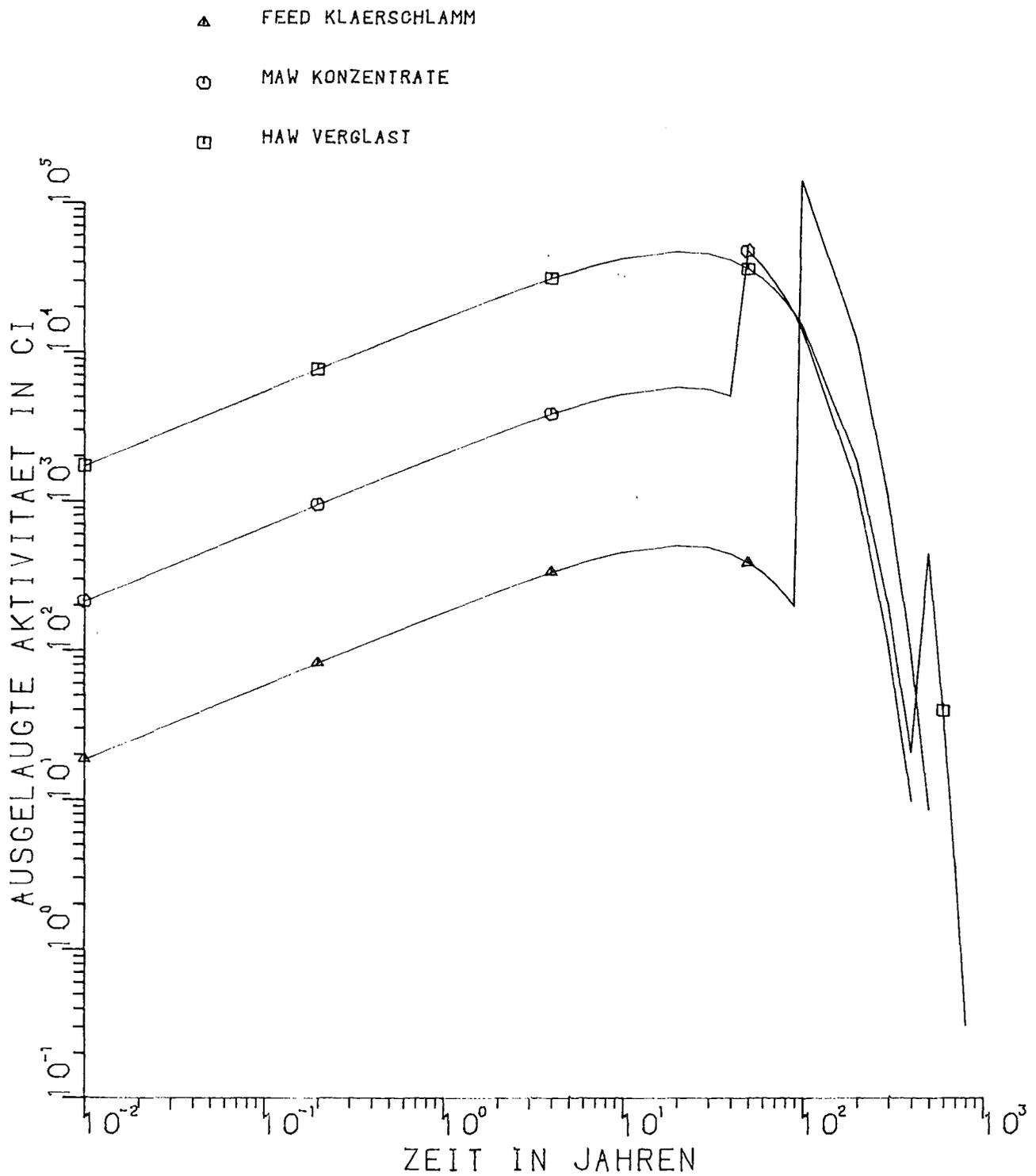


Abb. 6: Freigesetzte Sr-90 Aktivität aus verschiedenen Abfallarten von 1400 t wiederaufgearbeitetem Uran als Funktion der Zeit bei Berücksichtigung der Standzeit der Abfallprodukte

+ LAW (PU-HALTIG)

▲ FEED KLAERSCHLAMM

R_L bei 25°C

○ MAW KONZENTRATE

□ HAW VERGLAST

R_L bei 115°C

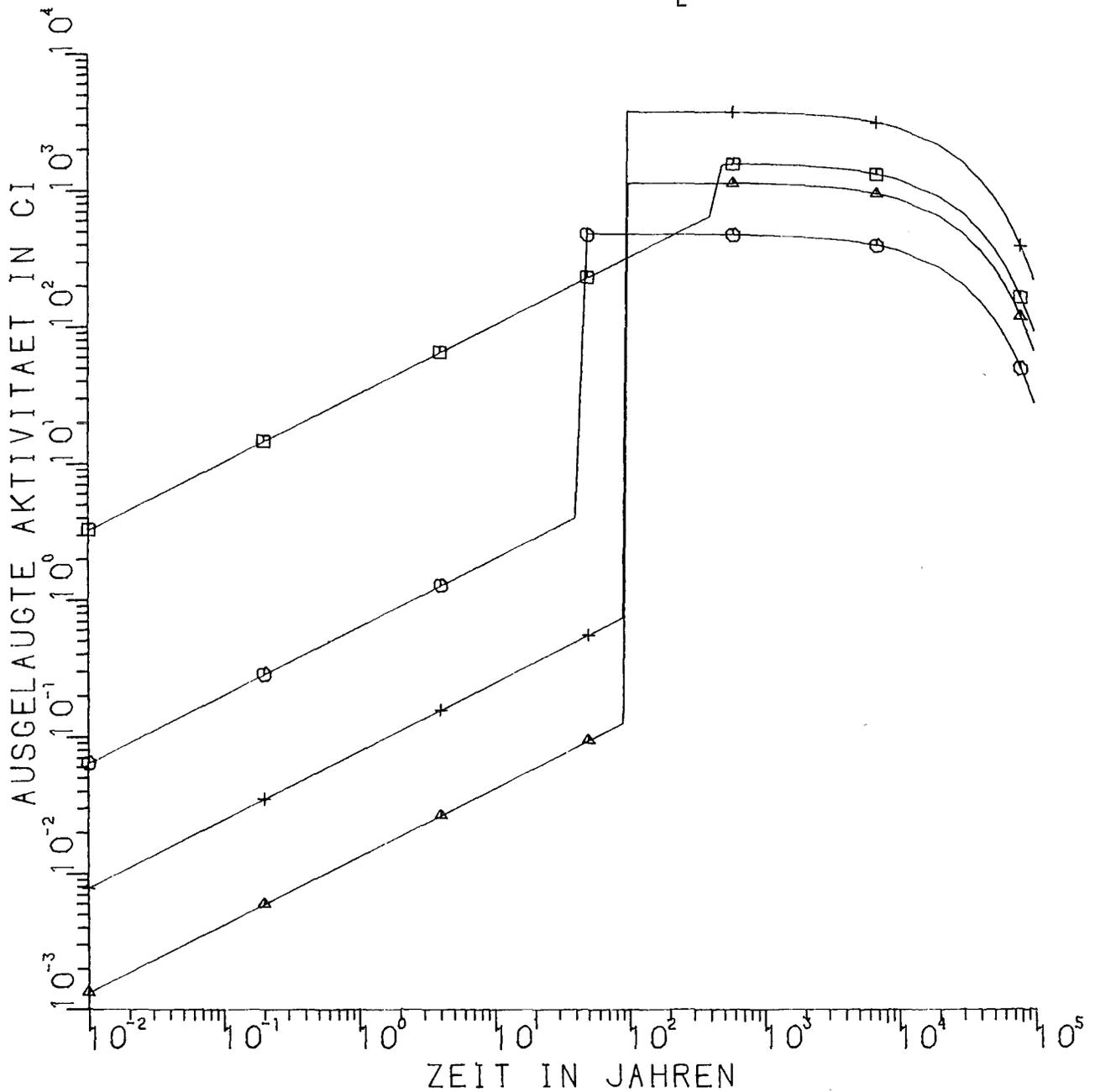


Abb. 7: Freigesetzte Pu-239 Aktivität aus verschiedenen Abfallarten von 1400 t wiederaufgearbeitetem Uran als Funktion der Zeit bei Berücksichtigung der Standzeit der Abfallprodukte

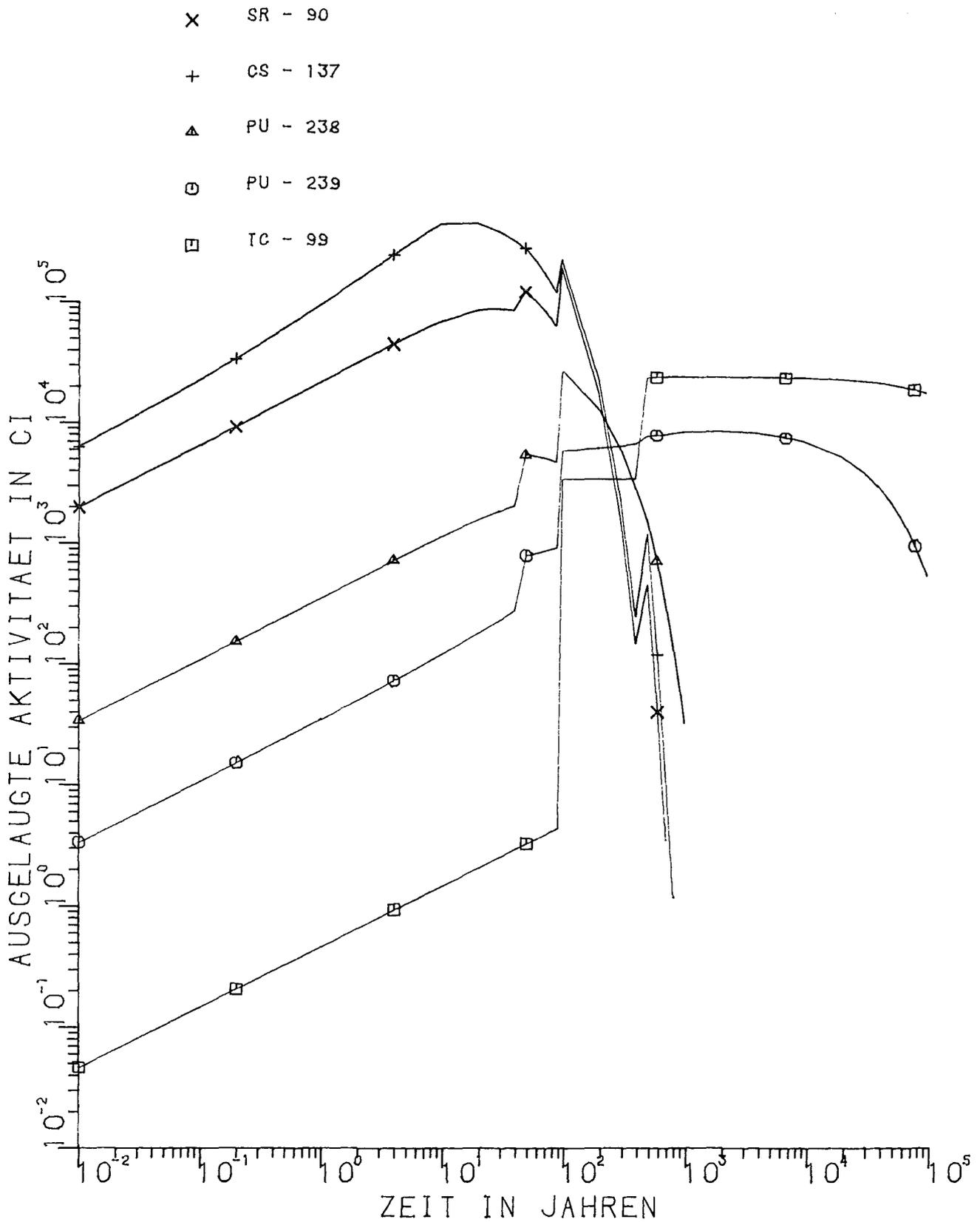


Abb. 8: Freigesetzte Gesamtaktivität verschiedener Radionuklide als Funktion der Zeit bei Berücksichtigung der Standzeiten der Abfallprodukte

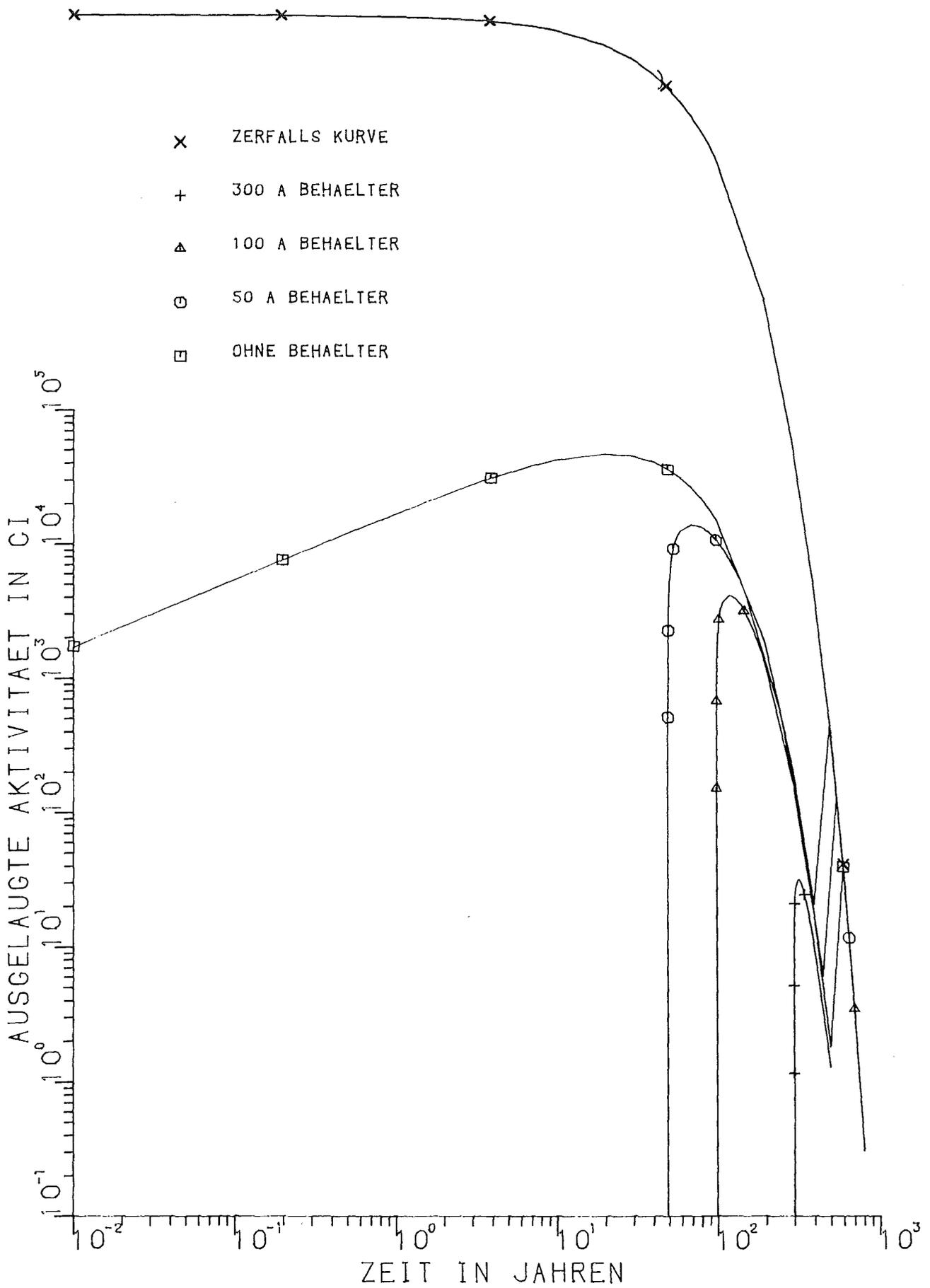


Abb. 9: Ausgelaugte Sr-90 Aktivität aus dem HAW von 1400 t wiederaufgearbeitetem Uran als Funktion der Zeit bei Berücksichtigung der Behälter und Produktstandzeit mit konstanter Auslaugrate

- ▲ ZERFALLS KURVE
- 300 A BEHAELTER
- OHNE BEHAELTER

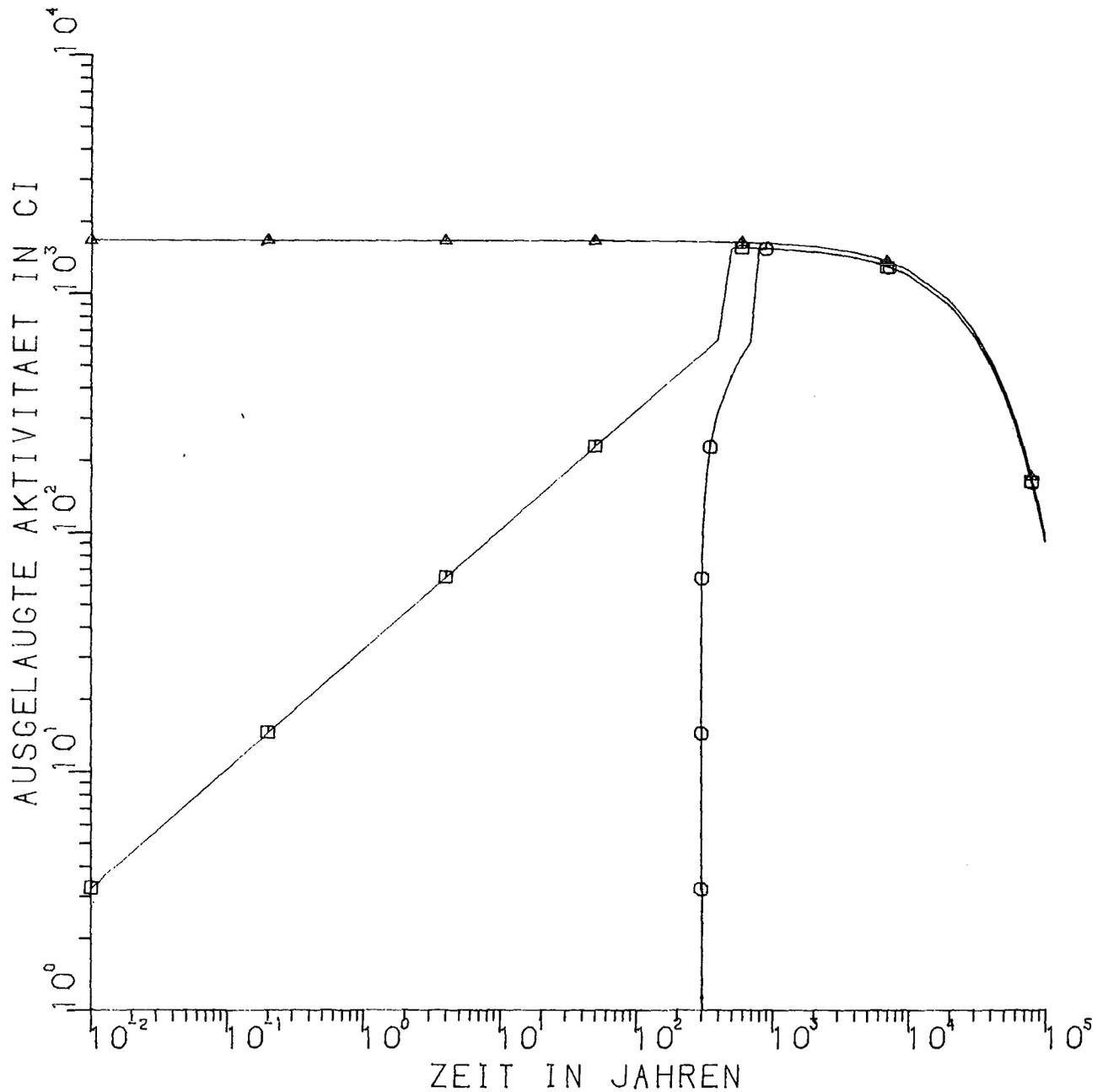


Abb. 10: Ausgelaugte Pu-239 Aktivität aus dem HAW von 1400 t wiederaufgearbeitetem Uran als Funktion der Zeit bei Berücksichtigung der Behälter und Produktstandzeit mit konstanter Auslaugrate

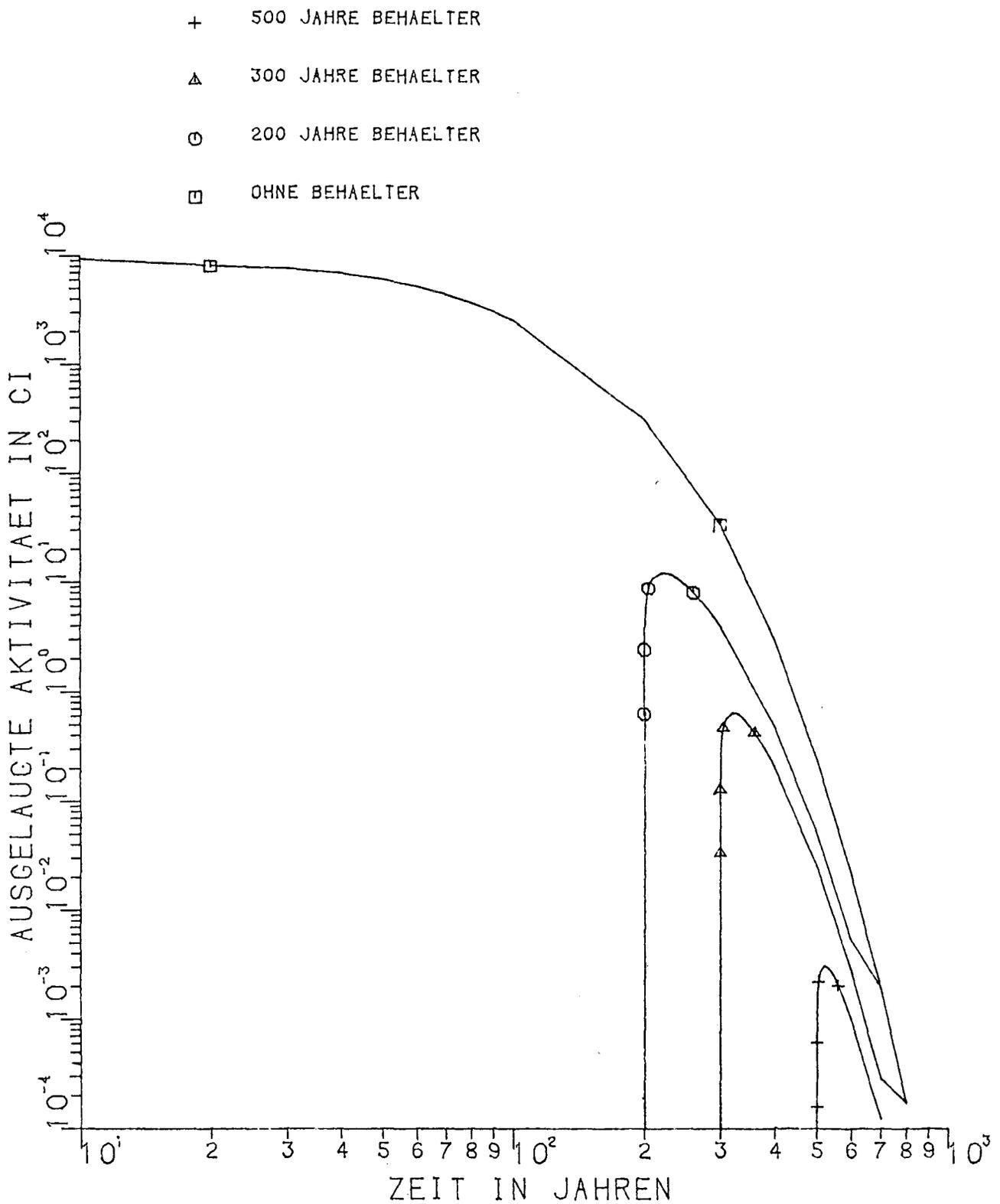


Abb. 11: Ausgelaugte Sr-90 Aktivität aus dem HAW von 1400 t wiederaufgearbeitetem Uran als Funktion der Zeit bei Berücksichtigung der Behälter und Produktstandzeit mit Auslaugrate als Funktion der Temperatur bzw. der Standzeit der Behälter

- + 500 A BEHAELTER
- ▲ 300 A BEHAELTER
- 200 A BEHAELTER
- OHNE BEHAELTER

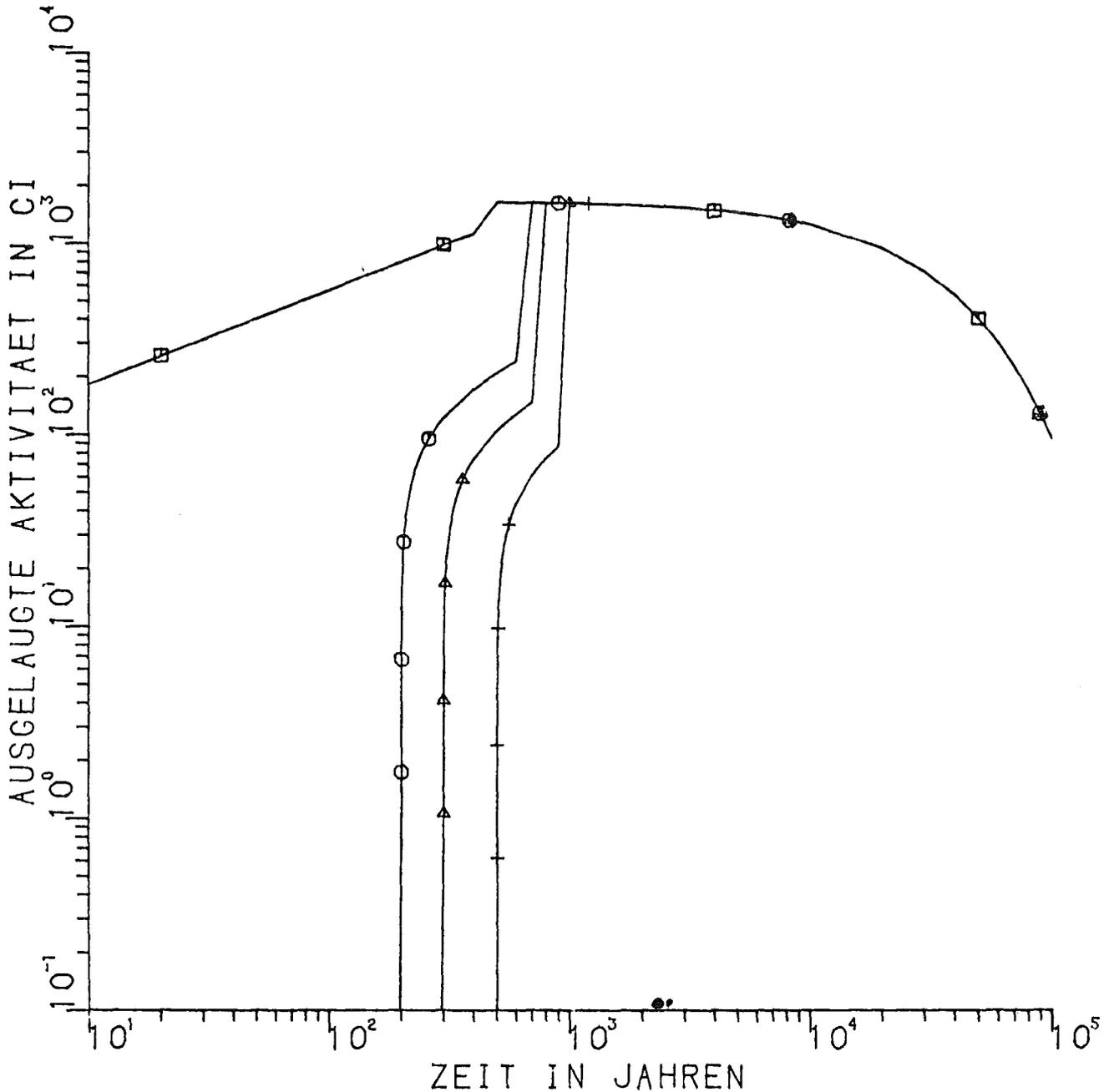
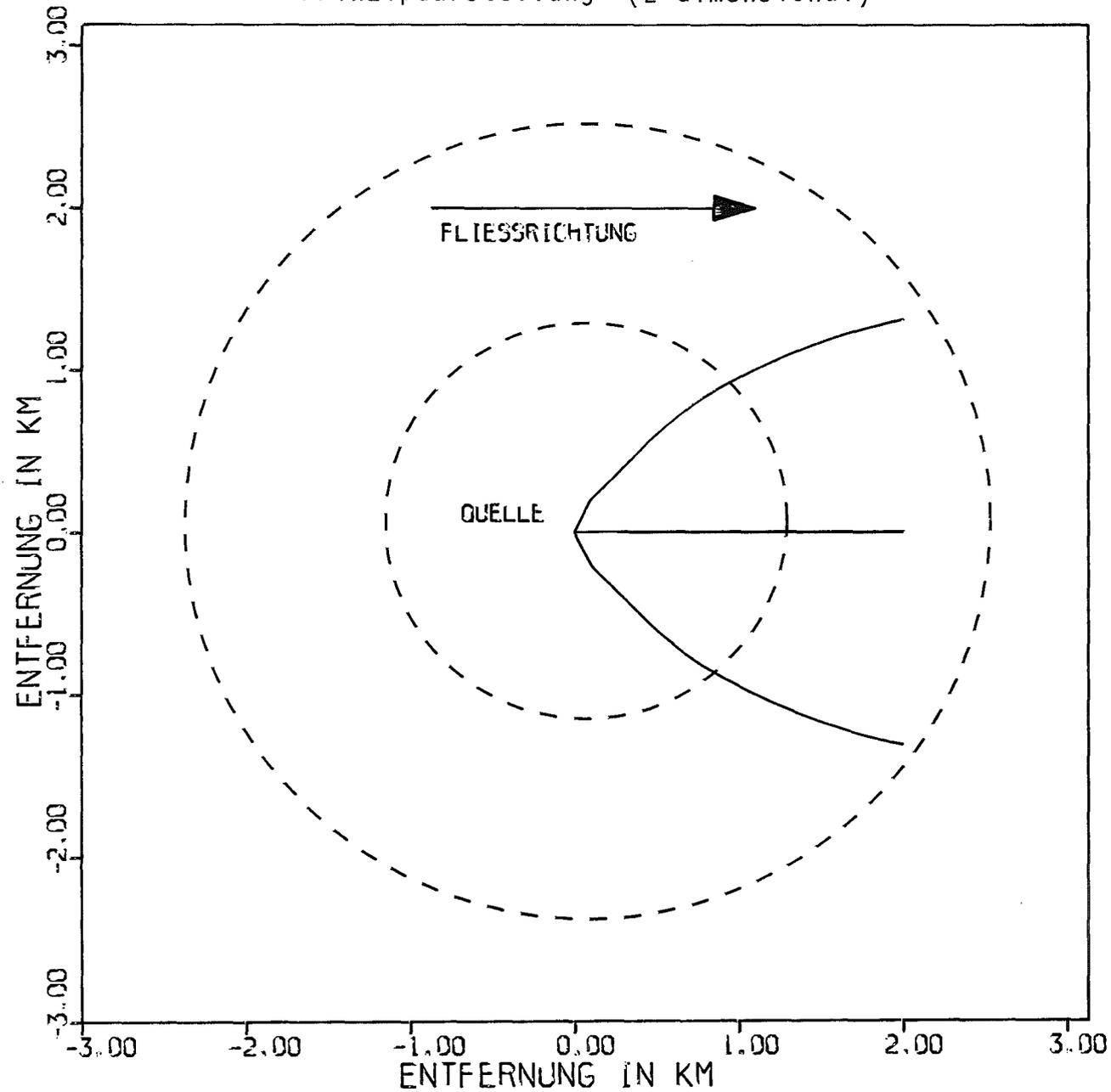


Abb. 11a: Ausgelaugte Pu-239 Aktivität aus dem HAW von 1400 t wiederaufgearbeitetem Uran als Funktion der Zeit bei Berücksichtigung der Behälter und Produktstandzeit mit Auslaugrate als Funktion der Temperatur bzw. der Standzeit der Behälter

Abb. 12:

NUKLIDAUSBREITUNG IM GRUNDWASSER

Prinzipdarstellung (2-dimensional)

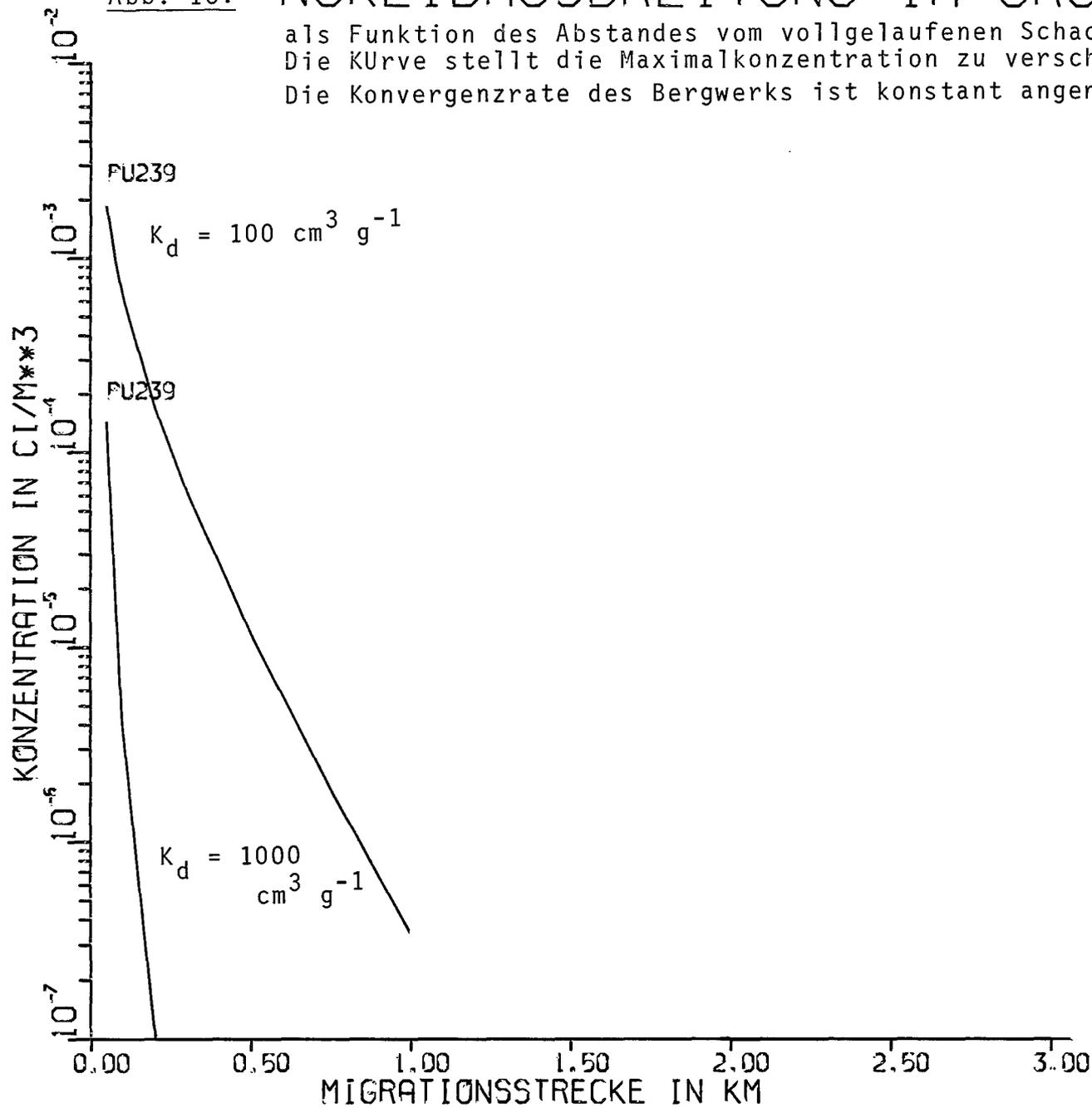


NUKLID : PU239
KD : 100.
 D_x/V : 3000. CM
 D_y/V : 300. CM
PACKUNG : 2.0 G/CM³
POROS. : 0.10
 V_{H_2O} : 2.7 CM/TAG

Abb. 13:

NUKLIDAUSBREITUNG IM GRUNDWASSER

als Funktion des Abstandes vom vollgelaufenen Schacht für Pu-239.
Die Kurve stellt die Maximalkonzentration zu verschiedenen Zeitpunkten dar.
Die Konvergenzrate des Bergwerks ist konstant angenommen.



$D_x/V = 3000, \text{ CM}$

$D_y/V = 300, \text{ CM}$

PACKUNG = $2,0 \text{ G/CM}^3$

POROS. = $0,10$

$V_{H_2O} = 2,7 \text{ CM/TAG}$

NUKLID = PU239

KD = $100,$

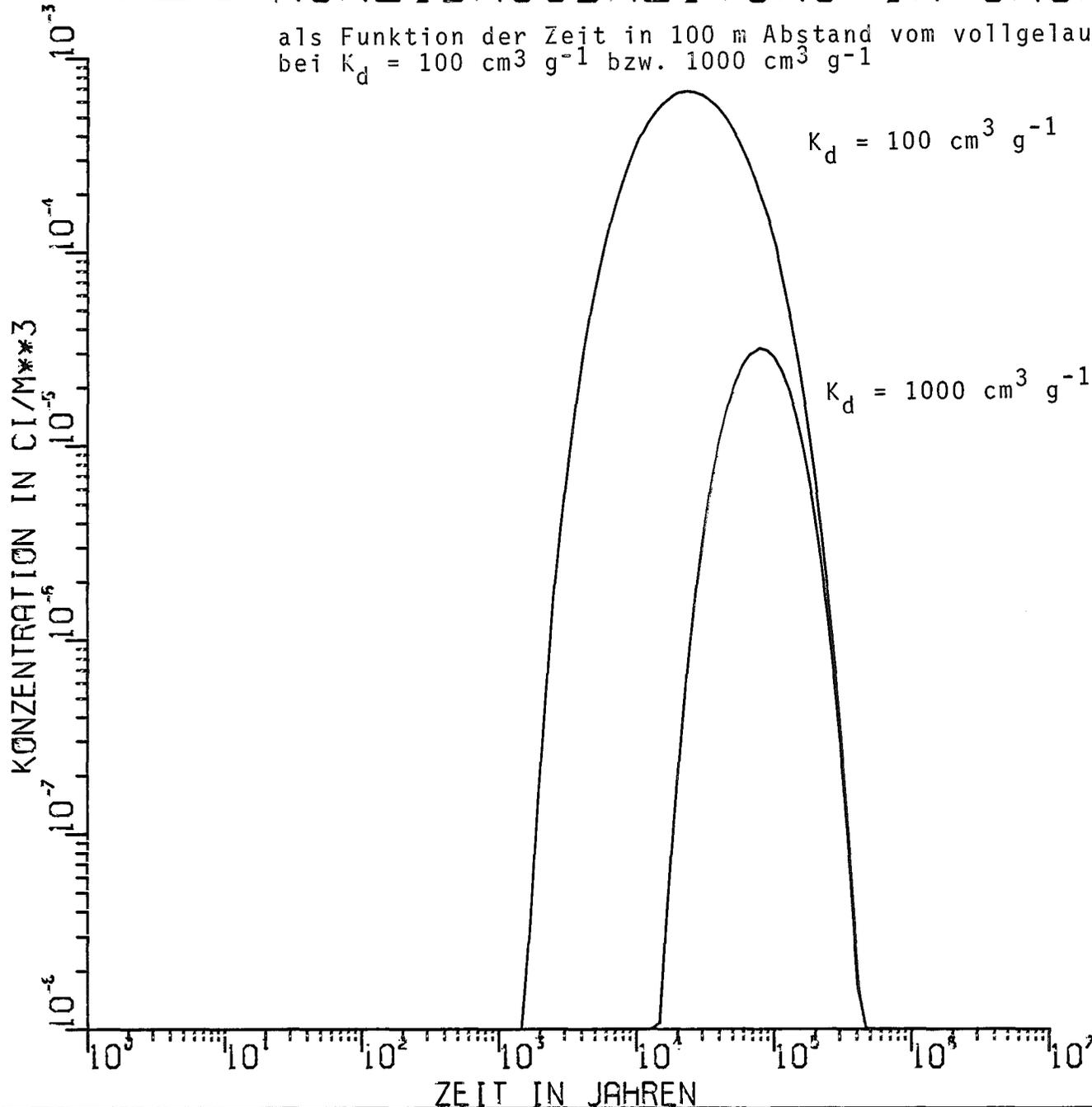
NUKLID = PU239

KD = $1000,$

Abb. 14:

NUKLIDAUSBREITUNG IM GRUNDWASSER

als Funktion der Zeit in 100 m Abstand vom vollgelaufenen Schacht für Pu-239
bei $K_d = 100 \text{ cm}^3 \text{ g}^{-1}$ bzw. $1000 \text{ cm}^3 \text{ g}^{-1}$



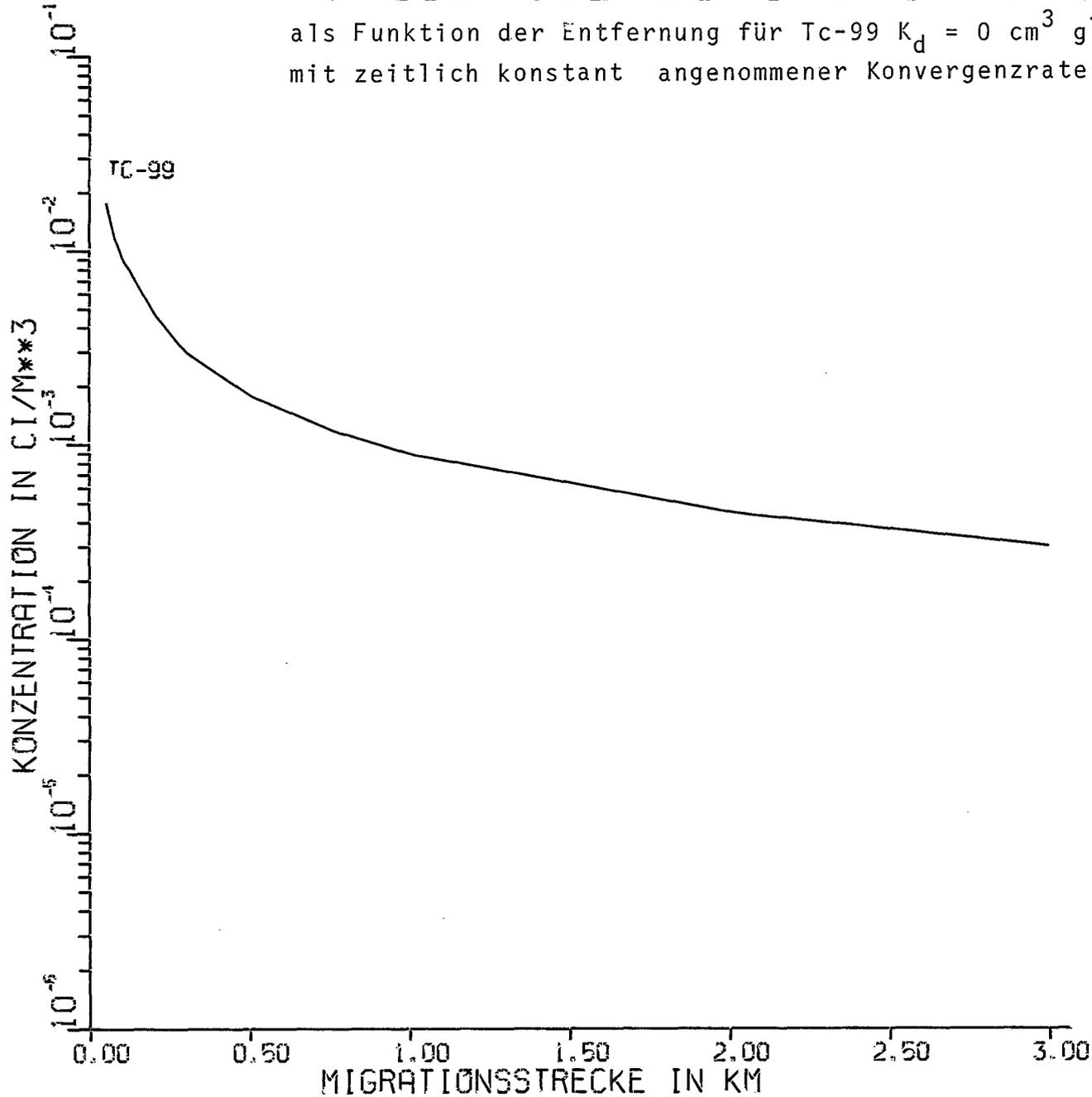
- X : 100. METER
- D_x/V : 3000. CM
- D_y/V : 300. CM
- PACKUNG: 2.0 G/CM³
- POROS. : 0.10
- V_{H_2O} : 2.7 CM/TAG
- NUKLID : PU239
- KD : 100.
- NUKLID : PU239
- KD : 1000.

Abb. 15:

NUKLIDAUSBREITUNG IM GRUNDWASSER

als Funktion der Entfernung für Tc-99 $K_d = 0 \text{ cm}^3 \text{ g}^{-1}$

mit zeitlich konstant angenommener Konvergenzrate des Bergwerks



D_x/V : 3000. CM

D_y/V : 300. CM

PACKUNG: 2.0 G/CM³

POROS. : 0.10

V_{H2O} : 2.7 CM/TAG

NUKLID : Tc-99

KD : 0.

Die Autoren danken Herrn Dr. Krause, Herrn Dr. Kroebel, Herrn Dr. Kühn, Herrn Prof. Dr. Levi und Herrn Prof. Dr. Memmert für wertvolle Anregungen und Diskussionen.