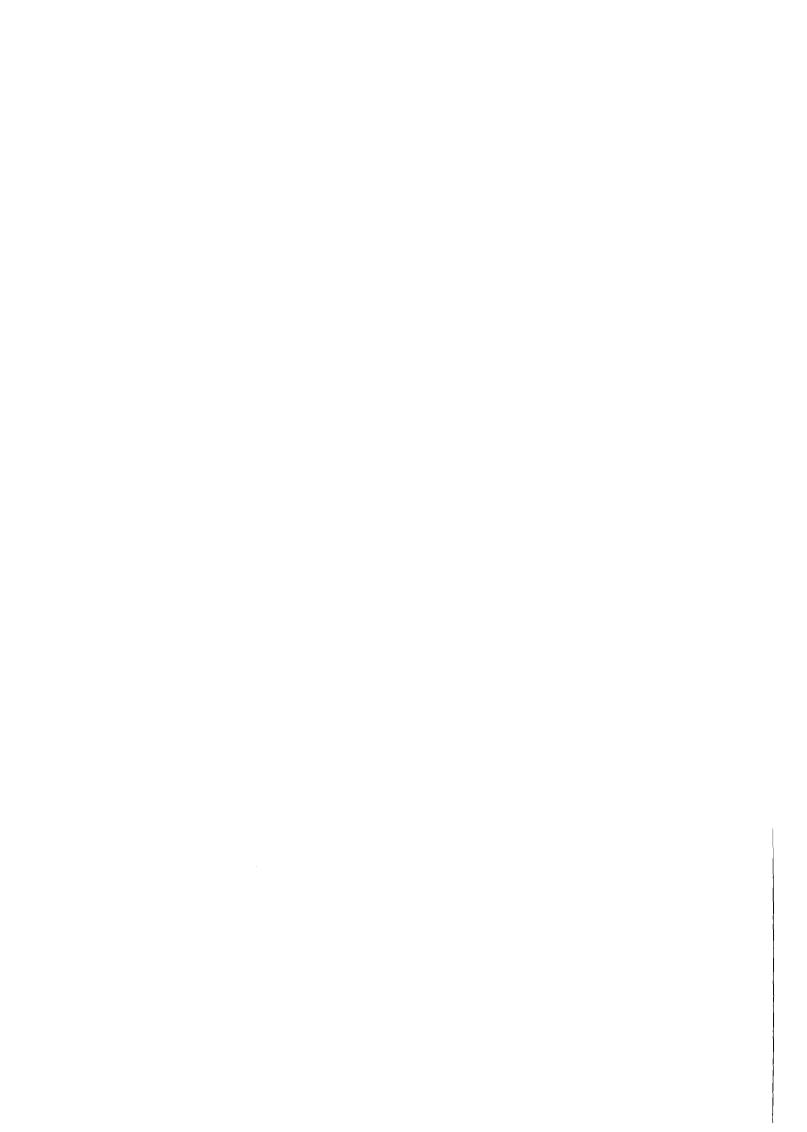
KfK 3222 Dezember 1981

Zerfallsrechnungen verschiedener mittelaktiver und actinidenhaltiger Abfälle des LWR-Brennstoffkreislaufes

Teil II: Radiotoxizitätsvergleich

H. O. Haug Institut für Heiße Chemie Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

Kernforschungszentrum Karlsruhe



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Institut für Heiße Chemie Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

KfK 3222

PWA 74/81

ZERFALLSRECHNUNGEN VERSCHIEDENER
MITTELAKTIVER UND ACTINIDENHALTIGER
ABFÄLLE DES LWR-BRENNSTOFFKREISLAUFES.

TEIL II. RADIOTOXIZITÄTSVERGLEICH

H.O. HAUG

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH ISSN 0303-4003

Kurzfassung

- 1. Der Radiotoxizitätsindex als inhärente Eigenschaft des Radionuklidinventars wurde für die mittelaktiven und actinidenhaltigen Abfälle (Hüll- und Strukturmaterial, Feedklärschlamm, wässrigen mittelaktiven Prozeßabfall aus der Wiederaufarbeitung, schwachaktiven Alpha-Abfall und mittelaktiven Reaktorbetriebsabfall) einmal auf der Basis der Ingestionsgrenzwerte der Strahlenschutzverordnung und analog auf der Basis der neuen Grenzwerte der ICRP-Publ.Nr.30 berechnet. Diese neuen Grenzwerte der ICRP zeigen eine erheblich höher toxische Bewertung der Transurane und eine niedrigere für Sr-90, Tc-99 und Ra-226. Hieraus folgt, daß der jährliche Radiotoxizitätsindex der mittelaktiven und actinidenhaltigen Abfälle ebenso wie vom hochaktiven Abfall nach ca. 10 bis 100 Jahren von den Transuranen bestimmt wird.
- 2. Der Vergleich des Radiotoxizitätsindex der konditionierten mittelaktiven und actinidenhaltigen Abfälle mit einem gleichgroßen Volumen Uranerz ergibt, daß auf der Basis der Strahlenschutzverordnung der relative Radiotoxizitätsindex der mittelaktiven Abfälle nach weniger als 100 Jahren unter das Niveau von Pechblende, nach weniger als 2000 Jahren unter ein 3%iges Uranerz abfällt. Auf der Basis von ICRP-30 fällt der Index von Feedklärschlamm und Alpha-LAW nach ca. 1000 Jahren unter das Niveau der Pechblende, das Niveau des 3%-igen Uranerzes wird nach ca. 105 Jahren erreicht.
- 3. Beim Vergleich der Radiotoxizitätskonzentration der gesamten Endlagerschicht mit einer Uranerzlagerstätte zeigte sich, daß die Radiotoxizitätskonzentration auf der Basis von ICRP-30 der in einzelnen Bohrlöchern eingelagerten wärmeentwickelnden Abfälle (Hüll- und Strukturmaterial, Feedklärschlamm) nach weniger als 2000 Jahren (hochaktiver Abfall nach ca. 3000 Jahren) unter das Niveau einer Uranerzlagerstätte mit 0,2 %U fällt.

Dagegen fällt die Radiotoxizitätskonzentration des in Lagerkammern eingebrachten mittelaktiven Prozeßabfalles und des Alpha-LAW (nach ICRP-30) unter das Niveau einer Uranerzlagerstätte mit 0,4-6~ %U nach ca. $10^4~$ Jahren, unter 1~%U nach ca. $10^5~$ Jahren.

"Decay Calculations on Medium-Level and Actinide-Containing Wastes from the LWR Fuel Cycle.

Part II. Comparison of Radiotoxicity".

Abstract

- 1. The radiotoxicity index as inherent property of the radionuclide inventory was calculated for medium-level and actinidecontaining wastes (cladding hulls and fuel assembly structural
 materials, feed clarification sludge, medium-level aqueous process waste, low-level solid transuranium waste, and mediumlevel reactor operating waste). The calculations were based on
 the annual limits of intake of the German radiation concentration guide as well as the new values of annual limits of intake from ICRP-30. The latter imply a considerably higher
 rating of the toxicity of transuranium nuclides and a lower
 rating of Sr-90, Tc-99, and Ra-226. Thus, the annual radiotoxicity index of the medium-level and actinide-containing
 wastes as well as the high-level waste is controlled by the
 transuranics after 10 to 100 years.
- 2. From the comparison of the radiotoxicity index of the conditioned and packed medium-level and actinide-containing wastes with the same volume of uranium ore, it was evaluated that the relative radiotoxicity (based on the German RCG) of the medium-level wastes decreases below the level of pitch-blende after less than 100 years and below a 3 per cent uranium ore after less than 2000 of decay. However, based on ICRP-30, the relative radiotoxicity index decreases below the level of pitchblende after 1000 years and decays to the level of the 3 per cent uranium ore at about 10⁵ years.
- 3. The comparison of the radiotoxicity concentration of the total disposal layer with a uranium ore deposit shows that the

radiotoxicity concentration based on IRCRP-30 of the self-heating wastes placed in single boreholes (cladding waste; feed clarification sludge) decays within 2000 years (high-level waste within 3000 years) below the level of a uranium ore deposit of 0.2 % uranium. On the other hand it results that the radiotoxicity concentration of the medium-level process waste and the alpha-waste disposed off in disposal chambers decreases to the level of a uranium ore deposit with 0.4 to 6% uranium after about 10⁴ years, and 1% after about 10⁵ years.

INHALTSVERZEICHNIS:

| | | | Seite |
|----|---------------------------------------|---|-------|
| Ku | rzfassı | ang | I |
| Ab | stract | | III |
| Zu | sammen: | fassung | 1 |
| 1. | Einle | itung | 5 |
| 2. | Grenze | en vereinfachter radiologischer Modelle | |
| | und Ve | ergleiche | 9 |
| | 2.1 L: | iteraturübersicht | 9 |
| | 2.2 Grenzen einiger einfacher Modelle | | |
| | 2.3 A | nsätze zu erweiterten Modellbetrachtungen | 13 |
| 3. | Vergle | eich der Radiotoxizität von mittel- und | |
| | schwa | chaktiven Abfällen | 15 |
| | 3.1 | Basisdaten und Randbedingungen | 15 |
| | 3.1.1 | Auswahl der Wastetypen | 15 |
| | 3.1.2 | Randbedingungen für konditionierte Abfälle | 17 |
| | 3.1.3 | Radiotoxizität und Definition eines Radio- | |
| | | toxizitätsindex | 19 |
| | 3.2 | Vergleiche von Eigenschaften der Abfälle | |
| | | anhand der Nuklidinventare | 21 |
| | 3.2.1 | Jährlicher Radiotoxizitätsindex | 22 |
| | 3.2.2 | Radiotoxizitätsindex pro Abfall-Volumenein- | |
| | | heit | 22 |
| | 3.2.3 | Jährlicher Radiotoxizitätsindex auf der | |
| | | Basis der neuen Grenzwerte der ICRP-30 | 23 |

| | 3.3 | vergieich der Radiotoxizität von Konditionier- | | | | |
|----|-------|--|----|--|--|--|
| | | ten Abfällen mit Uranmineralien | 29 | | | |
| | 3.3.1 | Allgemein | 29 | | | |
| | 3.3.2 | Definition eines relativen Radiotoxizitäts- | | | | |
| | | index | 30 | | | |
| | 3.3.3 | Relativer Radiotoxizitätsindex der mittel- | | | | |
| | | aktiven und ≪-haltigen Abfälle (Basis Strah- | | | | |
| | | lenschutzverordnung) | 31 | | | |
| | 3.3.4 | Änderung des Radiotoxizitätsindex von Natur- | | | | |
| | | uran auf der Basis von ICRP-30 | 32 | | | |
| | 3.3.5 | Relativer Radiotoxizitätsindex der mittelakti- | | | | |
| | | ven und ≪-haltigen Abfälle auf der Basis von | | | | |
| | | ICRP-30 | 33 | | | |
| | 3.4 | Vergleich von Endlagerfeld und Uranerzlager- | | | | |
| | | stätte | 37 | | | |
| | 3.4.1 | Allgemein | 37 | | | |
| | 3.4.2 | Definitionen und Randbedingungen | 37 | | | |
| | 3.4.3 | Radiotoxizitätskonzentration vom Endlagerfeld | | | | |
| | | im Vergleich zu einer Uranerzlagerstätte auf | | | | |
| | | der Basis der Strahlenschutzverordnung | 41 | | | |
| | 3.4.4 | Radiotoxizitätskonzentration vom Endlager- | | | | |
| | | feld im Vergleich zu einer Uranerzlagerstätte | | | | |
| | | auf der Basis von ICRP-30 | 42 | | | |
| | | | | | | |
| 4. | Ermit | tlung des jährlichen Radiotoxizitätsindex der | | | | |
| | einze | lnen mittelaktiven und actinidenhaltigen Abfälle | | | | |
| | | | | | | |
| | 4.1. | Jährlicher Radiotoxizitätsindex von Hüll- und | | | | |
| | | Strukturmaterialabfall | 49 | | | |
| | 4.1.1 | Jährlicher Radiotoxizitätsindex von HSM auf der | | | | |
| | | Basis der Strahlenschutzverordnung | 49 | | | |
| | 4.1.2 | Jährlicher Radiotoxizitätsindex von HSM auf der | | | | |
| | | Basis der Grenzwerte von ICRP-30 | 50 | | | |
| | | | | | | |

| | 4.2 | Jährlicher Radiotoxizitätsindex von Feed- | |
|----|--------|--|-----|
| | | klärschlamm | 56 |
| | 4.2.1 | Jährlicher Radiotoxizitätsindex von FKS | |
| | | auf der Basis der Strahlenschutzverordnung | 56 |
| | 4.2.2 | Jährlicher Radiotoxizitätsindex von FKS auf | |
| | | der Basis von ICRP-30 | 57 |
| | 4 2 | TULUNIAN DANIALANIAN DANIALANIAN DANIAN DANI | |
| | 4.3 | Jährlicher Radiotoxizitätsindex von wässrigem | 62 |
| | 121 | Prozeß-MAW Jährlicher Radiotoxizitätsindex von MLLW auf | 02 |
| | 4.3.1 | der Basis der Strahlenschutzverordnung | 62 |
| | 1 3 2 | Jährlicher Radiotoxizitätsindex von MLLW nach | 02 |
| | 4.3.2 | ICRP-30 | 63 |
| | | | |
| | 4.4 | Jährlicher Radiotoxizitätsindex von festem, | |
| | | schwachaktivem Alpha-Abfall | 69 |
| | 4.4.1 | Jährlicher Radiotoxizitätsindex von α-LAW auf | |
| | | der Basis der Strahlenschutzverordnung | 69 |
| | 4.4.2 | Jährlicher Radiotoxizitätsindex von ≪- LAW auf | |
| | | der Basis von ICRP-30 | 69 |
| | 4.5 | Jährlicher Radiotoxizitätsindex von mittel- | |
| | | aktivem Reaktorbetriebsabfall | 73 |
| 5. | Litera | aturverzeichnis | 74 |
| | | | |
| 6. | Abkür | zungen | 78 |
| | Anhang | 1 | 79 |
| | | | , , |
| | A1.1 | Allgemein | 81 |
| | A1.2 | Randbedingungen und Definitionen | 82 |
| | A1.3 | Zerfallskurven von HAW | 85 |
| | Al.4 | Vergleich der Radiotoxizität von LWR-Waste und Natururan | |
| | | | 91 |
| | A1.5 | Literaturverzeichnis (Anhang 1) | 101 |

Zusammenfassung

1. Der zeitliche Verlauf des Radiotoxizitätsindex als inhärente Eigenschaft des Radionuklidinventars wird für die mittelaktiven und actinidenhaltigen schwachaktiven Abfallströme des LWR-Brennstoffkreislaufes (Hüll- und Strukturmaterial (HSM), Feedklärschlamm (FKS), wässrigen mittelaktiven Prozeßabfall aus der Wiederaufarbeitung (MLLW), festen schwachaktiven Alphaabfall (α -LAW) und mittelaktiven Reaktorbetriebsabfall) berechnet und mit dem hochaktiven Abfall verglichen.

Der jährliche Radiotoxizitätsindex für Ingestion auf der Basis der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr nach der Strahlenschutzverordnung fällt bei den hochaktiven Abfällen in den ersten 300-400 Jahren um mehr als 3 Größenordnungen ab. Danach erfolgt nur noch ein sehr langsamer Abfall von weiteren 2 Größenordnungen bis ca. 105 Jahre. Bis zu einer Zerfallszeit von ca. 300 Jahren wird der jährliche Radiotoxizitätsindex des hochaktiven Abfalls überwiegend von den Spaltprodukten Sr-90 und Cs-137 bestimmt, danach von den langlebigen Actiniden Americium (bis über 104 Jahre), Plutonium und Neptunium (bis ca. 105 Jahre). Nach mehr als 105 Jahre steigt die Kurve des Radiotoxizitätsindex auf ein kleines Maximum an, das durch die Zerfallsprodukte Thorium-230, Radium-226 u.a. hervorgerufen wird.

Die neuen - bisher teilweise publizierten -Inkorporationsgrenzwerte der International Commission on Radiological Protection (ICRP Publ.Nr.30) zeigen eine erheblich höher toxische Bewertung der Transuranisotope und niedrigere für Sr-90, Tc-99 (und Radium). Beim hochaktiven Abfall wird der jährliche Radiotoxizitätsindex nach der neuen Bewertung bis ca. 100 Jahre gleichermaßen von den Transuranen (hier Cm und Am) und den Spaltprodukten (Sr-90, Cs-137) bestimmt und klingt in diesem Zeitraum um ca. 1 Größenordnung ab. Nach mehr als 100 Jahren überwiegt die Radiotoxizität der langlebigen Actiniden Am, Np und Pu und fällt bis 10^5 Jahre um weitere 2 Größenordnungen ab.

Der jährliche Radiotoxizitätsindex auf der Basis der Strahlenschutzverordnung von den mittelaktiven Abfällen nimmt im Zeitraum von 500-600 Jahren um 2-4 Zehnerpotenzen ab, wobei die Werte um einen Faktor 300 bis 50 niedriger als beim hochaktiven Abfall liegen.

In gleicher Weise wird auch der jährliche Radiotoxizitätsindex auf der Basis der Grenzwerte der ICRP-30 bei den actinidenhaltigen mittelaktiven Abfällen (HSM, FKS, bereits nach 10 bis 100 Jahren von den Transuranen bestimmt. Der jährliche Radiotoxizitätsindex klingt bis 1000 Jahre beim FKS um einen Faktor ca. 300, beim HSM um ca. 100 und beim MLLW um etwa 10 ab, und liegt dabei um ca. 2 Zehnerpotenzen unter dem hochaktiven Abfall. Der jährliche Radiotoxizitätsindex von ∠LAW durchläuft wegen der Neubildung von Am-241 aus Pu-241 ein Maximum bei ca. 100 Jahren und liegt nach 1000 Jahren noch in der Größe des Ausgangswertes (ca. einem Faktor 20 niedriger als der hochaktive Abfall). Bis 105 Jahre fällt der Radiotoxizitätsindex dann um 2 Zehnerpotenzen ab.

Langzeitig (>1000 Jahre) fällt der jährliche Radiotoxizitätsindex der mittelaktiven Abfälle nur noch langsam, entsprechend der langen Halbwertszeiten der bestimmenden Actiniden, ab und liegt hierbei um einen Faktor 20 bis 5 (bei α -LAW um den Faktor 10 bis 2) niedriger als beim hochaktiven Abfall.

Langzeitig (>1000 Jahre) bleibt der jährliche Radiotoxizitätsindex des Nuklidinventars der mittelaktiven Abfälle um einen Faktor ≥100, des α-LAW um einen Faktor 20 bis 50 unter den Werten des hochaktiven Abfalls.

2. Aus dem Vergleich des Radiotoxizitätsindex der mittelaktiven und actinidenhaltigen schwachaktiven Abfälle mit Natururan (Uranerzen) auf der Basis gleichgroßer Volumina von Abfallgebinden und Uranerzen wurde ein relativer Radiotoxizitätsindex abgeleitet.

Der relative Radiotoxizitätsindex auf der Basis der Strahlenschutzverordnung liegt bei den mittelaktiven Abfällen HSM und FKS nach weniger als 100 Jahren niedriger als Pechblende (60 Gew.-%U). In Bezug auf die bisherigen ASSE-II-Einlagerungsbedingungen fallen mittelaktiven Abfälle bei diesem Vergleich nach mehr als 1000 Jahren, der α-LAW nach ca. 2000 Jahren, unter das Radiotoxizitätsniveau eines 3%igen Uranerzes ab. Auf das Niveau eines Uranerzes mit 0,2% U fällt der konditionierte wäßrige Prozeß-MAW nach ca. 500 Jahren, das HSM nach ca. 104 Jahren ab. Feedklärschlamm und &-LAW liegen auch langzeitig (103 bis 105 Jahre) um einen Faktor 20 bis 4 über dem 0,2%igen Uranerz.

Aus den Änderungen der Grenzwerte in ICRP-30 folgt, daß der Radiotoxizitätsindex von HSM nach ca. 100 Jahren, FKS und α -LAW nach ca. 1000 Jahren unter das Vergleichsniveau der Pechblende abfällt. Das Niveau eines 3%igen Uranerzes wird von MLLW nach ca. 2000 Jahren, HSM nach ca. 10^4 , FKS und α -LAW nach ca. 10^5 bis 10^6 Jahren erreicht.

3. Der Vergleich von Waste mit Natururan wurde auf die gesamte Endlagerschicht ausgedehnt, wo aus Gründen der Zerfallswärmeableitung der hochaktive Abfall, das Hüll- und Strukturmaterial und der Feedklärschlamm in einzelne Bohrlöcher in kleinen Einheiten über eine große Endlagerschicht verteilt wird. Der Vergleich erfolgt mit demselben Volumen einer Uranerzlagerstätte mit 0,2 Gew.-% Uran.

Auf der Basis der Strahlenschutzverordnung sinkt die Radiotoxizitätskonzentration der Wastelagerschicht (HAW, FKS, HSM) nach 500 Jahren bereits um eine Größenordnung unter das Vergleichsniveau der Uranerzlagerstätte und liegt langzeitig (>1000 Jahre) mehr als 2 Zehnerpotenzen darunter.

Auf der Basis von ICRP-30 fällt die Radiotoxizitätskonzentration des HAW nach ca. 3000 Jahren, des HSM und FKS nach 300 bzw. 2000 Jahren unter das Vergleichsniveau. Langzeitig sinkt der HAW bis zu einem Faktor 5, das HSM um 1-2 Größenordnungen und der FKS um einen Faktor 3-30 darunter.

4. Der analoge Vergleich erfolgte für die Radiotoxizitätskonzentration der mittelaktiven und actinidenhaltigen Abfälle in Lagerkammern vom Typ Versturz-, Stapel- und Absenkkammer mit einem gleichgroßen Volumen einer Uranerzlagerstätte.

Die Radiotoxizitätskonzentration der Abfälle, berechnet nach den Grenzwerten der Strahlenschutzverordnung, fällt nach ca. 10³ bis 10⁴ Jahren unter das Niveau einer Uranerzlagerstätte mit 0,2% U.

Die Zerfallskurven von α -LAW und MLLW (auf der Basis von ICRP-30) bleiben bis ca. 300 Jahre auf demselben Niveau etwa 2-3 Größenordnungen über dem Vergleichsniveau der Uranerzlagerstätte (0,2% U) und fallen sehr langzeitig auf dieses Niveau ab. Anders betrachtet liegen α -LAW und MLLW im Vergleich zu einer Uranerzlagerstätte nach 10^4 Jahren auf dem Niveau eines 0,3-6%igen Uranerzes, nach 10^5 Jahren auf dem Niveau eines 0,1-1%igen Uranerzes.

5. Die Radiotoxizitätsindizes geben (analog der Aktivität) nur die inhärenten radiotoxischen Eigenschaften von Radionuklidmischungen in Wasteform oder einem Vergleichsmaterial wieder und eignen sich für Plausibilitätsbetrachtungen und Veranschaulichung der Zusammenhänge. Radiotoxizitätsindizes können daher für sich allein keine Aussagen in der Sicherheitsanalyse eines Endlagers oder von Wastemanagementoptionen liefern, da sie nichts über die Wirkung der Barrieren einerseits und über Freisetzung, Transport- und Belastungspfade andererseits aussagen können. Der Vergleich von Radiotoxizitätsindizes von Waste und Natururan erlaubt daher auch für sich allein keine Ableitung einer zeitlichen Signifikanzgrenze (auch Pechblende ist ja nicht harmlos). Nur aus einer standortspezifischen Sicherheitsanalyse des Endlagers können Folgerungen über die Wirkung der mehrfachen Barrieren während langer Einschlußzeiten abgeleitet werden, in denen eine mögliche Freisetzung niedrig, im Rahmen des ALARA-Prinzips und der gesetzlichen Vorschriften kontrolliert aber nicht notwendigerweise null ist. Die Änderung der Bewertung der Toxizität von radioaktiven Abfällen kann bedeuten, daß eine zusätzlich erforderliche Sicherheitsspanne aus den für die Endlagerung vorgesehenen Barrieren kommen muß.

Die im vorliegenden Bericht zusammengestellten Daten und Vergleiche zeigen erneut die Notwendigkeit einer Sicherheitsanalyse des Endlagers - unter Berücksichtigung der standortspezifischen Eigenschaften - im Hinblick auf die langzeitige Isolierung der radiotoxischen Abfälle.

1. EINLEITUNG

In früheren Arbeiten /1, 2/ wurde zur Veranschaulichung der Radiotoxizität von hochaktiven Abfällen ein Vergleich mit der Radiotoxizität von natürlichen Uranerzen herangezogen. Der Vergleich erfolgte einerseits für HAW-Glasblöcke, anderseits für die gesamte Endlagerschicht mit Uranerzen von niedriger Urankonzentration (0.2 Gew.-%) bzw. Pechblende mit hoher Urankonzentration (60 Gew.-%). Darüberhinaus war dieser Vergleich in einem ersten Ansatz auch auf verfestigte mittelaktive Prozeßabfälle der Wiederaufarbeitung ausgedehnt worden /3/.

Auf Wunsch der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt sollten folgende ergänzende Untersuchungen durchgeführt werden:

- 1. Vergleich eines Einzelbehälters bzw. eines Lagerfeldes leicht- und mittelaktiver Abfälle mit einem U-Erz.
- Aufzeigen der Grenzen und Unzulänglichkeiten bei der Anwendung des Vergleichs von Gefährdungspotentialen über den Radiotoxizitätsindex.
- 3. Mögliche Entwicklung neuer Modellbetrachtungen, die die in 2.) aufgezeigten Mängel nicht mehr besitzen.

Die primäre und wesentliche Funktion eines Endlagers für radioaktive Abfälle besteht darin, den Ausschluß schädlicher Konzentrationen der enthaltenen Radionuklide aus der Biosphäre des Menschen zu gewährleisten. Die Grundlage der Einlagerung von radioaktiven Abfällen in stabile geologische Formationen des tiefen Untergrunds ist der Schutz der Biosphäre vor der Radiotoxizität bestimmter Isotope einschließlich solcher mit langen Halbwertszeiten und der chemischen Toxizität der Elemente. Es erscheint deshalb von Interesse die Radiotoxizität der Abfälle aus der Wiederaufarbeitung und anderer

Operationen der Kernbrennstoffkreisläufe nach Gesichtspunkten der Endlagerung zu vergleichen.

Die Charakterisierung der Abfälle und die Toxizitätsvergleiche gehen daher sowohl von den Gebinden der konditionierten Abfälle als auch von den Endlagerkonfigurationen (Lagerfelder mit Bohrlöchern oder Lagerkammern) aus. Für die Sicherheitsanalysen ist eine Einteilung des gesamten Endlagerzeitraumes nach der Betriebsphase gemäß Fig.1-1 in eine Spaltproduktphase, Actinidenphase und Zerfallsproduktphase zweckmäßig:

- Während der Spaltproduktphase herrscht die Aktivität und Radiotoxizität der Spaltprodukte vor. Die Zerfallswärme der Spaltprodukte führt zu einer Temperaturerhöhung der Gesteinsschichten um die eingelagerten Abfallgebinde. Die Länge der Spaltproduktphase wird durch den Zerfall der Spaltprodukte Cäsium und Strontium bedingt, die nach ca. 500 Jahren weitgehend abgeklungen sind.
- Es schließt sich die Actinidenphase an, in der die Aktivität und Radiotoxizität der Abfälle durch die Transuranisotope bestimmt wird. Die Wärmeentwicklung in den Abfällen
 ist weitgehend abgeklungen. Die Dauer der Actinidenphase
 liegt bei ca. 10⁵ Jahren.
- Sehr langfristig schließt sich der Zeitraum der Zerfallsprodukte and, in dem die restliche Aktivität und Radiotoxizität der Abfälle von den Zerfallsprodukten in den Actinidenzerfallsreihen bestimmt wird.

Für eine einfache Beschreibung des Radiotoxizitätspotentials in den Mischungen toxischer Radionuklide ist ein Index zweckmäßig, der den relativen Beitrag einzelner Isotopen oder von Nuklidgruppen in den markierten Zeitperioden beschreibt. Einige wichtige Parameter sind dabei die Menge (Aktivität) der einzelnen Radionuklide, ihre relative Toxizität, das Zerfall-

schema und die Folgeprodukte, der zeitliche Verlauf der Radiotoxizität etc. Es ist festzuhalten, daß der verwendete Radiotoxizitätsindex basierend auf den Grenzwerten der Strahlenschutzverordnung nur für die inhärenten Eigenschaften des Radionuklidspektrums in der betreffenden Wasteform und dessen zeitliche Änderung gültig ist. Mit dem Radiotoxizitätsindex wird nicht der Versuch gemacht, Aussagen über mögliche Freisetzungen und Ausbreitungsmechanismen und -pfade zu machen, die durch die chemischen und physikalischen Eigenschaften der Abfälle, Standortwahl, Barrierensysteme und anderen Maßnahmen des Wastemanagements beeinflußt werden können.

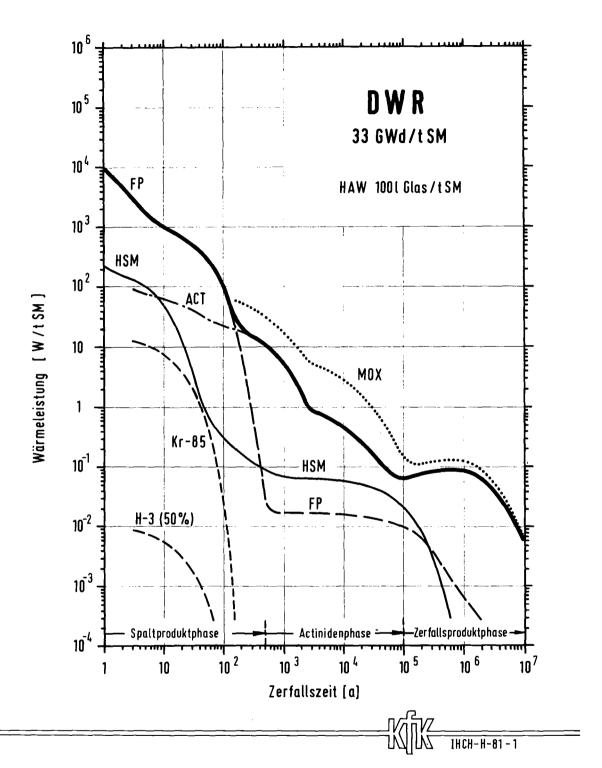


Fig. 1-1 Wärmeleistung von hochaktivem Abfall und von Hüll-und Strukturmaterial von LWR-Brennelementen.
(WA nach 3 a Kühlzeit)

2. Grenzen vereinfachter radiologischer Modelle und Vergleiche

2.1 Literaturübersicht

Eine eingehende Diskussion der in der Literatur vorgeschlagenen Toxizitäts- ("hazard") bzw. Sicherheitsparameter erfolgte in den Übersichtsartikeln von J. W. POSTON / 7/ und von J. W. VOSS /21/. In diesen Arbeiten werden auch die Vor- und Nachteile sowie die Anwendbarkeit auf langfristige Endlagerprobleme erörtert.

Es lassen sich generell drei Gruppen von Radiotoxizitäts-(bzw. Sicherheits-) Indizes zusammenfassen:

- In der ersten Gruppe einfache Parameter, die die Radiotoxizität als inhärente Eigenschaft des Materials, d. h. des Radionuklidinventars durch Wichtung der Aktivität wiedergeben, (z. B. "hazard measure" / 8, 15/, "hazard index" /24/);
- in der zweiten Gruppe Parameter, die das "theoretische Gefährdungspotential" bzw. die Radiotoxizität mit demjenigen von radioaktivem Material, dessen Niveau als akzeptabel angesehen wird, oder das in der Natur vorkommt, vergleichen (z. B. "Relativer Toxizitätsindex" /1/,
 "Equivalent Cylinder" /19/; hierher gehört auch der Vergleich mit der chemischen Toxizität von Elementen / 9/.
- in der dritten Gruppe schließlich spezielle Ableitungen, die auch die Freisetzung, die Ausbreitungswege und Transferfaktoren bis hin zur möglichen Strahlenexposition des Menschen einschließen sollen.

Der radioaktive Zerfall von Radionukliden oder Radionuklidmischungen, wie z.B. in Abfällen, ist durch die "Aktivität",
d.h. die Zerfälle pro Sekunde (Bequerel), als fundamentale
physikalische Größe definiert. Die Gesamtaktivität repräsentiert daher die maximale potentielle Quellstärke bei einer
Freisetzung.

Die Aktivität stellt keinen ausreichenden Index für die Radiotoxizität von Nukliden oder Nuklidmischungen dar, da die biologische Wirksamkeit abhängig ist von der Art des Zerfalls und der Strahlung, der Zerfallsenergie, dem biologischen Verhalten der Radionuklide, der biologischen Halbwertszeit etc. Es wurde daher versucht, durch eine Wichtung der Aktivität der einzelnen Radionuklide in einer Mischung mit den Inkorporationsgrenzwerten, wie sie von der International Commission on Radiological Protection (ICRP) /18/ empfohlen bzw. in den nationalen Strahlenschutzverordnungen /11/ aufgenommen wurden, zu Aussagen über die Toxizität von Radionuklidgemischen zu gelangen.

In der ersten Gruppe der Radiotoxizitätsindizes wurde bei der einfachsten und der am weitesten verbreiteten Methode das "hazard measure" / 8/ oder das "radiotoxic hazard measure" / 15/ als der Quotient aus der Aktivität der Radionuklide und der maximal zulässigen Konzentration der Nuklide in Wasser (oder Luft) gebildet und über die Radionuklidmischung aufsummiert. Diese Radiotoxizitätsindizes lassen sich aus den vorgegebenen Eigenschaften des Nuklidinventars der Abfälle auf einfache Weise aus deren Zusammensetzung berechnen (Computer-Programm ORIGEN) und der zeitliche Verlauf zeigt charakteristische langfristige Eigenschaften der Nuklidmischung.

Die maximal zulässigen Konzentrationen waren von der ICRP /18/ für strahlenexponiertes Personal für die 40-Stunden-Arbeitswoche oder für dauernde Exposition (168 Stunden pro Woche) für Ingestion (Wasser) oder Inhalation (Luft) - basierend auf der Dosis für das kritische Organ - empfohlen worden. Zusätzlich wurde allgemein davon ausgegangen, daß ein bestimmter Bruchteil dieser Grenzwerte, nämlich 1/10 der 168 Stunden-MZK, einen akzeptablen Grenzwert für Einzelpersonen der Bevölkerung darstellen. In den Richtlinien des Rates der Europäischen Gemeinschaften /16/, denen die neuen Grenzwerte der ICRP-30 zugrundeliegen, wird wiederum so verfahren.

In der Strahlenschutzverordnung /11/ wurden ausgehend von einer maximalen Körperdosis von 500 mrem/a als Basis der ICRP-2-Grenzwerte /18/ (übernommen in der 1. SSVO), die abgeleiteten Grenzwerte auf das 30-mrem-Konzept reduziert. Andererseits erfolgt bei der Neubestimmung der Inkorporationsgrenzwerte durch die ICRP-30 /20/ - basierend auf der effektiven Äquivalensdosis - eine starke Reduzierung der Grenzwerte zahlreicher langlebigen Nuklide der Actiniden, insbesondere Transurane.

In die 2. Gruppe der Radiotoxizitätsindizes sind die relativen (Radio-) Toxizitätsindizes zu rechnen, die das Verhältnis des hazard measure des Abfalls mit dem hazard measure der Vergleichsbasis angeben. Hier werden die toxischen Eigenschaften des Waste in Relation zu einem akzeptablen Gefährdungspotential wie der chemischen Toxizität anderer Elemente / 9/ oder der Radiotoxizität des ursprünglichen oder abgebauten Urans bzw. den mill tailings (die andererseits nicht mehr allgemein als ungefährlich angesehen werden) gesetzt /15/, oder mit natürlichen Uranvorkommen verglichen. Letzteres wurde angewandt für HAW-Gebinde und Pechblende /1/ bzw. das gesamte Endlagerfeld und eine Uranerzlagerstätte mit niedrigem Urangehalt /1/. In ähnlicher Weise verglich A. E. RINGWOOD /19/ die gesamte α-Aktivität der HAW-Gebinde in einem Einzelbohrloch mit einer gleichgroßen A-Aktivität eines umgebenden koaxialen Gesteinszylinders von niedrigem Urangehalt. Da die Aktivität des Abfalls mit der Zeit abnimmt, vermindert sich der Radius des "aquivalenten Zylinders" entsprechend.

In der 3. Gruppe der Radiotoxizitätsindizes sollen nicht nur die inhärenten Eigenschaften der Radionuklidmischungen im Waste berücksichtigt werden, sondern auch die Freisetzung, die Mobilität und Rückhaltung der Nuklide, die Transferfaktoren über verschiedene Ausbreitungspfade, die Belastungspfade und Dosisbelastung des Menschen. Zu den sehr unterschiedlichen Ansätzen hierzu gehören z. B. die Integration des langfristigen hazard measure über vorgegebene (geschätzte) relevante Zeitintervalle (periods of concern) /10, 17/, die Korrektur mit einem Wahrscheinlichkeitsfaktor für den Freisetzungs- und

Belastungspfad zum Menschen /17/ oder durch Transferfaktoren zur Berücksichtigung der Freisetzungs- und Ausbreitungspfade /12, 13/.

2.2 Grenzen einiger einfacher Modelle

Die physikalische Interpretation des hazard measure als Wasser- (oder Luft-) Volumen (in Kubikmeter) zur Verdünnung der Radionuklidkonzentration auf die maximal zulässige Konzentration führte einerseits von vorneherein leicht zu einer Fehlinterpretation über die tatsächliche radiologische Belastung des Menschen. Andererseits beinhaltet das hazard measure oder der hazard index keine Aussagen über Freisetzung, Unterschiede von löslichen oder unlöslichen Verbindungen, Mechanismen der Fixierung und Wanderung von Radionukliden etc. und erlaubt daher keine Aussagen über die potentielle Belastung von Menschen.

Die Relativierung des hazard measure zum Relativen Radiotoxizitätsindex gibt ebenfalls nur die inhärenten Eigenschaften der Nuklidinventare wieder. Die Parameter berücksichtigen nicht, daß der Abfall und das Vergleichsmaterial verschiedenen Freisetzungsmechanismen unterliegen würden und die eventuell freigesetzten radioaktiven Elemente unterschiedliche Ausbreitungsmechanismen unterliegen würden. Außerdem ist ein Uranerz mit einem Urangehalt von z.B. O.2 Gewichtsprozent eine willkürliche Vergleichsgröße.

Die Erweiterung des hazard measure für langfristige Sicherheitsaussagen durch Wichtung mit der mittleren Zerfallzeit (F. GERA und D.G. JACOBS /17/) führte zu einer radiologischen Überschätzung der langlebigen &-Strahler /14/. Andererseits beinhaltet die von C.F. SMITH und W.E. KASTENBERG /14,10/ und neuerdings von W. JACOBI / 5/ vorgeschlagene Integration über bestimmte Zeitabschnitte die Einführung subjektiv ausgewählter Zeitperioden.

Andere zum Teil sehr unterschiedliche Ansätze für erweiterte Indizes unter Berücksichtigung von Freisetzungen und deren Vor- und Nachteile wurden im einzelenen von J.W. VOSS /21/ und J.W. POSTON / 7/ diskutiert und sollen

hier nicht wiederholt werden. Bisher lag die Schwierigkeit in der Ermittlung der Korrekturfaktoren, die für den Einzelfall entweder nicht rein analytisch bestimmt, allenfalls subjektiv geschätzt werden können oder eine ausführliche deterministische Analyse als Eingangsparameter erforderlich machen. Die Reduzierung der Ergebnisse einer solchen Analyse auf einen einzigen Index oder einen Wahrscheinlichkeitsfaktor würde dann eine unzulässige Vereinfachung darstellen.

2.3 Ansätze zu erweiterten Modellbetrachtungen

Für den einfachen Vergleich der inhärenten Eigenschaften von Waste und Uranmineralien erscheint der Vorschlag von A. E. RINGWOOD /19/ recht interessant. Bei diesem Vergleich resultieren jedoch für konditionierte hochaktive Abfälle unanschaulich große Durchmesser der Gesteins- bzw. Uranerzäquivalentzylinder, so daß es wohl anschaulich wäre für HAW zu Vergleichszwecken Pechblende heranzuziehen. Im Hinblick auf die neu publizierten und zu erwartenden Grenzwerte der ICRP-30 /20/ hätte der Äquivalentzylinder mit Pechblende nach ca. 10 bis 10 Jahren den ca. 10- bis 5fachen Durchmesser des HAW-Zylinders.

Zu den erweiterten Radiotoxizitätsindizes wird in der vorliegenden Studie kein neuer Index vorgeschlagen. Einfache Ansätze zu erweiterten Indizes wurden von C. F. SMITH und W. E. KASTENBERG /14/ durch Integration über "Zeitperioden der Bedenklichkeit" für die langfristige Toxizität gemacht; ähnlich von F. GERA und D. G. JACOBS /17/ durch Einführung eines Wahrscheinlichkeitsfaktors für Containmentversagen und Freisetzung der Radionuklide oder von L. E. BRUNS /12, 13/ durch Berücksichtigung von Transferfaktoren. Das Problem liegt in der Ermittlung der allgemeinen und der standortabhängigen Korrekturfaktoren.

Ein einfacher, für einen Index möglicherweise ausreichender Weg könnte die Methode von L.E. BRUNS /12,13/ sein, d. h. die Korrektur des hazard measure mit den Transferfaktoren. In erster Näherung sollten die Transferfaktoren in solche, die mehr allgemeingültig sind, und in eine Gruppe, die standortabhängig ist, einteilbar sein. Solche mehr allgemein zutreffenden Transferfaktoren könnten z.B. gelten für

- Die Freisetzungsraten aus dem Verfestigungsprodukt
- die Barrierewirkung des Wirtsgesteins (Salzgestein, Granit etc)
- die Mobilität von Radionukliden in alkalischen, reduzierenden Grundwässern in der Umgebung der Endlagerhorizonte (hohe Sorption von Np(IV) und Tc(IV) bzw. für oxidierende Grundwässer (geringe Sorption von NpO $_2^+$ oder TcO $_4^-$).

Ansätze zur Ermittlung solcher Transferfaktoren finden sich in den bisherigen Risikoanalysen, bräuchten aber möglicherweise nicht deren Detailierungsgrad.

3. <u>Vergleich der Radiotoxizität von mittel- und</u> schwachaktiven Abfällen

3.1 Basisdaten und Randbedingungen

3.1.1 Auswahl der Wastetypen

Aus der Vielzahl der radioaktiven Rohabfallströme bzw. konditionierten Abfälle des LWR-Brennstoffkreislaufs wurde im Teil I der Studie /4 / eine Auswahl getroffen. Diese Auswahl erfolgte hauptsächlich nach Gesichtspunkten, die von der Endlagerung her gesehen wichtig erscheinen, nämlich Abfälle

- die langlebige Nuklide, insbesondere α-Strahler enthalten
- deren Wärmeentwicklung nicht vernachlässigt werden kann.

Danach wurden folgende Abfallarten in die Untersuchungen einbezogen:

Aus der Wiederaufarbeitung

| _ | hochaktive | verfestigte | Abfälle | (HAW) |
|---|------------|-------------|---------|-------|
| | | | | |

- Feedklärschlamm (FKS)

- Hüll- und Strukturmaterial (HSM)

- wäßrige mittelaktive Abfälle (MLLW)

aus der Plutoniumrefabrikation

- schwachaktive brennbare Alphaabfälle (≪-LAW)

aus dem Kernkraftwerksbetrieb

- mittelaktive Betriebsabfälle.

Die Anteile von Uran, Plutonium, übrige Transurane und nichtflüchtiger Spaltprodukte sind in Prozent vom Durchsatz in Tabelle 3.1/1 nochmals aufgeführt.

TABELLE 3.1/1 VERTEILUNG DER ACTINIDEN UND SPALTPRODUKTE AUF EINZELNE WASTESTROEME IM LWR-BRENNSTOFFKREISLAUF (DWR-BRENNSTOFF, ABBRAND 33 GWD/T SM)

| | | | | | IH | CH-H-80/10 |
|---|---------------------------|-------|------|----------|------|------------|
| WASTESTROM | ANTEIL IN % VOM DURCHSATZ | | | | | |
| | PU | U | NP | AM | CM | F P |
| WIEDERAUFARBEITUNG | ; | | | | | |
| HAW (+FKS) | 0.5 (A) | 0.5 | 99 | 99.9 | 99.9 | 99.8 (B) |
| FKS | 0.2 (A) | 0.02 | 0-1 | 0-1 | 0.1 | 7.7 (B) |
| HSM | 0.1 | 0.03 | 0.03 | 0.03 | 0.03 | 0.1 |
| MLLW (C) | 0.2 | 0.3 | 0.5 | 0.01 (D) | 0.01 | BERECHNET |
| <maw-fest< td=""><td>0.1 (E)></td><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td></maw-fest<> | 0.1 (E)> | | | | | |
| MOX-FABRIKATION | | | | | | |
| ALPHA-LAW FEST | 1 | 0.14 | | | | |
| <fl. alpha-law<="" td=""><td>0.06</td><td>0.006</td><td></td><td>(F)></td><td></td><td></td></fl.> | 0.06 | 0.006 | | (F)> | | |

A) SUMME DER PU-VERLUSTE IN HAW + FKS = 0.5 %
B) SUMME DER NICHTFLUECHTIGEN SPALTPRODUKTE IN HAW + FKS = 99.8 %
C) MLLW: WAESSRIGER SALZHALTIGER ABFALLSTRÖM AUS DER SOLVENTWAESCHE DER WA
CA. 20 % DES GESAMTEN FLUESSIGEN MAW IM BRENNSTOFFKREISLAUF
D) OHNE AM-241 AUS GELAGERTEM PU DER MOX-FABRIKATION
E) MAW-FEST HIER NICHT BETRACHTET
F) FL. ALPHA-LAW: WAESSRIGER SCHWACHAKTIVER ALPHA-ABFALL MIT >7 G AM-241/T SM
HIER NICHT BETRACHTET

3.1.2 Randbedingungen für konditionierte Abfälle

Für den Vergleich der Aktivität, der Wärmeleistung und der Radiotoxizität der hoch-, mittel- und schwachaktiven Abfäl- le miteinander auf der Basis gleicher Volumina der verfestigten Endprodukte ist die Kenntnis von Größe und Anzahl der Gebinde der konditionierten Abfälle nötig. Die spezifischen Volumina bzw. die spezifische Anzahl der Gebinde wurde bei der Detailbetrachtung der einzelnen Abfälle im Teil I der Studie / 4 / ermittelt und ist in Tabelle 3.1/2 zusammengestellt.

TABELLE 3.1/2 VOLUMENEINHEITEN DER KONDITIONIERTEN ABFAELLE (DWR-BRENNSTOFF; ABBRAND 33 GWD/T SM; BEZUG 1 T SM)

IHCH-H-80-09 KOND. ABFAELLE (PRO T SM) **ENDLAGERBEHAELTER** WASTE GEBINDE VOLUMEN ARI VOL/GEB ARI INHALT ABMESS. (M) (M) ICRP-30 (L) STRL SCHV (L) (M3) 1.2E+5 4.0E+5 100 62 0.30 1.20 0.085 1.61 HAW 330 0.78 1.10 0.52 1.75 910 3.6E+6 1.1E+6 HSM 3.1E+5 0.78 1.10 0.50 260 1.0E+6 0.52 FKS 310 1.06 1.51 1.74 2.20 8.4E+6 2.5E+6 1.31 1.6 2100 MLLW 360 3.4E+7 1.0E+7 -ALTERNATIV 360 8370 1.6 5.23 1770 3.4 7.0E+6 2.1E+6 210 0.78 1.10 0.52 ALPHA-LAW 8.8E+5 0.78 1.10 730 2.9E+6 -HOM.FIX. 360 0.52 1.4

^(*) BEZOGEN AUF GLEICHES VOLUMEN 0.2 % URANERZ

⁽M3) = KUBIKMETER

Für die Ermittlung dieser Daten wurden folgende Vorgaben und modellmäßig ermittelte Randbedingungen festgelegt:

Brennelemente (BE) - Druckwasserreaktor (Typ Biblis)

- Brennstoff UO₂ mit 3.2 % angereichertem Uran, bzw. MOX (mit äquivalenter Anreicherung)
- Abbrand 33 GWd/t SM
- 292 Vollasttage pro Jahr
- jährliche BE-Nachladung 1/3 des Cores

HAW

- Verglasung
- KfK-Referenzglas GP98/12 ($q = 2.83 \text{ g/cm}^3$)
- 10.0 Gew-% Spaltproduktelemente, entsprechend ca. 15 % HAW-Oxide
- spezifisches Volumen 100 l Glas/t SM

FKS

- homogene Zementierung
- 400-1-Rollreifenfaß
- spezifisches Volumen 0.5 Gebinde/t SM

HSM

- Fixierung mit Zement
- 400-1-Rollreifenfaß
- spezifisches Volumen 1.75 Gebinde/t SM

MLLW

- homogene Zementierung
- 400-1-Faß in verlorener Betonabschirmung
- spezifisches Volumen 1.6 Gebinde/t SM

✓ -LAW

- mit Beton übergossene 10-1-Blechdosen, die nicht-fixierte Abfälle enthalten.
- 400-1-Rollreifenfaß
- spezifisches Volumen 3.4 Gebinde/t SM
- (alternativ bei Zerkleinern und quasihomogener Zementierung 1.4 Gebinde/t SM)

mittelaktiver Reaktorbetriebsabfall

- mittelaktiver Abfall
- Fixierung mit Zement
- 200-1-Rollreifenfaß in VBA (1.2 m³)
- spezifisches Volumen 0.35 Gebinde/t SM

Da zahlreiche Annahmen modellmäßig abgeleitet worden sind, haben sich trotz Orientierung an Planungskonzepten in einzelnen Fällen Abweichungen von entsprechenden Werten in diesen Konzepten ergeben; die hier zugrundegelegten Randbedingungen oder Annahmen sind jedoch im Teil I / 4 / erläutert oder abgeleitet.

3.1.3 Radiotoxizität und Definition eines Radiotoxizitätsindex

Die Radiotoxizität eines Nuklids ist eine inhärente Größe und wird bestimmt durch die physikalische Halbwertszeit, Art und Energie der Strahlung, biologische Wirksamkeit, biologische Halbwertszeit etc. Die Toxizität der Radionuklide wird von Toxikologen durch die letale Dosis (LD₅₀) gekennzeichnet.

Umgekehrt werden radioaktive Nuklide durch Grenzwerte gekennzeichnet, wie sie von der International Commission on Radiological Protection /18, 20/ empfohlen bzw. in der Strahlenschutzverordnung /11/ aufgenommen wurden,

nämlich

- maximal zulässige Konzentrationen (MZK) für Wasser bzw.
 Luft /18/,
- durch die daraus abgeleiteten Grenzwerte für die Jahresaktivitätszufuhr ("JAZ") durch Ingestion oder Inhalation der Strahlenschutzverordnung /11/.
- "annual limits of intake" (ALI) der neuen ICRP-30 /20/ für strahlenexponiertes Personal,
- daraus abgeleitete Grenzwerte für die Jahresaktivitätszufuhr durch Ingestion oder Inhalation in den EG-Richtlinien
 /16/, bzw. für ein 30 mrem Konzept in Analogie mit der
 Strahlenschutzverordnung für Vergleichszwecke / 6/.

Diese Grenzwerte veranschaulichen unmittelbar die relative Toxizität der Radionuklide untereinander.

Ausgehend hiervon ist ein möglicher Weg zur Charakterisierung der Radiotoxizität von Mischungen von Radionukliden die Wichtung der Radioaktivität mit diesen Grenzwerten. Die einfache Kombination von Aktivität (Q) und Grenzwert führt zum "hazard measure" HM /21/, das durch folgende Gleichungen definiert ist:

unter Bezugnahme auf die MZK-Werte:

$$HM_{i} = \frac{Q_{i}}{MZK_{i}}$$
 für das Nuklid i

$$\text{HM} = \sum_{i}^{n} \text{HM}_{i} = \sum_{i}^{n} \frac{Q_{i}}{\overline{\text{MZK}}_{i}} \qquad \text{für die Mischung von n} \\ \text{Radionukliden}$$

bzw. unter Bezugnahme auf die Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr:

$$HM_{i} = \frac{Q_{i}}{JAZ_{i}}$$

$$HM = \sum_{i} HM_{i} = \sum_{i}^{n} \frac{Q_{i}}{JAZ_{i}}$$

Die Genzwerte für Wasser oder Luft, bzw. für lösliche oder unlösliche chemische Verbindungen führen zu den entsprechenden Werten von HM. Für Langzeitbetrachtungen der Endlagerung ist es ausreichend nur die potentielle Ingestion zu betrachten, da nur Wasser für den Transport von Radionukliden aus dem Endlager zum Biozyklus des Menschen in Frage kommt. Bei Bezug auf die maximal zulässigen Konzentrationen in Wasser bedeutet das hazard measure physikalisch diejenige Wassermenge, die theoretisch vom Radionuklidinventar der betrachteten Wastemenge bis zur maximal zulässigen Trinkwasserkonzentration kontaminiert werden kann.

In der vorliegenden Arbeit wird auf die Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr nach der Strahlenschutzverordnung bezogen, so daß das hazard measure physikalisch das Vielfache der max. Jahresaktivitätszufuhr für Ingestion bedeutet. Dieses Maß wird im weiteren als Index für die Radiotoxizität einer betrachteten Abfallmenge verwendet unter der Bezeichnung:

- "Jährlicher Radiotoxizitätsindex für Ingestion (ARIw)"

$$ARI_{W} = \sum_{i}^{n} \frac{Q_{i}}{JAZ_{W,i}}$$

3.2 <u>Vergleiche der Eigenschaften der Abfälle anhand der Nuklidinventare</u>

Die Ergebnisse der Zerfallsrechnungen und vergleichenden Betrachtung über die mittel- und schwachaktiven Abfälle werden nachfolgend zusammengefaßt. Auf der Basis des Nuklidinventars der einzelnen Abfallarten werden erfaßt der

- Radiotoxizitätsindex
- Radiotoxizitätsindex pro Volumeneinheit.

Die Darstellung erfolgt jeweils in Form der Zerfallskurven als Funktion der Zeit für die Abfallströme

- Hüll- und Strukturmaterial (HSM)
- Feedklärschlamm (FKS)
- wäßriger, mittelaktiver Prozeßabfall (MLLW)
- fester, schwachaktiver Alphaabfall (α-LAW)
- mittelaktive Reaktorbetriebsabfälle.

3.2.1 <u>Jährlicher Radiot</u>oxizitätsindex

Der jährliche Radiotoxizitätsindex (basierend auf den Grenzwerten für die Jahresaktivitätszufuhr durch Ingestion gemäß Strahlenschutzverordnung) ist für die Wasteströme HSM, FKS, MLLW und &-LAW in Fig. 3.2-1 gegen die Zerfallszeit aufgetragen. Der Radiotoxizitätsindex fällt im Zeitraum bis ca. 1000 Jahre beim FKS um 4, beim HSM um 3 Größenordnungen ab, bei MLLW um den Faktor 300 ab. Dabei liegen die Kurven um einen Faktor von ca. 500 bis 50 unterhalb des HAW. Über 1000 Jahre fallen die Kurven entsprechend der langen Halbwertszeiten der bestimmenden Actiniden nur noch langsam ab, der Radiotoxizitätsindex bleibt aber auch langfristig höher als derjenige des langlebigen Spaltproduktanteils im HAW. Der &-LAW liegt entsprechend dem relativ hohen Pu- und Am-Gehalt nach mehr als 500 Jahren zwischen der Zerfallskurve der Transurane im HAW und der mittelaktiven Abfälle.

3.2.2 Radiotoxizitätsindex pro Abfall-Volumeneinheit

Der jährliche Radiotoxizitätsindex pro Volumeneinheit der konditionierten mittelaktiven Abfälle HSM, FKS und MLLW sowie des α -LAW ist in Fig.3.2-2 in seinem zeitlichen Verlauf aufgetragen. Während der Feedklärschlamm nach mehr als 1000 Jahren auf das Niveau der langlebigen Spaltprodukte im HAW abfällt und dann in erster Näherung in dieser Größen-ordnung bleibt, fällt das Hüll- und Strukturmaterial langfristig auf niedrigere Werte. Der spezifische Radiotoxizitätsindex vom verfestigten mittelaktiven Prozeßwaste fällt nach ca. 50 Jahren auf das Niveau der langlebigen Spaltprodukte im HAW und liegt bei 1000 Jahren etwa eine Größenordnung tiefer. Der α -LAW liegt nach 300 Jahren nur unwesentlich über dem FKS und fällt parallel zu diesem in etwa 10 4 a auf das Niveau der langlebigen Spaltprodukte im HAW ab.

3.2.3 <u>Jährlicher Radiotoxizitätsindex auf der Basis</u> der neuen Grenzwerte der ICRP-30

Neue Stoffwechsel- und radiologische Daten und eine wesentliche Änderung der Dosisberechnung für die Ingestion führte
für viele Nuklide, insbesondere für %-Strahler zur Empfehlung
neuer Grenzwerte durch die ICRP /20/. Die neuen Werte waren
zum Zeitpunkt der Berechnung der Daten zur vorliegenden
Studie erst teilweise publiziert, die übrigen fanden sich
bei N. ADAMS et al. /23/. Die Verhältnisse der bisherigen
abgeleiteten Grenzwerte für die Jahresaktivitätszufuhr (basierend auf der Dosis für das kritische Organ) zu den neuen
"Annual Limits of Intake (ALI)" (basierend auf dem effektiven
Dosisäquivalent) sind bei Aufnahme durch Ingestion wie folgt:

| Th-230 | 5 | Np-237 | 300 |
|--------|-------|----------|-----|
| Ra-226 | 0.05 | Pu-238 | 5 |
| Pb-210 | 2 | Pu-239 | 7 |
| Po-210 | 2 | Pu-240 | 7 |
| , | • | Am-241 | 22 |
| (Sr-90 | 0.12) | Am-243 | 26 |
| (Tc-99 | 0.5) | Cm - 244 | 24 |

Ra-226 erscheint also deutlich weniger toxisch als früher angenommen worden war, Thorium und die Transurane erheblich höher.

In der Strahlenschutzverordnung /11/ wurden anstelle der früher verwendeten MZK-Werte die abgeleiteten Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr (JAZ) eingeführt und gleichzeitig auf das 30 mrem-Konzept Bezug genommen. Um einen direkten Vergleich mit den Werten der Strahlenschutzverordnung zu ermöglichen, wurden die neuen Grenzwerte "Annual Limits of Intake (ALI)" der ICRP-30 /20/ ebenfalls auf das 30-mrem-Konzept umgerechnet.

Das Ergebnis der Zerfallsrechnung im Hinblick auf den jährlichen Radiotoxizitätsindex (basierend auf den abgeleiteten Grenzwerten für die Jahresaktivitätszufuhr durch Ingestion nach ICRP-30) ist für die Wasteströme HSM, FKS, MLLW und &-LAW in Fig.3.2-3 im Vergleich zu HAW skizziert.

Beim hochaktiven Abfall wird der Radiotoxizitätsindex nach der neuen Bewertung bis ca. 100 Jahre gleichermaßen von den Transuranen (hier Cm und Am) und den Spaltprodukten (Sr-90 und Cs-137) bestimmt und klingt in diesem Zeitraum um ca. eine Größenordnung ab. Nach mehr als 100 Jahren überwiegt die Radiotoxizität der langlebigen Actiniden Am, Np und Pu (vgl. Anhang 1, Fig.A1-4) und fällt vom Zeitpunkt der Wiederaufarbeitung bis 10⁵ Jahre insgesamt um 3 Größenordnungen ab. Der langzeitige Toxizitätsindex für die Spaltprodukte im HAW liegt um etwa dem Faktor 2 niedriger als bislang, da der Ingestionsgrenzwert für Tc-99 auf etwa die Hälfte gegenüber bisher herabgesetzt wurde.

Bei den actinidenhaltigen mittelaktiven Abfällen (HSM, FKS, MLLW) wird der Radiotoxizitätsindex nach 10-100 Jahren Zerfallszeit von den enthaltenen Transuranen bestimmt. Der Radiotoxizitätsindex klingt bis 1000 Jahre beim FKS um einen Faktor ca. 300, bei HSM um ca. 100 und beim MLLW um etwa 10 ab.

Durch Nachbildung von Am-241 (aus Pu-241) durchläuft der Radiotoxizitätsindex von X-LAW ein Maximum bei ca. 100 Jahren und liegt nach 1000 Jahren noch in der Größe des Ausgangs-wertes (vgl. Fig.3.2-3). Bis 10⁵ Jahre fällt der Radiotoxizitätsindex dann um 2 Zehnerpotenzen ab.

Langzeitig (> 1000 Jahre) bleibt der Radiotoxizitätsindex des Nuklidinventars der mittelaktiven Abfälle um einen Faktor > 100, des <-LAW um den Faktor 20 - 50, unter den Werten des HAW (Actiniden) und um einen Faktor 100 - 1000 (bei 10³ Jahre) abnehmend auf 3 - 20 (bei 10⁵ Jahren) über den Werten für die langlebigen Spaltprodukte des HAW.

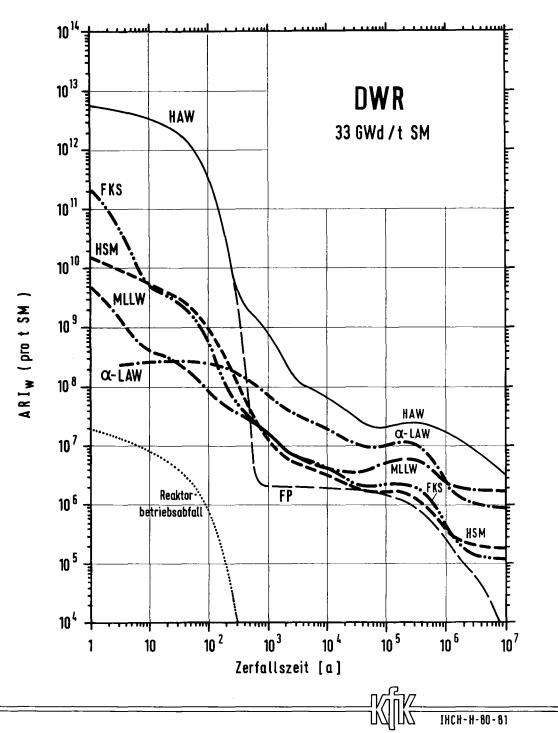


Fig. 3.2-1 Jährlicher Radiotoxizitätsindex (Basis JAZ_W) von Hüllund Strukturmaterial (HSM), Feedklärschlamm (FKS), wässrigem mittelaktivem Prozeßabfall (MLLW) und festem α-LAW, sowie Reaktorbetriebsabfall (MAW) im Vergleich zu HAW

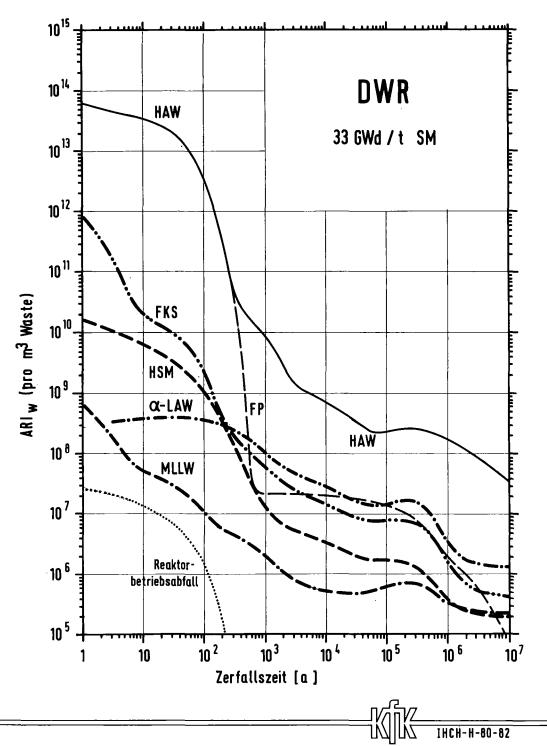


Fig. 3.2 - 2 Jährlicher Radiotoxizitätsindex pro Volumeneinheit von Hüllund Strukturmaterial (HSM), Feedklärschlamm (FKS), wässrigem mittelaktivem ProzeNabfall (MLLW) und festem \alpha-LAW, sowie Reaktorbetriebsabfall (MAW) im Vergleich mit HAW.

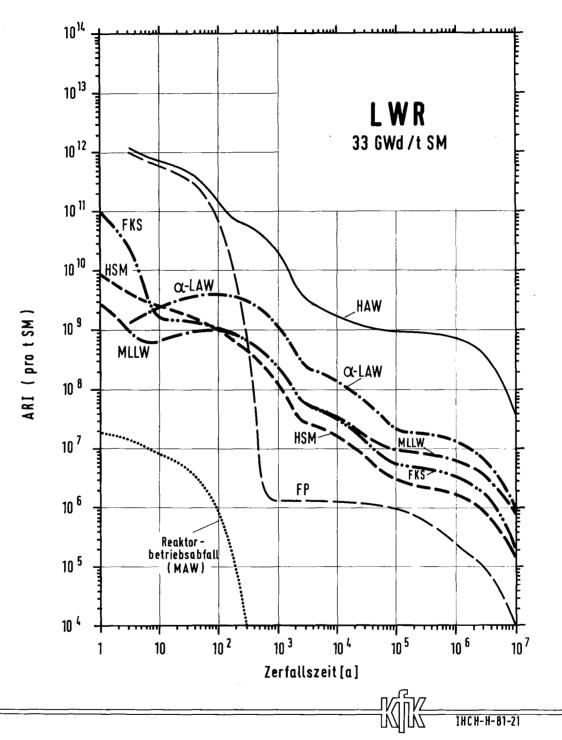


Fig. 3. 2-3 Jährlicher Radiotoxizitätsindex ARIw (Basis ICRP-30) von HSM, FKS, MLLW, α -LAW und Reaktorbetriebsabfall (MAW) im Vergleich zu HAW.

3.3 <u>Vergleiche der Radiotoxizität von konditionierten</u> Abfällen und Uranmineralien

3.3.1 Allgemein

Die Radiotoxizität der langlebigen &-strahlenden Nuklide der Transuranelemente kann mit den langlebigen &-Strahlern in den Zerfallsreihen von Natururan, d. h. insbesondere mit dem Zerfallsprodukt Ra-226 (Halbwertszeit 1600 Jahre) verglichen werden. Es liegt nahe, auch die Radiotoxizität der verfestigten radioaktiven Abfälle aus dem Kernbrennstoffkreislauf mit der Radiotoxizität von Uranmineralien zu vergleichen, in denen sich das U im säkularen Gleichgewicht mit seinen Töchtern befindet.

Der Radiotoxizitätsindex von Natururan im Gleichgewicht mit seinen Zerfallsprodukten wird bei Anwendung der Grenzwerte für Ingestion gemäß ICRP-2 /18/ bzw. der abgeleiteten Werte der Strahlenschutzverordnung /11/ wesentlich durch den sehr niedrigen Wert des Ra-226 bestimmt. (Grenzwert der maximal zulässigen Konzentration im Wasser 1 · 10⁻⁸ zuCi/ml bzw. Grenzwert für die Jahresaktivitätszufuhr 5.8 · 10⁻¹⁰ Ci/a bei 30 mrem-Konzept)

Der Vergleich der Radiotoxizität von Natururan und Waste kann nach verschiedenen Modellen erfolgen (vgl. Anhang 1), wobei solche Modelle bevorzugt wurden, die einen direkten Vergleich der konditionierten Abfälle zulassen. Bei dieser Betrachtungs-weise kann gleichermaßen der Waste von fortgeschrittenen Reaktoren, wie Schnelle Brutreaktoren, einbezogen werden, was beim Vergleich mit der Natururanmenge, die zur Versorgung der Reaktoren benötigt wird, kaum möglich ist.

In den hier verwendeten Modellen werden verglichen

- gleiche Volumina von konditionierten Abfällen und Uranmineralien
- alternativ die Nuklidinventare bestimmter Endlagervolumina bzw. Endlagerfelder mit einem gleichgroßen Volumen einer Uranerzlagerstätte.

In diesen Vergleichsmodellen wird die zeitliche Änderung der Konzentration der radiotoxischen Nuklide betrachtet.

Nach einem neuen Vorschlag von A. E. RINGWOOD /19/ kann auch die zeitliche Änderung der Radiotoxizität des Wastes durch die Volumenänderung der Vergleichsmenge Uranerz mit dem äquivalenten toxischen Nuklidinventar erfolgen. Dieses Verfahren erscheint aber nur dann anschaulich, wenn auf Pechblende bezogen wird.

3.3.2 Definition eines relativen Radiotoxizitätsindex

Dem Vergleich der spezifischen Volumina der konditionierten Abfälle (Gebinde) mit Uranmineralien liegt folgendes Modell zugrunde:

Der Vergleich des Radiotoxizitätsindex des Nuklidinventars des verfestigten Abfalls (fixiert in einer Matrix sehr geringer Löslichkeit) mit dem Radiotoxizitätsindex des Nuklidinventars eines gleich großen Volumens an Uranmineralien führt unmittelbar zur Definition eines relativen Radiotoxizitätsindex:

Relativer Radiotoxizitätsindex =
$$\frac{\frac{ARI_{waste}}{ARI_{Uranerz}}}{\left(\sum_{i}^{n} \frac{Q_{i}}{JAZ_{w,i}}\right)_{waste}}$$
 =
$$\frac{\left(\sum_{i}^{n} \frac{Q_{i}}{JAZ_{w,i}}\right)_{uranerz}}{\left(\sum_{i}^{n} \frac{Q_{i}}{JAZ_{w,i}}\right)_{uranerz}}$$

Als Bezugspunkt wird ein Uranerz mit niedrigem Urangehalt von 2000 ppm (= 0.2 Gewichtsprozent) gewählt /1/.

Die spezifischen Volumina der ausgewählten Abfallarten sind in Tabelle 3.1/2 zusammengefaßt (Details vgl. Teil I der Studie /4/).

3.3.3 Relativer Radiotoxizitätsindex der mittelaktiven und α-haltigen Abfälle (Basis Strahlenschutzverordnung)

Der relative Radiotoxizitätsindex (auf der Basis JAZ $_{W}$ nach StrSchV) der konditionierten mittelaktiven Abfälle HSM, FKS und LAW sowie der schwachaktiven α -Abfälle ist in Fig.3.3-1 in seinem zeitlichen Verlauf dargestellt. Die Zerfallskurven und deren relative Lage zueinander wurden analog Fig.3.2-2 (in Abschnitt 3.2.2) dargestellt, jedoch normiert auf das gleiche Volumen O.2 %iges Uranerz (\S = 3 g·cm $^{-3}$).

Zum Vergleich ist auch Pechblende ($g = 9 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$) eingetragen, das Mineral mit den höchsten Konzentrationen an Radionukliden in der Natur.

Der relative Radiotoxizitätsindex der mittel- und schwachaktiven Abfälle liegt nach weniger als 100 a niedriger als Pechblende. Auf das Niveau von 0.2 %igem Uranmineral fällt der MLLW nach ca. 500 Jahren, das HSM nach ca. 10^4 Jahren ab. FKS und α -LAW liegen auch langfristig (10^3 bis 10^6 a) um einen Faktor 20 bis 2 über dem 0.2 % Uranerz (vgl. auch Tabelle 3.3/1).

In Bezug auf die alten ASSE-II-Einlagerungsbedingungen liegen die hier betrachteten mittelaktiven und α -haltigen Abfälle nach mehr als 1000 Jahren unter dem Niveau eines 3 % Uranerzes.

3.3.4 Änderung des Radiotoxizitätsindex von Natururan auf der Basis von ICRP-30

Für die Einschätzung der Radiotoxizität von natürlichem Uran (im Gleichgewicht mit seinen Töchtern) war bisher der Ingestionsgrenzwert von Ra-226 bestimmend. Wie in Abschnitt 3.2.3 ausgeführt, ergibt sich folgende Änderung durch ICRP-30 /20/ (bezogen auf das 30 mrem-Konzept):

| StrlSchV JAZ _w | ICRP-30 abgeleitete ^{ALI} ing | | |
|------------------------------|--|--|--|
| 5.8·10 ⁻¹⁰ | 1.1.10 ⁻⁸ | | |
| 668 | 200 ^{x)} | | |
| | JAZ _w 5.8·10 ⁻¹⁰ | | |

x) ohne Berücksichtigung von Pa-231 (Wert noch nicht publiziert)

Aus der Änderung der Grenzwerte für Ra-226, Th-230, Po-210 und Pb-210 folgt, daß der Radiotoxizitätsindex von Natururan (im Gleichgewicht mit seinen Zerfallsprodukten) auf etwa ein Drittel gegenüber dem Radiotoxizitätsindex auf der Basis der Ingestionsgrenzwerte der Strahlenschutzverordnung erniedrigt sein wird.

Andererseits erhöht sich durch die neuen Grenzwerte der ICRP-30 der Radiotoxizitätsindex der Actiniden in den mittelaktiven und «haltigen Abfällen des Brennstoffkreislaufes im Durchschnitt um einen Faktor 10 (zwischen 10² und 10⁴ Jahren). Der resultierende relative Radiotoxizitätsindex beim Vergleich mit Natururan verschiebt sich also um etwa einen Faktor 30 in Richtung auf eine höhere Einschätzung der Radiotoxizität der actinidenhaltigen Abfälle gegenüber Uranerzen.

3.3.5 Relativer Radiotoxizitätsindex der mittelaktiven und &-haltigen Abfälle auf der Basis von ICRP-30

In Fig.3.3-2 ist der zeitliche Verlauf des relativen Radiotoxizitätsindex (auf der Basis der abgeleiteten Grenzwerte der ICRP-30) für die konditionierten mittelaktiven Abfälle HSM, FKS und MLLW sowie die schwachaktiven α -Abfälle eingetragen und zwar normiert auf das gleiche Volumen Uranerz mit 0.2 Ges.% U.

Der relative Radiotoxizitätsindex der mittelaktiven und actinidenhaltigen Abfälle fällt nach ca. 1.000 Jahren unter das Niveau der Pechblende. Unter das Niveau eines 3% Uranerzes fällt der Radiotoxizitätsindex der Abfallgebinde von MLLW nach ca. 2.000 Jahren, von HSM nach ca. 10⁴ Jahren.

Anders betrachtet klingt der relative Radiotoxizitätsindex der mittelaktiven und α -haltigen Abfälle auf die in Tabelle 3.3/1 angedeuteten, vergleichbaren Uranerzkonzentrationen ab.

TABELLE 3.3/1 URANERZ MIT VERGLEICHBAREM RADIOTOXIZITAETSINDEX WIE DIE MITTELAKTIVEN UND ALPHAHALTIGEN ABFAELLE NACH VERSCHIEDENEN ZERFALLSZEITEN

[HCH-H-81/6 GEW -- TU NACH ABKLINGZEIT 500 A 1000 A 10000 A 100000 A AUF BASIS DER INGESTIONSGRENZWERTE DER STRAHLENSCHUTZVERORDNUNG HSM 0.6 0.1 FKS 3 0.8 0.8 MLLW - 1.3 M3 VBA 0.8 0.4 0.12 0.12 - 5.2 M3 VBA 0.2 0.1 0.03 0.03 ALPHA-LAW 10 1.4 0.8 AUF BASIS ABGELEITETER GRENZWERTE NACH ICRP-30 20 3 0.6 **HSM** FKS PECHBLENDE 20 MLLW - 1.3 M3 VBA 2 - 3 0.8 16 - 5.2 M3 VBA 0.6 ALPHA-LAW PECHBLENDE 20 - 30

M3 = KUBIKMETER

VBA = VERLORENE BETONABSCHIRMUNG

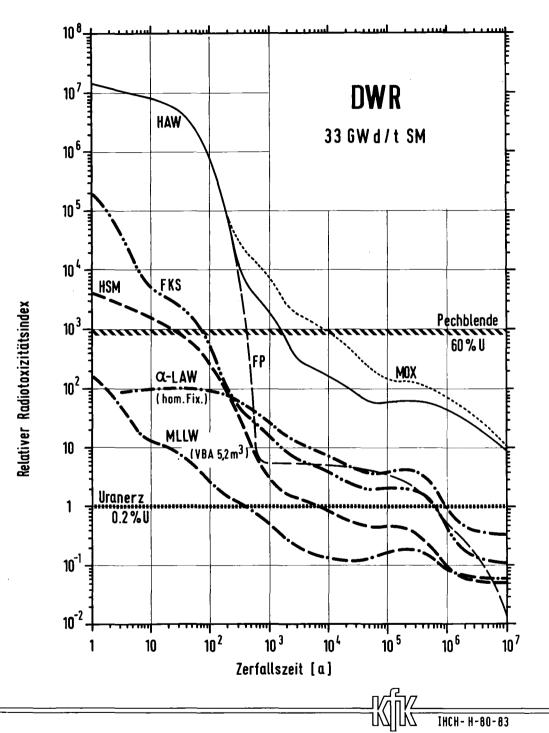


Fig. 3.3-1 Relativer Radiotoxizitätsindex (Basis JAZ_W) von Hüll – und Strukturmaterial (HSM), Feedklärschlamm (FKS), wässrigem mittelaktivem Prozeßabfall (MLLW) und festem schwachaktivem α - Abfall (α -LAW) im Vergleich mit HAW

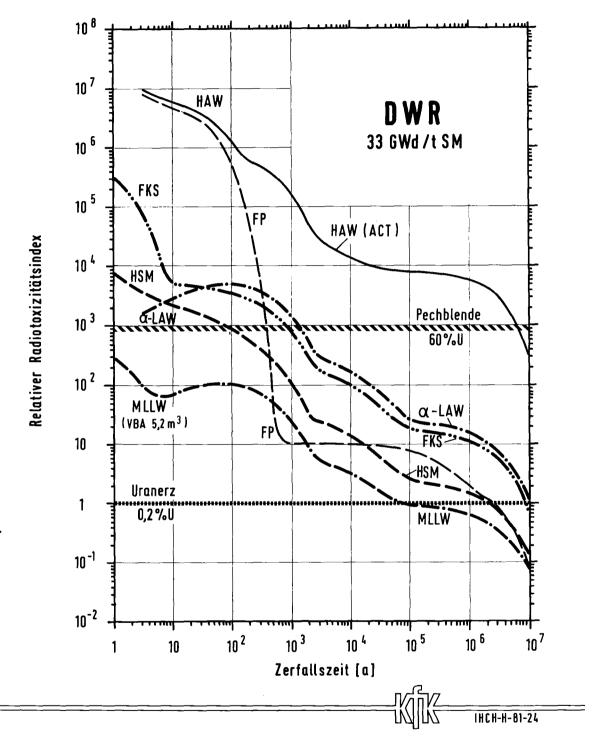


Fig. 3.3-2 Relativer Radiotoxizitätsindex (Basis ICRP-30) von HSM, FKS, MLLW und α -LAW im Vergleich mit HAW.

3.4 Vergleich von Endlagerfeld und Uranerzlagerstätte

3.4.1 Allgemein

Der Vergleich der Radiotoxizität von Abfällen mit Natururan läßt sich in einem erweiterten Modell auf die Nuklidinventare bestimmter Endlagervolumina bzw. Endlagerfelder ausdehnen. Auf dieser Vergleichsebene wird das Endlagerkonzept betrachtet, das einerseits die Einbringung der wärmeentwickelnden Abfälle in einzelnen Bohrlöchern in einer Endlagerschicht vorsieht, andererseits das Verbringen von mittel- und schwachaktiven Abfällen in Lagerkammern oder Kavernen vorsieht /22/.

Selbsterhitzende Abfälle, seien es HAW-Kokillen oder konditioniertes Hüll- und Strukturmaterial und Feedklärschlamm, werden aus Gründen der Zerfallswärmeableitung in einzelne Bohrlöcher eingelagert. In erster Näherung kann man also davon ausgehen, daß diese Abfälle in kleinen Einheiten über eine große Schicht verteilt sind. Der Vergleich zwischen Waste und Natururan erfolgt hier gewissermaßen zwischen der Radiotoxizitätskonzentration des Nuklidinventars des gesamten Endlagerfelds mit der Radiotoxizitätskonzentration einer gleichgroßen Uranerzlagerstätte mit niedrigem Urangehalt.

Analog erfolgt der Vergleich der Radiotoxizität des Nuklidinventars einer Lagerkammer mit der Radiotoxizität des Nuklidinventars eines gleich großen Volumens einer Uranerzlagerstätte.

3.4.2 Definitionen und Randbedingungen

Für die Endlagerung von wärmeentwickelnden Abfällen ist das Stapeln der Gebinde von HAW (Glasblöcke) sowie Hüll- und Strukturmaterial und Feedklärschlamm in einzelnen Bohrlöchern (vgl. Fig. 3.4-1) vorgesehen; die Randbedingungen sind in Tabelle 3.4/1 enthalten.

In analoger Weise wird die Einlagerung der Abfallfässer in die Lagerkammern betrachtet, wobei hier natürlich das anteilmäßige Volumen zwischen den Gebinden relativ gering ist (vgl. Tabelle 3.4/2).

Für die Versturz- und Absenkkammer wird in gleicher Weise eine unregelmäßige Schüttung der Fässer und ebenso in der Stapelkammer ein Verfüllen der Zwischenräume mit Salz angenommen. Pro Gebinde wird mit einem Raumbedarf vom doppelten Faßvolumen gerechnet.

Für die hier betrachteten Wastearten erfolgt folgende Zuordnung:

| | Versturz- kammer (400-1-Faß) | Stapel- kammer (VBA) | Absenk- kammer (400-1-Faß) | | |
|----------------------------|------------------------------------|----------------------------|----------------------------------|--|--|
| MLLW | - | standard | alternativ | | |
| ≪ -LAW | standard | alternativ | _ | | |
| Reaktorbetriebs- abfall | _ | standard | - | | |

Nach den Vorgaben der PTB ergeben sich die in Tabelle 3.4/2 zusammengestellten Randbedingungen für die Versturz-, Stapelund Absenkkammer.

Der Vergleich der Radiotoxizität von Waste und Natururan erfolgt auf der Basis gleicher Volumina von Uranerz und von Abfällen in der Endlagerschicht (zwischen den Einzelbohrlöchern) bzw. in der Lagerkammer. Der Radiotoxizitätsindex (ARI_w) der Radionuklide im Vergleichsvolumen von 0,2 %igem Uranerz wurde in Tabelle 3.4/1 und 3.4/2 für die betreffende Wasteart angegeben. Die Werte dienten zur Normierung der Zerfallskurven in Fig. 3.4-2.

TABELLE 3.4/1 ENDLAGERFELD FUER WAERMEENTWICKELNDE ABFAELLE

| | | | -81/7 | |
|-----------------------------|-----------|--------------------|------------|-----------|
| | | HAW BOHRLOECHER | | · • |
| DOUBL OCHARCTAND | | | | |
| BOHRLOCHABSTAND | / 44 \$ | 50 | | |
| LAENGS DER STRECKEN | | 50 | 13 | |
| ZWISCHEN DEN STRECKEN | | 50 | 16 | |
| NUTZBARE BOHRLOCHTIEFE | | 300 | 300 | |
| BOHRLOCHDURCHMESSER | (M) | 0.4 | 0. | .9 |
| GEBINDE | | | | |
| PRO BOHRLOCH | | 250 | 270 | (*) |
| PRO T SM | | 1-61 | 1.75 / | 0.5 |
| VERGLEICHSVOLUMEN (**) | | | | |
| PRO BOHRLOCH | (M3) | 7.5E+5 | 6.21 | F+4 |
| PRO GEBINDE | • • | 3000 | 230 | - ' |
| PRO T SM | | 4800 | 400 / | 115 |
| RADIOTOXIZITAETSINDEX DES V | FRGLETCHS | VOLUMENS (++) | AN URANER? | (0-2 % U) |
| BASIS: JAZ NACH STRLSCH | | | 1.6E+9 / | |
| BASIS: ICRP-30 | • | _ | 4.8E+8 / | |
| DM313. [CKK-20 | | 3.0579 | T. DETO / | 1.4640 |

^{*) 400-}L-FASS

^{**)} UNTER VERGLEICHSVOLUMEN WIRD DAS VOLUMEN DER GEBINDE PLUS DAS ANTEILIGE VOLUMEN DES UMGEBENDEN SALZGESTEINS ZWISCHEN DEN BOHRLOECHERN VERSTANDEN

M3 = KUBIKMETER

TABELLE 3.4/2 ENDLAGERKAMMERN FUER MITTEL- UND SCHWACHAKTIVE ABFAELLE

| | | | | | IHCH-H-81/8 | | | |
|---|---|---------------------|--|--|------------------------|--|--|--|
| | | | VERSTURZ KAMMER | - STAPEL- KAMMER | ABSENK- KAMMER | | | |
| KAMMERABMESSUNGEN | | | | | | | | |
| LAENGE | | | 60 | 100 | 15 Ø | | | |
| BREITE | (M) | | 15 | 15 | , | | | |
| HOEHE | (M) | | | 24.5 | 32.5 | | | |
| VOLUMEN | | | | CA. 36700 | | | | |
| GEBINDE | | | | S VBA | | | | |
| VOLUMEN PRO GEBINDE | (M3) |) | 0.52 | 1.33(*)/5.2(**) | 0.52 | | | |
| GEBINDE PRO KAMMER | | | CA. 19000 | 18000 / 4700 | CA. 6000 | | | |
| VERGLEICHSVOLUMEN MIT S PRO GEBINDE | ALZVERF (M3) | | LUNG 1 | 2.0 / 7.8 | 1 | | | |
| PRO T SM - MLLW - ALPHA-LAW - REAKTORBETRIEBS ABFALL (MAW) | (M3/T | SM) | 3.4 | 3.2 /12.5 6.8 / 1.2 / | 1.6 | | | |
| - MLLW - ALPHA-LAW - REAKTORBETRIEBS ABFALL (MAW) | (M3/T - (M3/T | SM) | 3.4 | 6.8 / | | | | |
| - MLLW - ALPHA-LAW - REAKTORBETRIEBS ABFALL (MAW) RADIOTOXIZITAETSINDEX D BASIS: JAZ NACH STR | (M3/T (M3/T ES VERG | SM) | 3.4 Chsvolumen | 6.8 / + - 1.2 / VON URANERZ (0.2 % | | | | |
| - MLLW - ALPHA-LAW - REAKTORBETRIEBS ABFALL (MAW) RADIOTOXIZITAETSINDEX D BASIS: JAZ NACH STR - MLLW | (M3/T - (M3/T ES VERG LSCHV | SM) SM) GLEI | 3.4 Chsvolumen | 6.8 / 1.2 / VON URANERZ (0.2 % 1.3E+7 / 5.5E+7 | 3 U) 6.4E+6 | | | |
| - MLLW - ALPHA-LAW - REAKTORBETRIEBS ABFALL (MAW) RADIOTOXIZITAETSINDEX D BASIS: JAZ NACH STR - MLLW - ALPHA-LAW | (M3/T - (M3/T ES VERG LSCHV | SM) SM) GLEI | 3.4 Chsvolumen | 6.8 / 1.2 / VON URANERZ (0.2 % 1.3E+7 / 5.5E+7 2.7E+7 / | : U) 6.4E+6 | | | |
| - MLLW - ALPHA-LAW - REAKTORBETRIEBS ABFALL (MAW) RADIOTOXIZITAETSINDEX D BASIS: JAZ NACH STR - MLLW - ALPHA-LAW - REAKTORBETRIEBS | (M3/T - (M3/T ES VERG LSCHV | SM) SM) GLEI | 3.4 Chsvolumen | 6.8 / 1.2 / VON URANERZ (0.2 % 1.3E+7 / 5.5E+7 | : U) 6.4E+6 | | | |
| - MLLW - ALPHA-LAW - REAKTORBETRIEBS ABFALL (MAW) RADIOTOXIZITAETSINDEX D BASIS: JAZ NACH STR - MLLW - ALPHA-LAW - REAKTORBETRIEBS BASIS: ICRP-30 | (M3/T - (M3/T ES VERG LSCHV | SM) SM) GLEI | 3.4 CHSVOLUMEN 1.36E+7 | 6.8 / 1.2 / VON URANERZ (0.2 % 1.3E+7 / 5.5E+7 2.7E+7 / 5.0E+6 / | 3 U) 6.4E+6 | | | |
| - MLLW - ALPHA-LAW - REAKTORBETRIEBS ABFALL (MAW) RADIOTOXIZITAETSINDEX D BASIS: JAZ NACH STR - MLLW - ALPHA-LAW - REAKTORBETRIEBS BASIS: ICRP-30 - MLLW | (M3/T - (M3/T ES VERG LSCHV | SM) SM) GLEI | 3.4 CHSVOLUMEN 1.36E+7 | 6.8 / 1.2 / VON URANERZ (0.2 % 1.3E+7 / 5.5E+7 2.7E+7 / 5.0E+6 / 3.8E+6 / 1.5E+7 | 3 U) 6.4E+6 | | | |
| - MLLW - ALPHA-LAW - REAKTORBETRIEBS ABFALL (MAW) RADIOTOXIZITAETSINDEX D BASIS: JAZ NACH STR - MLLW - ALPHA-LAW - REAKTORBETRIEBS BASIS: ICRP-30 | (M3/T - (M3/T ES VERG LSCHV | SM) SM) GLEI(| 3.4 CHSVOLUMEN 1.36E+7 | 6.8 / 1.2 / VON URANERZ (0.2 % 1.3E+7 / 5.5E+7 2.7E+7 / 5.0E+6 / | 3 U) 6.4E+6 | | | |

^{*)} VERLORENE BETONABSCHIRMUNG 1.06 M Ø X 1.5 M (FUER 400-L-FASS)
**) VERLORENE BETONABSCHIRMUNG 1.74 M Ø X 2.2 M (FUER 400-L-FASS)

M3 = KUBIKMETER

3.4.3 Radiotoxizitätskonzentration vom Endlagerfeld im Vergleich zu einer Uranerzlagerstätte auf der Basis der Strahlenschutzverordnung

Für die Endlagerung wärmeentwickelnder Abfälle in Einzelbohrlöchern ist der Vergleich der Radiotoxizitätskonzentration
des gesamten Endlagerfeldes (zwischen den Bohrlöchern) und
einer gleichgroßen Uranerzlagerstätte (mit 0,2 Gew.-% Uran)
in Fig.3.4-2 erfolgt. Danach ergibt sich, daß für den HAW
sowie für FKS und HSM die Kurven des Radiotoxizitätsindex nach
500 Jahren bereits um ca. 1 Größenordnung unter das Vergleichsniveau der Uranerzlagerstätte abfallen und langzeitig
(>1000a) mehr als 2 Zehnerpotenzen darunter liegen.

Der analoge Vergleich der mittel- und schwachaktiven Abfälle in Lagerkammern vom Typ Versturz-, Stapel- und Absenkkammer mit Uranerzlagerstätten erfolgt in Fig.3.4-3. Die Kurvenbänder stellen den Bereich der resultierenden Radiotoxizitätskonzentration bei Endlagerung des konditionierten Prozeß-MAW (MLLW) und des «-LAW in 400-1-Gebinden mit und ohne verlorene Betonabschirmung bezogen auf eine 0,2 %-ige Uranerzlagerstätte gleichen Volumens dar. Die Zerfallskurvenbänder für den Radiotoxizitätsindex des MLLW und «-LAW liegen nach ca. 100 Jahren untereinander in der gleichen Größenordnung und sinken nach 102 bis 104 Jahren auf das Vergleichsniveau des 0,2 %-igen Uranerzes ab.

Oder anders betrachtet: Die Radiotoxizitätskonzentration von mittelaktivem Prozeßabfall oder α -haltigem LAW liegt

- nach 100 Jahren auf dem Niveau eines 0.3-3 %-igen Uranerzes
- nach 1000 Jahren " " " 0.06-0.6 %-igen Uranerzes
- nach 10^4 Jahren " " " 0.02-0.2 %-igen Uranerzes

3.4.4 Radiotoxizitätskonzentration vom Endlagerfeld im Vergleich zu einer Uranerzlagerstätte auf der Basis von ICRP-30

Der Vergleich der Radiotoxizitätskonzentration des Endlagerfeldes für wärmeentwickelnde Abfälle mit einer gleichgroßen Uranerzlagerstätte (mit 0,2 Gew. % U) ist in Fig. 3.4-4 auf der Basis der Grenzwerte für Ingestion der ICRP-30 /20/ dargestellt. Aufgrund der höher toxischen Bewertung der Actiniden und der niedrigeren des Ra-226 (vgl. Abschnitt 3.2.3) ergibt der Vergleich von Waste und Uranerz folgendes Resultat:

- Die Kurve der Radiotoxizitätskonzentration von hochaktivem Abfall fällt nach ca. 3000 Jahren (bei HAW-MOX nach ca. 10⁴ Jahren) unter das Vergleichsniveau der Uranerzlagerstätte und liegt langfristig bis zu einem Faktor 5 darunter.
- Die Radiotoxizitätskonzentration von Hüll- und Strukturmaterial und von Feedklärschlamm fallen nach ca. 300 bzw. 2000 Jahren unter das Vergleichsniveau der Uranerzlagerstätte. Langzeitig fällt das HSM um 1-2 Größenordnungen, der FKS um einen Faktor 3-30 unter das Vergleichsniveau.

Der analoge Vergleich der übrigen mittelaktiven und actinidenhaltigen Abfälle in Lagerkammern (Versturz-, Stapel- und Absenkkammern) mit einer Uranerzlagerstätte erfolgte in
Fig.3.4-5. Die Zerfallskurvenbänder stellen wiederum die Bereiche der Radiotoxizitätskonzentration bei Endlagerung des konditionierten Prozeß-MAW (MLLW) und des &-LAW in 400-1-Gebinden
mit und ohne verlorene Betonabschirmung dar:

- Die Zerfallskurvenbänder bleiben bis ca. 300 Jahre auf nahezu denselben Werten, etwa 2-3 Größenordnungen über dem Vergleichsniveau der Uranerzlagerstätte (0,2% U) und fallen sehr langzeitig auf diesem Niveau ab.

Oder anders ausgedrückt: Die Radiotoxizitätskonzentration von mittelaktivem Prozeßabfall oder α -haltigem LAW liegt im Vergleich mit einer Uranerzstätte:

```
- nach 10<sup>3</sup> Jahren auf dem Niveau eines 3-30 %-igen Uranerzes
```

- " lo⁴ Jahren " " " 0,3-3 %-igen Uranerzes
- " 10^5 Jahren " " " 0,1-1 %-igen Uranerzes.

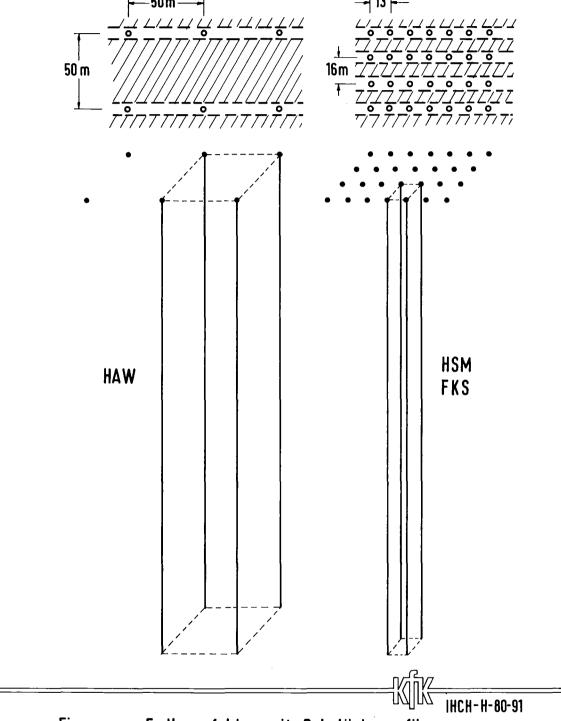


Fig. 3.4-1 Endlagerfelder mit Bohrlöchern für HAW (50x50 m) sowie HSM und FKS (16x13 m)

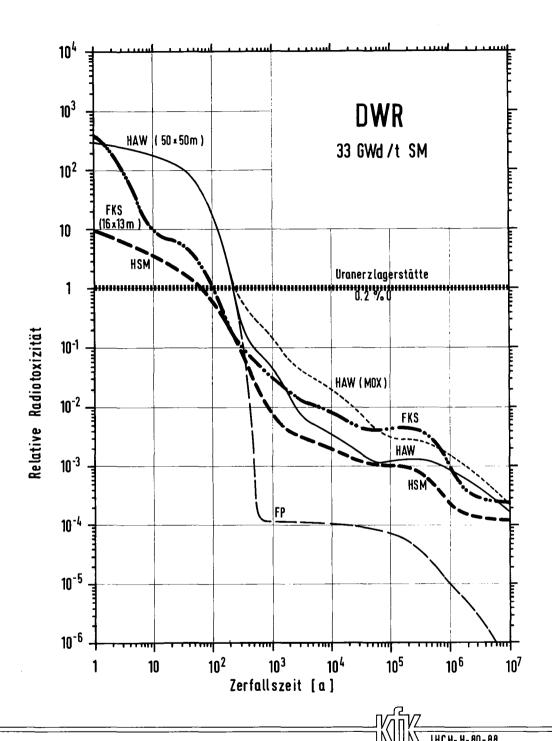


Fig. 3. 4-2 Vergleich der Radiotoxizitätskonzentration der Endlagerschicht zwischen den Bohrlöchern mit einer Uranerzlagerstätte (Basis: JAZ nach StrlSchV)

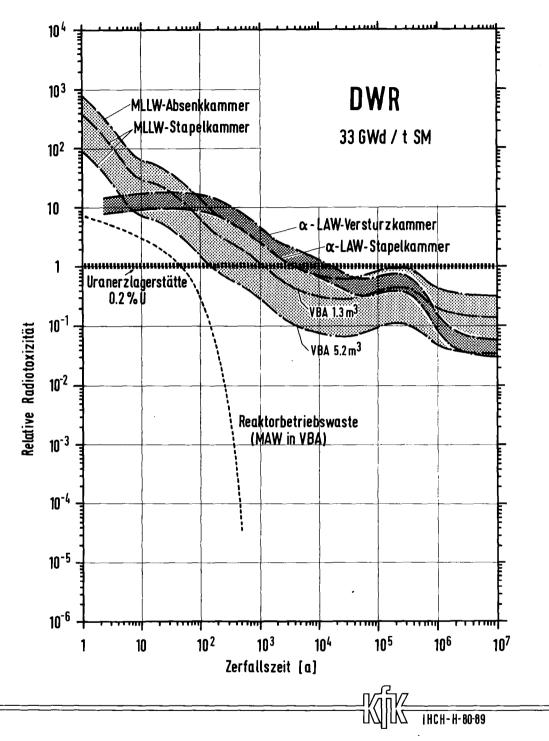


Fig. 3. 4-3 Vergleich der Radiotoxizitätskonzentration in Lagerkammern mit einer Uranerzlagerstätte (Basis: JAZ nach StrlSchV)

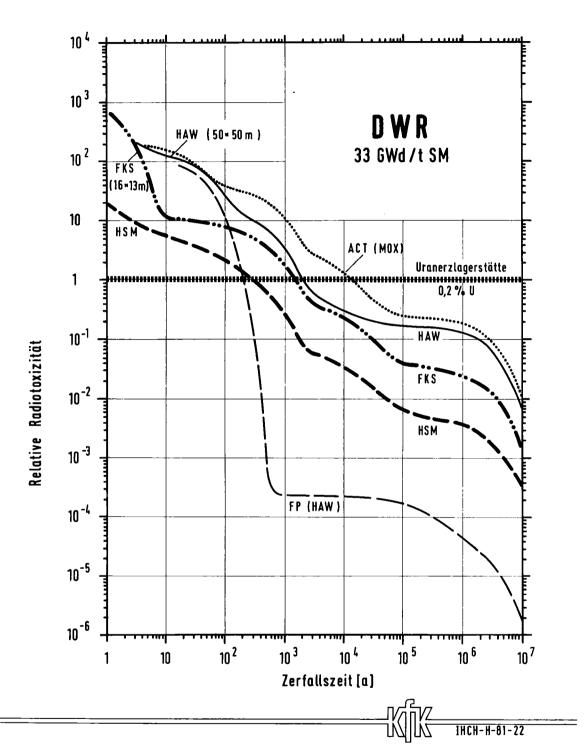


Fig. 3.4-4 Vergleich der Radiotoxizitätskonzentration der Endlagerschicht zwischen den Bohrlöchern mit einer Uranerzlagerstätte auf der Basis von ICRP-30.

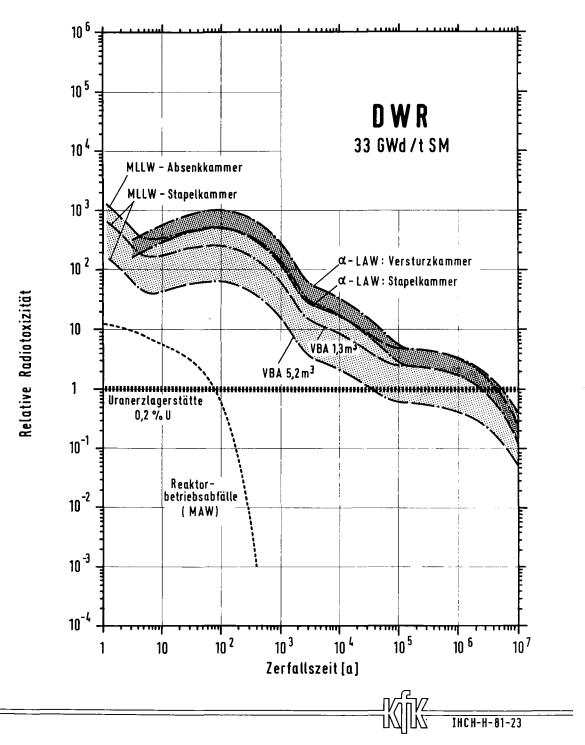


Fig. 3.4-5 Vergleich der Radiotoxizitätskonzentration in Lagerkammern mit einer Uranerzlagerstätte auf der Basis von ICRP-30.

4. Ermittlung des jährlichen Radiotoxizitätsindex der einzelnen mittelaktiven und actinidenhaltigen Abfälle

4.1 <u>Jährlicher Radiotoxizitätsindex von Hüll- und Struktur-</u> materialabfall

Im Teil I der Studie /4/ erfolgte die Bestimmung der Menge und Zusammensetzung der Legierungsbestandteile des HSM, die Berechnung der Aktivierungsprodukte und eine Abschätzung des anteiligen Spaltprodukt- und Actinidengehalts. Der jährliche Radiotoxizitätsindex (hier: Wichtung der Aktivität des Nuklidinventars mit den Grenzwerten der Jahresaktivitätszufuhr für Ingestion) wurde für die Aktivierungsprodukte, die Actiniden, Spaltprodukte und Tritium ebenfalls mit dem Abbrand- und Zerfallsprogramm KORIGEN-79 berechnet.

4.1.1 Jährlicher Radiotoxizitätsindex von HSM auf der Basis der Strahlenschutzverordnung

Die Ergebnisse der Berechnung des jährlichen Radiotoxizitätsindex des HSM auf der Basis der Grenzwerte $\rm JAZ_W$ der Strahlenschutzverordnung /11/ sind in Tabelle 4.1 zusammengefaßt.

Der relative Beitrag der Aktivierungsprodukte, der Actiniden und Spaltprodukte ist Fig.4.1-1 zu entnehmen, ebenso der zeitliche Verlauf des jährlichen Radiotoxizitätsindex. Danach sind bis ca. 100 Jahre die Spaltprodukte und Aktivierungsprodukte für den Radiotoxizitätsindex bestimmend, von 100-700 Jahre die Aktivierungsprodukte plus die Actiniden und über 700 Jahre die Actiniden.

Der jährliche Radiotoxizitätsindex der Aktivierungsprodukte (vgl. Fig.4.1-2) wird bis ca. 20 Jahre von Co-60, danach bis ca. 1000 Jahre von Ni-63 bestimmt. In diesem Zeitraum fällt die Radiotoxizität um ca. 4 Größenordnungen. Langfristig (≥ 1000 a) erfolgt der Abfall mit der Halbwertzeit von Ni-59.

Demgegenüber fällt der jährliche Radiotoxizitätsindex der Actiniden, der langfristig beim Hüll- und Strukturmaterial dominierend ist, bis ca. 10^4 Jahre nur um etwa 1 Zehnerpotenz ab. Der Anteil der einzelnen Transurane ist in Fig.4.1-3 dargestellt.

4.1.2 <u>Jährlicher Radiotoxizitätsindex von HSM auf der</u> Basis der Grenzwerte von ICRP-30

Die Ergebnisse der Berechnung des jährlichen Radiotoxizitätsindex auf der Basis der Ingestionsgrenzwerte nach ICRP-30 ist
nur in graphischer Form wiedergegeben, da noch nicht alle für
eine vollständige Rechnung wichtigen Grenzwerte veröffentlicht
sind.

Der relative Beitrag der Aktivierungsprodukte, der Actiniden und der Spaltprodukte, wie auch der zeitliche Verlauf des jährlichen Radiotoxizitätsindex in Fig.4.1-4 zeigt, daß bei kurzen Kühlzeiten die Aktivierungs- und Spaltprodukte dominierend sind, aber bereits zwischen 20 und 100 Jahren ein zunehmender Anteil auf die Actiniden entfällt. Von ca. 100 bis 300 Jahren sind die Actiniden und die Aktivierungsprodukte bestimmend, danach im wesentlichen die Actiniden.

JAEHRLICHER RADIOTOXIZITAETSINDEX VON HUELL- UND STRUKTURMATERIAL (DWR-BRENNELEMENTE; ABBRAND 33 GWD/T SM) TABELLE 4.1

| | MENGE | | R AD TOTOXI ZITAETSINDEX | | | | | | |
|------------------|------------|----------|--------------------------|------------------|------------------|------------------|---------|------------------|------------|
| | (G/T SM) | | | | | FALLSZEIT | | | |
| | l A | 1 4 | 3 A | 5 A | 7 A | 10 A | 20 A | 100 A | 1000 |
| KT [VIERUNGSPROD | UKTE VON H | ISM – FI | NZELNUKL | TDE | | | | | |
| MN-54 | | 2.1E+8 | 4.2E+7 | 8.3F+6 | 1.7E+6 | 1.5E+5 | | | |
| FE-55 | | 4.8E+8 | 2.8E+8 | 1.6E+8 | 9.6E+7 | 4.3E+7 | 3.0F+6 | | |
| CO-58 | | 1.1E+8 | 8.5E+4 | | | • | | | |
| CO-60 | | 5.2E+9 | 4.0E+9 | 3.1E+9 | 2.4E+9 | 1.6E+9 | 4.2E+8 | 1.1E+4 | - - |
| NI-59 | | 8.7E+5 | 8.7E+5 | 8.7E+5 | 8.7E+5 | 8.7F+5 | 9.7E+5 | 8.7E+5 | 8.6E+ |
| NI-63 | | 9.0E+8 | 8.9E+8 | 8.8E+8 | 9.6E+8 | 8.4F+8 | 7.8E+8 | 4.3E+8 | 4.354 |
| ZR/NB-93 | | 5.3E+3 | 6.0E+3 | 6.7E+3 | 7.3E+3 | 8.0E+3 | 9.9E+3 | 1.3E+4 | 1.3E |
| ZR/NB-95 | | 9.8E+8 | 3.6E+5 | | 1030.3 | 0.02.3 | 76 72 3 | | 1.50 |
| NB-94 | | 4.9E+4 | 4.9E+4 | 4.9E+4 | 4.9E+4 | 4.9E+4 | 4.9E+4 | 4.9E+4 | 4.7E |
| | | | | | | | | | |
| MO-93 | | 4.5E+5 | 4.5E+5 | 4.5E+5 | 4.5E+5 | 4.5F+5 | 4.5E+5 | 4.4E+5 | 3.7E+ |
| TC-99 | | 1.4E+3 | 1.4E+3 | 1.4E+3 | 1.4E+3 | 1.4E+3 | 1.48+3 | 1.45+3 | 1.4E4 |
| SN-119M | | 6.8E+8 | 8.6E+7 | 1.1E+7 | 1.4E+6 | 6.7E+4 | | | |
| SN-121M | | 1.7E+5 | 1.76+5 | 1.6E+5 | 1.6E+5 | 1.5E+5 | 1.3E+5 | 4.3E+4 | |
| SB-125 | | 1.2E+7 | 7.4E+6 | 4.5E+6 | 2.7E+6 | 1.3E+6 | 1.0E+5 | | |
| TE-125M | | 2.4E+6 | 1.5E+6 | 8.9E+5 | 5.4E+5 | 2.5E+5 | 2.1E+4 | | |
| TA-182 | | 1.9E+9 | 2.3E+7 | 2.9E+5 | 3.4F+3 | | | | |
| | | | | | | | | | |
| KTIVIERUNG VON I | BRENNSTAB- | UND STRU | KTURMATER | RIAL (ST | ABSCHERE | | | | |
| HUELSEN | 315000 | 2.8E+9 | 9.2E+8 | 6.5E+8 | 4.9E+8 | 3.4E+8 | 1.15+8 | 1.8E+7 | 6.8E4 |
| STRUKTURMATER. | 109000 | 7.6E+9 | 4.46+9 | 3.5E+9 | 2.8E+9 | 2.1E+9 | 1.1E+9 | 4.1E+8 | 1.6E |
| | | | | | | | | 4.3E+8 | |
| SUMME | 424000 | 1.0E+10 | 5.3E+9 | 4.1E+9 | 3.3E+9 | 2.5F+9 | 1.2E+9 | 4.35+8 | 1.7E |
| TRUKTURMATERIAL | | | | | | | | | |
| -ABSTANDSHALTER | 16350 | 3.9E+9 | 1.7E+9 | 1.4E+9 | 1.2E+9 | 9.7E+8 | 4.2E+8 | 2.8E+8 | 1.3E4 |
| -FUEHRUNGSROHRE | 28600 | 3.0E+9 | 2.2E+9 | 1.7E+9 | 1.3F+9 | 9.2E+8 | 3.7E+8 | 9.6E+7 | 2.9E4 |
| -ENDSTUECKE | 64000 | 7.1E+8 | 5.2E+8 | 4-1E+8 | 3.2E+9 | 2.4E+8 | 1.1E+8 | 3.7E+7 | 1.2E |
| KTIV[ERUNG VON) | HUELL- UND | STRUKTUR | MATERIAL | (BUENDE | LSCHERE) | | | | |
| HUELLMATERIAL | 360000 | 9.7E+9 | 4.8E+9 | 3.7E+9 | 3.0E+9 | 2.2E+9 | 1.1E+9 | 3.9E+8 | 1.6E+ |
| ENDSTUECKE | 64000 | 7.1E+8 | 5.2E+8 | 4.1E+8 | 3.2E+8 | 2.4F+8 | 1.1E+8 | 3.7E+7 | 1.2E+ |
| SUMME | 424000 | 1.0E+10 | | 4.1E+9 | 3.3E+9 | 2.5E+9 | 1.2E+9 | 4.3E+8 | 1.764 |
| ONTAMINATION DEF | HUELSEN | | | | | | | | |
| 50 % TRITIUM | | 1.6E+6 | 1.4E+6 | 1.3E+6 | 1.1E+6 | 9.48+5 | 5.6E+5 | 6.0E+3 | _ |
| | 28 | 5.7E+9 | 4.3E+9 | 3.9E+9 | 3.6E+9 | 3.3E+9 | 2.6E+9 | 3.9E+8 | 2.1E+ |
| 0.1 % SPALTPROD. | | 2.1544 | | | | | | | |
| ACTINIDEN (*) | 296 | | 2.6E+7 | 2.7E+7 | 2.7E+7 | 2.8E+7 | 3.0E+7 | 2.7F+7 | 8.0E |
| DAVON - U | 287 | | 5.5E+3 | 5.6E+3 | 5.6E+3 | 5.7E+3 | 6.0E+3 | 7.7E+3 | 9.7E4 |
| _ | | | | | | | | | |
| - NP-237 | 0.1 | | 6.0E+2 | 6.0E+2 | 6.1E+2 | 6.1E+2 | 6.5E+2 | 1.2E+3 | 4.7E |
| PU-238 | | | 9.7E+6 | 9.6E+6 | 9.4E+6 | 9.2E+6 | 8-5E+6 | 4.5E+6 | 3.7E |
| PU-239 | | | 1.4E+6 | 1.4E+6 | 1.4E+6 | 1.4E+6 | 1.4E+6 | 1.4E+6 | 1.4E4 |
| | | | 2.4E+6 | 2.4E+6 | 2.4E+6 | 2.4E+6 | 2.4E+6 | 2.3E+6 | 2.18 |
| PU-240 | | | | | 8.2E+6 | | | 9.3E+4 | - |
| PU-241 | | | 9.9E+6 | 9.0E+6 | | 7.1E+6 | 4.4E+6 | | |
| PU-242 | | | 7.8E+3 | 7.8E+3 | 7.8E+3 | 7.8E+3 | 7.8E+3 | 7.8E+3 | 7.8E4 |
| - PU (**) | 9.0 | | 2.3E+7 | 2.2E+7 | 2.1E+7 | 2.0E+7 | 1.7F+7 | 8.4E+6 | 3.5E |
| AM-241 | | | 1.1E+6 | 3.0E+6 | 5.7E+6 | 6.9E+6 | 1.2E+7 | 1.9E+7 | 4.4F |
| AM-243 | | | 2.5E+4 | 2.5E+4 | 2.5E+4 | 2.5E+4 | 2.5E+4 | 2.5E+4 | 2.3E |
| - AM | 0.09 | | 1.25+6 | 3.0E+6 | 4.7E+6 | 6.9E+6 | 1.2E+7 | 1.9E+7 | 4.5E |
| | | | | | 1 2543 | | | | |
| CM-242 | | | 1.2E+5 | 6.3E+3 | 1.2E+3 | | | 1 05:3 | |
| | | | 2.0E+4 | 1 - 9E+4 | 1.8E+4 | 1.7E+4 | 1.3E+4 | L.9E+3 | - |
| CM-243 | | | | | | | | | |
| CM-243 CM-244 | | | 1.2E+6 | 1.2E+6 | 1.1E+6 | 9.5F+5 | 6.5E+5 | 3.0E+4 | - |
| CM-243 | 0.00 | 5 | 1.2E+6 1.4E+6 | 1.2E+6 1.2E+6 | 1.1E+6 1.1E+6 | 9.5E+5 9.7E+5 | 6.6E+5 | 3.0E+4 3.3E+4 | _ |

^{*) 0.1 %} PU, 0.03 % U, NP, AM, CM VOM DURCHSATZ

**) PU-VEKTOR (NACH 3 A) PU-238 1.5 %, PU-239 55.9 %, PU-240 25.5 %,

PU-241 11.8 %, PU-242 5.2 %;

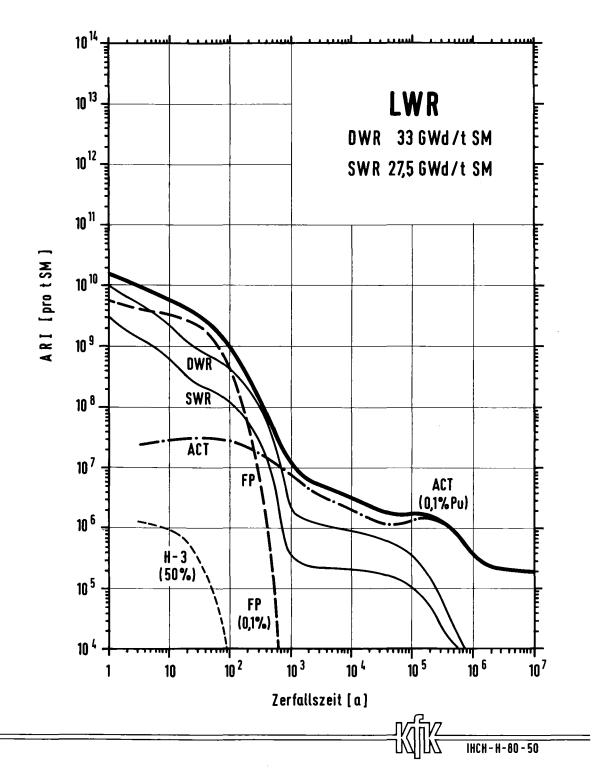


Fig. 4.1-1 Jährlicher Radiotoxizitätsindex für Ingestion (ARIw) von Hüll-und Strukturmaterial nach StrlSchV.
(WA nach 3a; Actiniden: 0,1% Pu; 0,03% U, Np, Am, Cm)

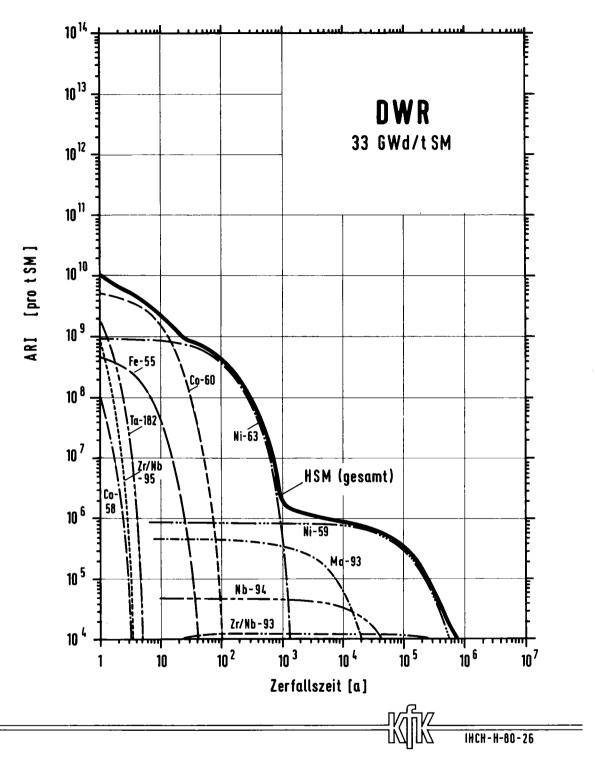


Fig. 4.1-2 Jährlicher Radiotoxizitätsindex für Ingestion (ARIw) einzelner Nuklide der Aktivierungsprodukte von Hüll-und Strukturmaterial nach Strahlenschutzverordnung.

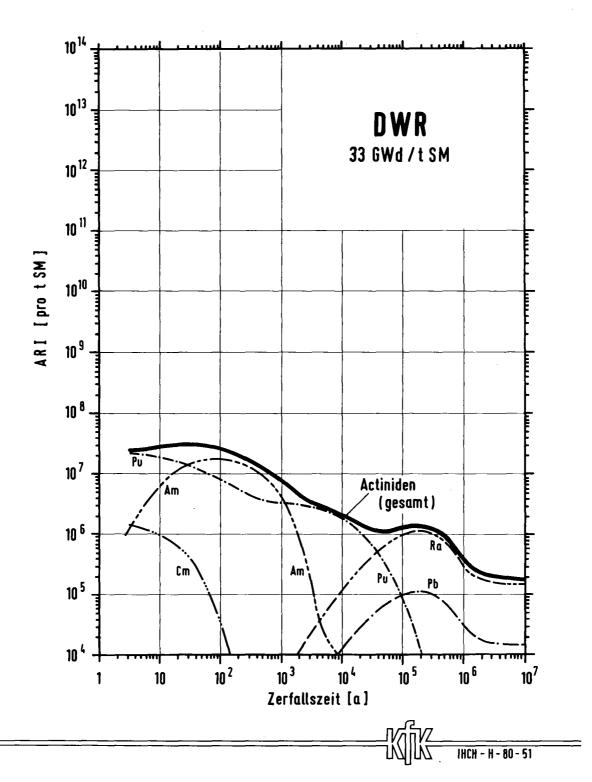


Fig. 4.1-3 Jährlicher Radiotoxizitätsindex für Ingestion (ARI w) einzelner Actiniden im Hüll- und Strukturmaterial nach StrlSchV. (WA nach 3a; Actiniden: 0,1% Pu; 0,03 % U, Np, Am, Cm)

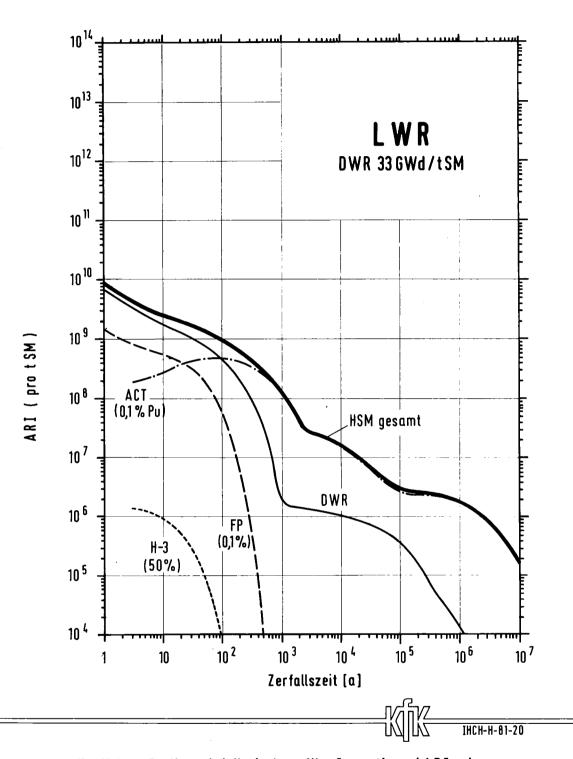


Fig. 4.1-4 Jährlicher Radiotoxizitätsindex für Ingestion (ARI W) von Hüll-und Strukturmaterial nach ICRP-30 (WA nach 3a; Actiniden: 0,1% Pu; 0,03 % U, Np, Am, Cm)

4.2 Jährlicher Radiotoxizitätsindex von Feedklärschlamm

Der jährliche Radiotoxizitätsindex von Feedklärschlamm wurde nach der im Teil I der Studie /4/ ermittelten Zusammensetzung (vgl. auch Tab.4.2) bzw. Aktivität mit Hilfe des Programms KORIGEN-79 gerechnet, ebenso der zeitliche Verlauf.

4.2.1 <u>Jährlicher Radiotoxizitätsindex von FKS auf der</u> Basis der Strahlenschutzverordnung

Die Ergebnisse der Berechnung des jährlichen Radiotoxizitätsindex von FKS auf der Basis der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr für Ingestion JAZW nach der Strahlenschutzverordnung/11/ sind in Tabelle 4.2 aufgelistet. Der relative Beitrag der Spaltprodukte, Actiniden und Zircaloy-4-Späne zum jährlichen Radiotoxizitätsindex von FKS ist in Fig.4.2-1 dargestellt. Zusätzlich ist der zeitliche Abfall des Radiotoxizitätsindex einzelner Spaltprodukte der Fig.4.2-2 zu entnehmen. Der zeitliche Verlauf des Radiotoxizitätsindex der einzelnen Transurane geht aus Fig.4.1-3 hervor, mit dem Unterschied, daß für den FKS ein Gehalt von 0,2 % des Pu angenommen wurde.

Anteilmäßig wird der jährliche Radiotoxizitätsindex bis ca. 200 Jahre von den Spaltprodukten, d.h. bis ca. 10 Jahre von Ru/Rh-106 dann von Cs/Ba bzw. Sr/Y, bestimmt. Nach mehr als 200 Jahren Zerfallszeit werden die Actiniden und ihre Folgeprodukte für die Radiotoxizität bestimmend.

4.2.2 <u>Jährlicher Radiotoxizitätsindex von FKS</u> auf der Basis von ICRP-30

In Fig.4.2-3 ist der relative Beitrag der Spaltprodukte, Actiniden und Zircaloy-4-Späne zum jährlichen Radiotoxi-zitätsindex auf der Basis der neuen Grenzwerte von ICRP-30 dargestellt.

Danach wird der jährliche Radiotoxizitätsindex bis ca. 20 Jahre von den Spaltprodukten, danach von den Actiniden bestimmt. Die höher toxische Bewertung der Actiniden gegenüber den bisherigen Werten, macht sich insbesondere nach Zerfallzeiten von mehr als 100 Jahren bemerkbar.

TABELLE 4.2 JAEHRLICHER RADIOTOXIZITAETS (NDEX VON FEEDKLAERSCHLAMM VON LWR-BRENNSTOFF (DWR-BRENNELEMENTE, ABBRAND 33 GHD/T SM)

[HCH-H-80/17 ELEMENT NUKLID
GEW-% RADIOTOXIZITAETSINDEX IM FKS ZERFALLSZEIT 1 A 5 A 20 A 100 A 10 A 1000 A SPALTPRODUKTE CS-134 4.0E+8 CS/BA-137/4 2.3E+8 2.1E+8 5.4E+7 6.8E+5 0.2 1.1E+8 2.0E+7 CS 2.2E+9 4.5E+9 2.1E+8 2.0E+8 1.9E+8 1.5E+8 3.2E+5 3.9E+9 3.0E+9 0.05 SR / Y-90 4.1E+9 1.0E+7 SR 4.8E+9 4.3E+9 4.5F+8 CE/PR-144 CE 0.3 2.2E+9 3.6E+8 6.1E+7 7.1E+5 PM 0.0065 PM-147 1.2E+7 6.9E+6 4.0E+6 2.4E+6 1.1E+6 7.7E+4 SM SM-151 1.9E+4 1.9E+4 9-1F+3 0.034 1.9F+4 2.0E+4 1.8F+4 1.7E+4 -ΕU 0.0068 EU-154 9.8E+6 8.4E+6 7.1E+6 6.1E+6 4.8E+6 2.1E+6 3.3E+3 EU-155 6.3E+5 4.7E+8 4.8E+5 3.6E+5 2.7E+5 1.8E+5 4.5F+5 ZR ZR /NB-95 3 1.8F+5 6-3F+1 TC-99 1.9E+5 TC 1.9E+5 1.9E+5 1.9E+5 1.9E+5 1.9E+5 1.9E+5 1.7E+11 2.4E+4 2.8E+9 2.4E+4 Rυ 40 RU/RH-106 4.3E+10 1.1E+10 3.5E+8 3.5E+5 SN/SB-126/M SB/TE-125/M 0.3 2.4E+4 2.4E+4 2.4E+4 2.4E+4 2.4E+4 2.4E+4 SN 0.2 5-1E+8 3.1E+8 1.9E+8 1.1E+8 TF TE-127/M 6-4F+7 6.2E+5 5.9F+3 SUMME FP 1.8E+11 4.9E+10 1.6F+10 7.3E+9 4.5E+9 3.2F+9 4.8E+8 2.4E+5 ACTINIDEN U 5 U-GESAMT 3.3E+3 3.4E+3 3.6E+3 3.7E+3 3.9E+3 4.5E+3 7.9E+3 1.2E+4 2.1E+3 ΝP 0.012 NP-237 2.0E+3 2.0E+3 2.0E+3 2.0E+3 2.0E+3 3.3E+3 1-1E+4 PU 0.5 PU-GESAMT 4-9E+7 4.6E+7 4.4F+7 4-2E+7 4.0E+7 3.3E+7 1.7E+7 7.0E+6 1.9E+7 1.9E+7 1.9E+7 1.9E+7 1.8E+7 PU-239 2.8E+6 4.7E+6 2.8E+6 2.8E+6 4.7E+6 2.8E+6 2.8E+6 2.8E+6 4.7E+6 2.8E+6 2.7E+6 4.3E+6 4.7F+6 4.7E+6 PU-240 4.7F+6 4.7E+6 2.2E+7 2.0E+7 1.4E+7 8.7E+6 1.8E+5 1.8E+7 PU-242 1.5E+4 1.5E+4 1.5F+4 1.5E+4 1.5E+4 1.55+4 1.5F+4 1.5F+4 9.4E+6 1.7E+7 0.008 AM-GESAHT 1.8E+6 5.8E+6 1.3E+7 2.8E+7 4.0E+7 9.6E+6 AM-241 AM-242M 1.7E+6 2.1E+4 5.7E+6 2.0E+4 9.3E+6 2.0E+4 1.3E+7 2.0E+4 1.7E+7 2.0E+4 2.8E+7 1.9E+4 4.0E+7 1.3E+4 9.5E+6 2.2E+2 AM-243 8.5E+4 8.5E+4 8.5E+4 8.5E+4 8.5E+4 8.5E+4 7.8E+4 CM 0-0006 CM-GESAMT 1.3E+7 4.6E+6 3.9E+6 3.6E+6 3.2E+6 2.2E+6 1.1E+5 3-1E+2 CM-242 8.7E+6 4.0E+5 2.1E+4 4.0E+3 3.1E+3 3.0E+3 2.05+3 _ CM-243 6.9E+4 4.5E+6 6.6E+4 6.2E+4 5.9E+4 3.6E+6 5.5E+4 3.2E+6 4.3E+4 2.2E+6 6.2E+3 CM-244 4.1E+6 3.8E+6 1.0E+5 SUMME ACTINIDEN 1.7E+7 6.4E+7 5.7E+7 5.8E+7 5.9E+7 6.0E+7 6.3E+7 5.7E+7 1.1E+5 1.8E+4 ZIRCALOY-4 SPAENE 2.8E+6 9.2E+5 6.5E+5 4.9E+5 3.4E+5 GESAMT 1.8E+11 4.9E+10 1.6E+10 7.4E+9 4.6E+9 3.3E+9 5.4F+8 1.75+7

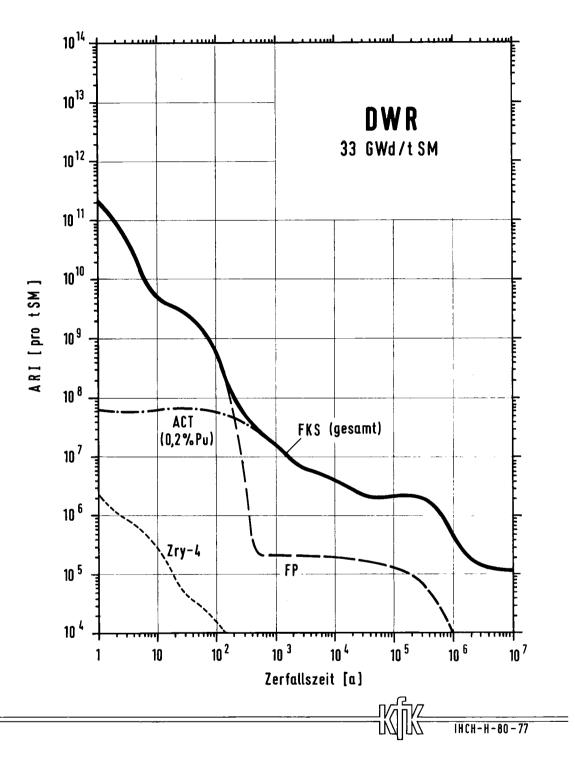


Fig. 4.2-1 Jährlicher Radiotoxizitätsindex für Ingestion (ARI w) von Spaltprodukten, Actiniden und Zircaloy-Spänen im Feedklärschlamm nach Strahlenschutzverordnung (Actiniden: 0,2 % Pu; 0,02 % U; 0,1 % Np, Am, Cm)

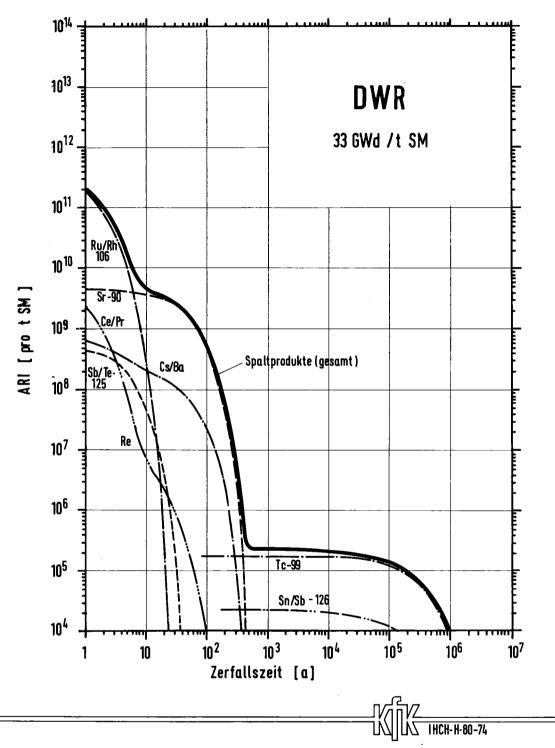


Fig. 4.2 -2 Jährlicher Radiotoxizitätsindex für Ingestion (ARI_W) einzelner Spaltprodukte im Feedklärschlamm nach StrlSchV.

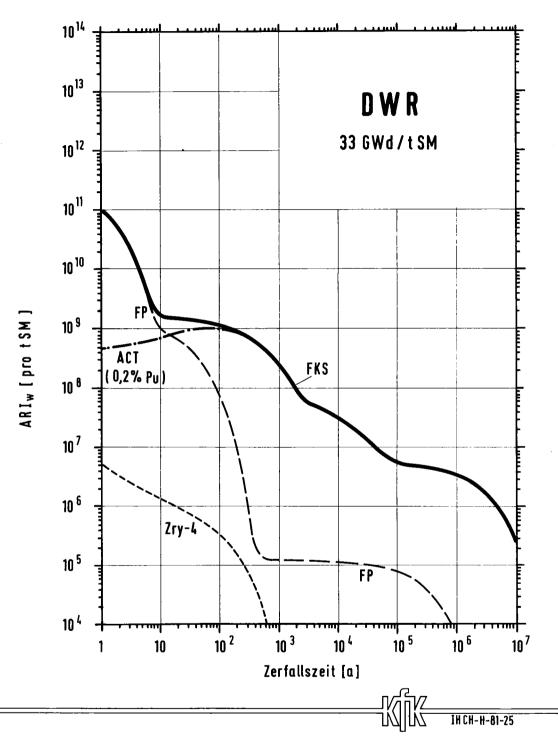


Fig. 4.2-3 Jährlicher Radiotoxizitätsindex für Ingestion (ARI_W) von Spaltprodukten, Actiniden und Zircaloy-4-Spänen im Feedklärschlamm nach ICRP-30 (Actiniden: 0,2 % Pu; 0,02 % U; 0,1 % Np, Am, Cm)

Jährlicher Radiotoxizitätsindex von wäßrigem Prozeß-MAW

Der jährliche Radiotoxizitätsindex des wässrigen, mittelaktiven Prozeßabfalls (MAW) aus der Wiederaufarbeitung wurde gemäß der im Teil I der Studie /4/ ermittelten Zusammensetzung (vgl. ebenfalls Tab.4.3) mit Hilfe des Rechenprogrammes KORIGEN-79 berechnet.

4.3.1 <u>Jährlicher Radiotoxizitätsindex von MLLW auf</u> der Basis der Strahlenschutzverordnung

Die Ergebnisse der Berechnung des jährlichen Radiotoxizitäts-index von MLLW auf der Basis der Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr durch Ingestion ($\rm JAZ_W$) nach der Strahlenschutzverordnung /11/ sind in Tabelle 4.3 zusammengefaßt.

Der zeitliche Verlauf des Radiotoxizitätsindex ist in Fig.4.3-1 dargestellt. Bis ca. 100 Jahre ist der Anteil der Spaltprodukte überwiegend. Wie in Fig.4.3-2 detailliert ist, sind die Nuklide Ru/Rh-106 und die Konzentration an Sr-90 bestimmend. Nach Zerfallszeiten über 100 Jahren wird die Radiotoxizität durch die Actiniden bestimmt. Der Beitrag der einzelnen Actiniden ist in Fig.4.3-3 dargestellt. Bis über 10⁴ Jahre Zerfallszeit ist die Radiotoxizität von Pu und Am-241 maß-gebend.

4.3.2 <u>Jährlicher Radiotoxizitätsindex von MLLW</u> nach ICRP-30

Der jährliche Radiotoxizitätsindex für Ingestion nach den Grenzwerten der ICRP-30 /20/ ist für MLLW in Fig.4.3-4 aufgezeichnet. Aus dem relativen Beitrag der Spaltprodukte und Actiniden ist zu entnehmen, daß die anfänglich bestimmenden Spaltprodukte nach weniger als 10 Jahren an Bedeutung verlieren und die Actiniden dominierend werden.

Fig. 4.3-4 enthält zusätzlich die Beiträge der einzelnen Actinidenelemente zum jährlichen Radiotoxizitätsindex von MLLW. Bis 3·10⁴ Jahre sind Am und Pu bestimmend, noch langzeitiger Np und Zerfallsprodukte.

TABELLE 4.3 JAEHRLICHER RADIOTOXIZITAET.SINDEX VON WAESSRIGEM PROZESS-MAW AUS DER WA VON LWR-BRENNSTOFF (DWR-BRENNSTOFF; ABBRAND 33 GWD/T SM)

IHCH-H-80/20 ENT NUKLID MENGE ELEMENT RADIOTOXIZITAETSINDEX (G/T SM) ZERFALLSZEIT 10 4 20 4 1 A 7 A 100 A 1 A 3 A 1000 A SPALTPRODUKTE CS 0-273 CS-134 2-6F+7 1.3F+7 6.7F+6 3-4F+6 1-2F+6 4.3F+4 CS/BA-137/M 1.5E+7 1.3E+7 1.3E+7 1.2E+7 1.4E+7 9.5E+6 1.5E+6 0.089 SR CE SR/Y-90 CE/PR-144 3.9E+8 3.7E+8 3.6E+8 3.4E+8 3.2E+8 2.5E+8 4.3E+7 0.128 7.2E+6 1.2E+6 2.0E+5 1.4E+4 0.0071 PM-147 6.0E+5 3.6E+5 2.1F+5 4.0E+3 1.2E+5 5.6E+4 Eυ 0.0073 EU-154 4.9E+5 4.2E+5 3.5E+5 3.0F+5 2.4E+5 1.1E+5 EU-155 3.2E+4 9.0E+3 1.8E+4 1.4E+4 2.2E+3 17.8 ZR/N8-95 5.6E+7 2.1E+4 0.79 1.7E+3 TC RU TC-99 RU/RH-106 1.7E+3 4.5E+9 1.7E+3 1.7E+3 1.7E+3 1.7E+3 1.7E+3 1.7E+3 1.1E+9 2.9E+8 7.2E+7 9.2E+6 9.2E+3 AG-110M SB/TE-125/M AG 0.066 7.3E+5 1.3E+4 1.9E+5 1.5E+4 SB 0.015 1.8E+6 1.1E+6 6.7E+5 4.0E+5 TE 0.45 TE-127/M 6.7E+5 6.5E+3 J 0.222 SUMME FP 3.5E+3 J-129 3.5E+3 3.5E+3 3.5E+3 3.5E+3 3.5E+3 3.5E+3 3.5E+3 5-1F+9 1.5F+9 6-7E+8 4-3E+8 3.4E+8 2.6E+8 3.9E+7 6.1E+3 **ACTINIDEN** U 2870 U-GESAMT 5.5E+4 5.6E+4 5.6E+4 5.6E+4 5.6E+4 5.7E+4 6.0E+4 6.3E+4 NP 1.0E+4 1.0E+4 1.0E+4 1.9E+4 2.13 NP-237 1.0E+4 1.0E+4 1.0E+4 1-1E+4 4.4E+7 4.2E+7 PU 18.1 PU-GESAMT 4.9E+7 4.7E+7 4.0E+7 3.3E+7 1.7E+7 7.0E+6 1.9E+7 1.9E+7 2.8E+6 1.7E+7 8-9E+6 7.2E+3 PU-238 1.9E+7 1.9E+7 1.8E+7 PU-239 2.BE+6 2.8E+6 2.8E+6 2.8E+6 2.8E+6 2.7E+6 2.8E+6 4.7E+6 8.7E+6 PU-240 4.7E+6 4.7E+6 4.7E+6 4.7E+6 4.7E+6 4.7E+6 4.3E+6 1.6E+7 PU-241 2-2E+7 1.8E+7 1.4E+7 1.9E+5 2.0E+7 1.6E+4 PU-242 1.6E+4 1.6E+4 1.6E+4 1.6E+4 1.6E+4 1.6E+4 0.018 AM-GESAMT 1.8E+5 4.3E+6 1.1E+7 3.9E+7 9.3E+6 AM 7.9E+6 1.6E+7 2.6E+7 1.7E+5 4.2E+6 7.9E+6 1.6F+7 2.6E+7 1.1E+7 AM-243 8.3E+3 8.3E+3 8.3E+3 8.3E+3 8.3E+3 8.3E+3 8.3E+3 7.6E+3 0.0022 CM-GESAMT 2.2E+5 1.3E+6 4.6E+5 3.9E+5 3.6E+5 3.2E+5 CM-242 CM-243 8.8E+5 6.9E+3 4.0E+4 2.1E+3 6.3F+3 6.0E+3 5.5E+3 6.6E+3 4.3E+3 4.5E+5 4.1E+5 3.8E+5 3.2E+5 1.0E+4 3.6E+5 2.26+5 SUMME ACT 5.0E+7 5.2E+7 5.3E+7 5-4E+7 5.6E+7 6-0E+7 6.1E+7 1.6E+7 GESAMT 3.2E+8 1.0E+8 5.1E+9 1.6E+9 7-2E+8 4.9E+8 4.0E+8

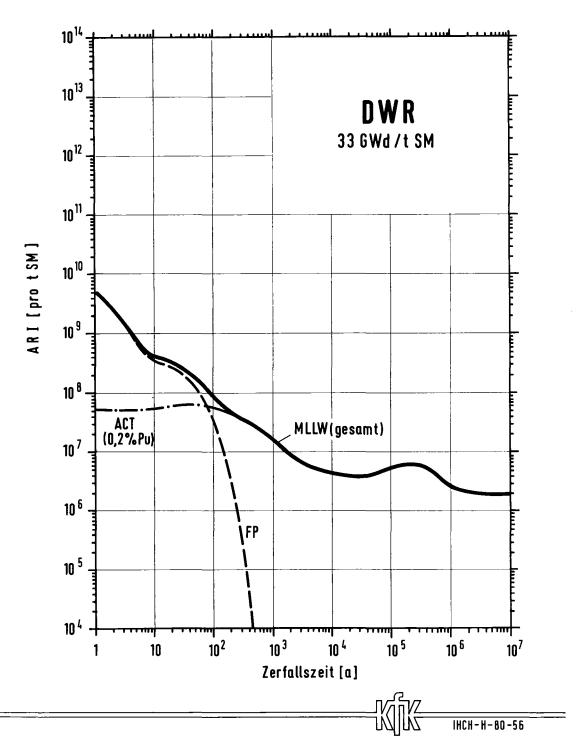


Fig. 4.3-1 Jährlicher Radiotoxizitätsindex für Ingestion (ARIw) von flüssigem Prozeß-MAW aus der Wiederaufarbeitung nach Strahlenschutzverordnung (Actiniden: 0,2 % Pu; 0,3 % U; 0,5 % Np; 0,01% Am,Cm)

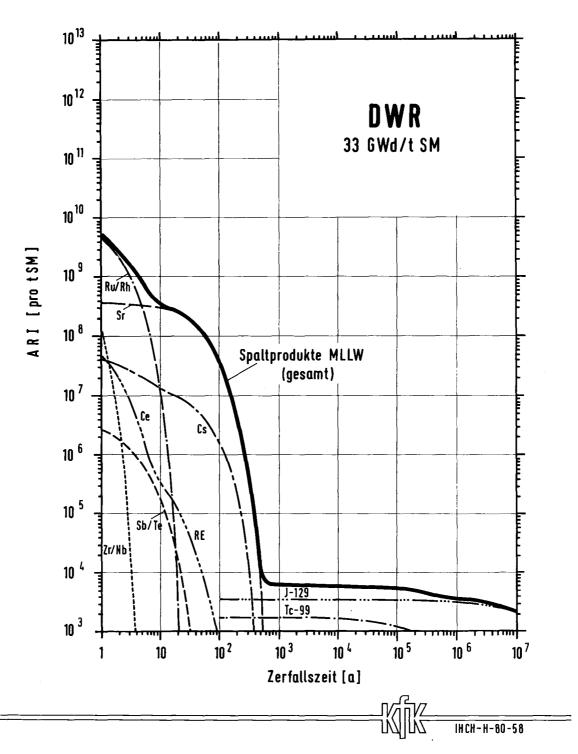


Fig.4.3-2 Jährlicher Radiotoxizitätsindex für Ingestion (ARI $_{\rm W}$) einzelner Spaltprodukte im flüssigen Prozeß-MAW der Wiederaufarbeitung nach StrtSchV.

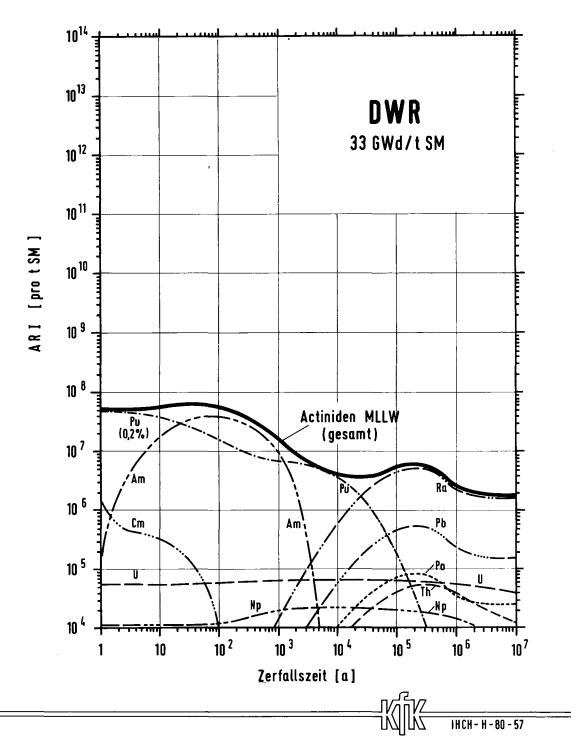


Fig. 4.3-3 Jährlicher Radiotoxizitätsindex für Ingestion (ARI w) einzelner Actiniden im flüssigen Prozeß-MAW der WA nach Strahlenschutzverordnung (Actiniden: 0,2 % Pu; 0,3 % U; 0,5 % Np; 0,01 % Am, Cm)

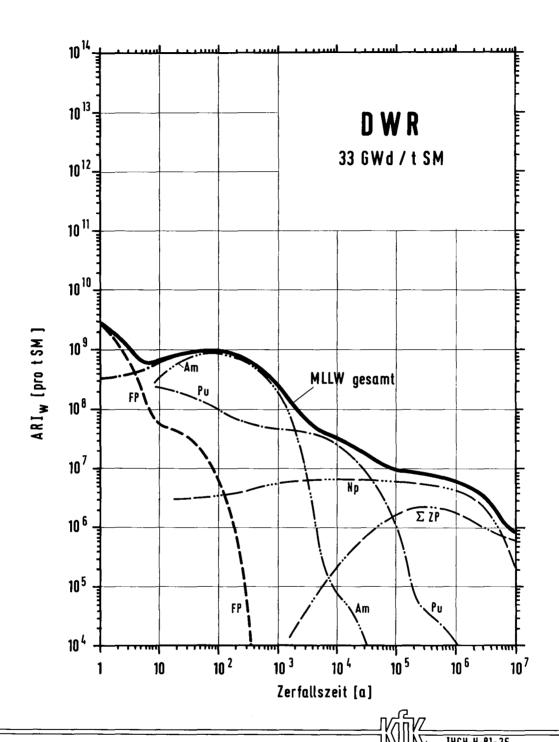


Fig. 4.3-4 Jährlicher Radiotoxizitätsindex für Ingestion (ARI $_{\rm W}$) von wässrigem Prozeß – MAW aus der Wiederaufarbeitung nach ICRP – 30

(Actiniden: 0,2 % Pu; 0,3 % U; 0,5 % Np; 0,01 % Am, Cm)

4.4 <u>Jährlicher Radiotoxizitätsindex von festem</u> schwachaktivem Alpha-Abfall

Der jährliche Radiotoxizitätsindex für Ingestion wurde für die schwachaktiven actinidenhaltigen Abfälle (\propto -LAW) gemäß der im Teil I der Studie /4/ aufgeführten Zusammensetzung berechnet.

4.4.1 <u>Jährlicher Radiotoxizitätsindex von α -LAW</u> auf der Basis der Strahlenschutzverordnung

In Tab.4.4 sind die Ergebnisse der Berechnung des jährlichen Radiotoxizitätsindex von α -LAW auf der Basis der Grenzwerte für die Jahresaktivitätszufuhr nach der Strahlenschutzverordnung /11/ aufgelistet. Fig.4.4-1 gibt den zeitlichen Verlauf wieder.

Der Radiotoxizitätsindex wird durch die α -Strahler Am-241, die Pu-Isotope und sehr langfristig die gebildete Ra-Tochter bestimmt. Der Radiotoxizitätsindex fällt insgesamt bis ca. $3\cdot 10^5$ Jahre um einen Faktor 30 ab.

4.4.2 <u>Jährlicher Radiotoxizitätsindex von α -LAW</u> auf der Basis der ICRP-30

Die Ergebnisse der Berechnung des jährlichen Radiotoxizitätsindex auf der Basis der neuen Grenzwerte der ICRP-30 /20/ für

CV-LAW sind in Fig.4.4-2 dargestellt. Das Diagramm enthält
ebenfalls die Beiträge einzelner Actinidenelemente und der Zerfallsprodukte. Danach sind für Zerfallszeiten bis ca. 10⁵

Jahre Am und Pu bestimmend, noch langzeitiger Np-237, das sich
aus dem Am-241 (Tochter von Pu-241) gebildet hat. Der jährliche Radiotoxizitätsindex erreicht ein Maximum bis ca. 100

Jahren und fällt bis 10⁵ Jahre um ca. 2 Größenordnungen ab.

TABELLE 4-4 JAFHRLICHER RADIOTOXIZITAETSINDEX (INGESTION) VON FESTEN, SCHWAGHAKTIVEM ALPHA-ABFALL DER MOX-FABRIKATION (OWR-BRENNSTOFF; ABBRAND 33 GWO/T SM)

| | | | | | | | | | I HCH-H | -80/23 |
|-------------|---------|-----------|--------------|--------|--------|----------|-----------|--------|---------|--------|
| ELEMENT (+) | | NUKL [D | | | | RADIOTOX | IZITAETSI | NDEX | | |
| MENGE | | | ZERFALLSZEIT | | | | | | | |
| ' | G/T SH) | | 1 A | 3 A | 5 A | 7 A | 10 A | 20 A | 100 A | 1000 A |
| U | 1370. | U-GESAMT | | 2.5E+4 | 2+6E+4 | 2.6E+4 | 2.7E+4 | 3.0E+4 | 4.6E+4 | 6.5E+4 |
| NP | _ | NP-237 | | | | | | | 5.3E+3 | 3.7E+4 |
| PU | 84.9 | PU-GESAMT | | 2.2E+8 | 2.1E+8 | 2.0E+8 | 1.9E+8 | 1.6E+8 | 7.9E+7 | 3.3E+7 |
| | | PU-238 | | 9.1E+7 | 7.0E+7 | 8.8E+7 | 8.65+7 | 8.0E+7 | 4.2E+7 | 3.4E+7 |
| | | PU-239 | | 1.3E+7 | 1.3E+7 | 1.3E+7 | 1.3E+7 | 1.3E+7 | 1.3E+7 | 1.3E+7 |
| | | PU-240 | | 2.3E+7 | 2.3E+7 | 2.2E+7 | 2.2E+7 | 2.2E+7 | 2.2E+7 | 2.0E+7 |
| | | PU-241 | | 9.4E+7 | 8.5E+7 | 7.8E+7 | 6.76+7 | 4.15+7 | 8.8E+5 | - |
| | | PU-242 | | 7.3E+4 | 7.3E+4 | 7.3E+4 | 7.3E+4 | 7.3E+4 | 7.3E+4 | 7.3E+4 |
| AM | - | AM-241 | | | 1.8E+7 | 3.3E+7 | 5.4E+7 | 1.1E+8 | 1.7E+8 | 4.0E+7 |
| GESA | MT | | | 2.2E+8 | 2.3E+8 | 2.4E+8 | 2.4E+8 | 2.5E+8 | 2.5E+9 | 7.3E+7 |

^{*)} ACTINIDEN-GEHALT: 1.0 % PU, 0.14 % U VOM DURCHSATZ (BEZOGEN AUF U-NEU)

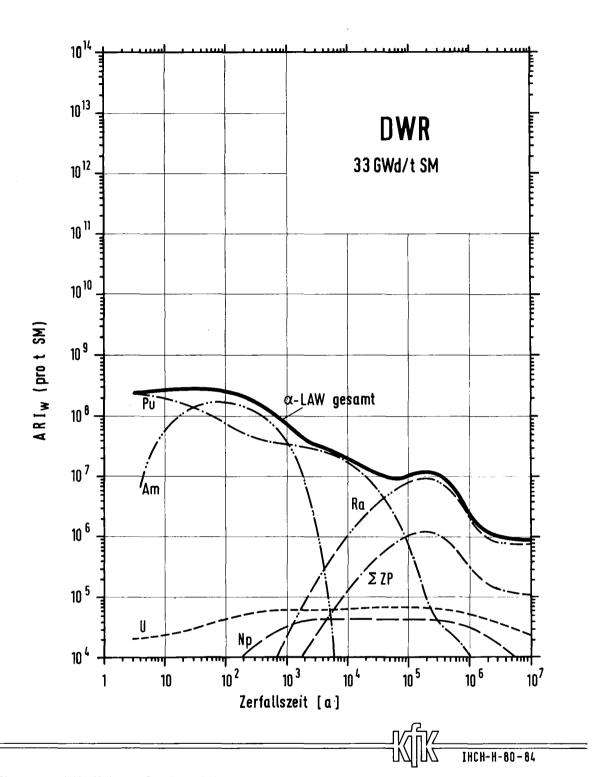


Fig. 4.4-1 Jährlicher Radiotoxizitätsindex für Ingestion (ARI $_{W}$) einzelner Actiniden im festen schwachaktiven α -Abfall (α -LAW) nach Strahlenschutzverordnung. (WA nach 3a; Actiniden: 1% Pu; 0,14 % U)

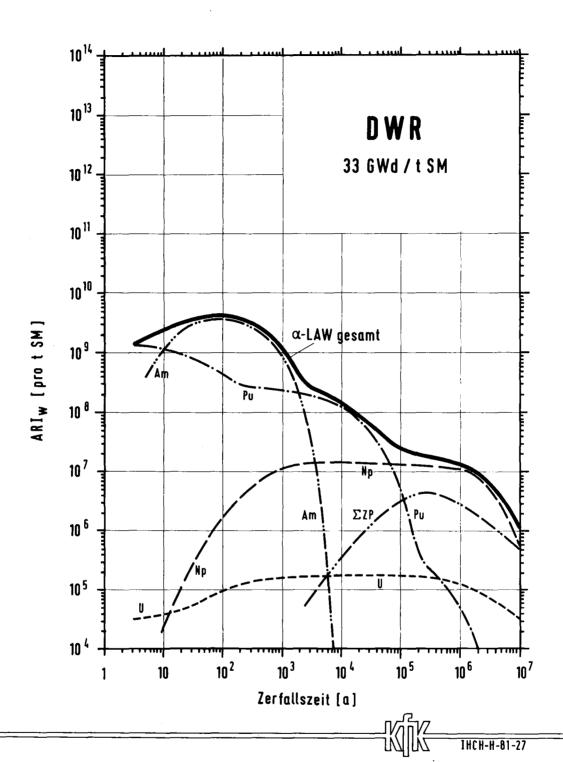


Fig. 4. 4-2 Jährlicher Radiotoxizitätsindex für Ingestion (ARI $_W$) einzelner Actiniden im α -LAW nach ICRP - 30 (WA nach 3a; Actiniden: 1% Pu; 0,14% U)

4.5 <u>Jährlicher Radiotoxizitätsindex von mittelaktivem</u> Reaktorbetriebsabfall

Nach der im Teil I der Studie /4/ angegebenen Nuklidzusammensetzung errechnete sich ein jährlicher Radiotoxizitätsindex auf der Basis der Grenzwerte der Strahlenschutzverordnung von

≤ 1,8·10⁷ nach l a Kühlzeit.

Die Zerfallskurve des Radiotoxizitätsindex wurde in Fig.3.2-1 und diejenige des Radiotoxizitätsindex pro Volumeneinheit in Fig.3.2-2 eingezeichnet. Der Index fällt mit der Halbwertszeit des Co-60 und Cs-137 ab (vgl. Tab.4.5).

TABELLE 4.5 RADIOTOXIZITAETSINDEX VON MITTELAKTIVEM
REAKTORBETRIEBSABFALL
(DWR: JAEHRLICHE BRENNSTOFFENTLADUNG 35 T SM)

| | | | | | | | IHC | H-H-81/4 |
|---------------------|----------|--------|------------|--------|---------|----------|--------|----------|
| NUKLID | | | | ZERFAI | LLSZEIT | | | |
| | 0.3 A | 1 A | 3 A | 5 A | 7 A | 10 A | 20 A | 100 A |
| RADIOTOXIZI | TAETSIND | EX (PR | T SM) | | | | | |
| MN-54 | 1.7E+5 | 9.8E+4 | 1.9E+4 | 3.8E+3 | - | | | |
| CO-58 | 4.7E+5 | 3.9E+4 | , – | | | | | |
| CO-60 | 4.0E+6 | 3.6E+6 | 2.8E+6 | 2.2E+6 | 1.7E+6 | 1.1E+6 | 3.0E+5 | - |
| SB-124 | 9.15+5 | 4-8E+4 | _ | | | | | |
| | | | 2 15 4 | 1 4514 | 8.0E+5 | 2 05 4 5 | 1 0544 | _ |
| CS-134 | 7.6E+6 | 0.05+0 | 3.15.40 | T.OELO | りゅひにすう | とっつじてつ | TOUETH | |
| CS-134 CS/BA-137 | | 8.2E+6 | | | | | | 8.2E+5 |

5. LITERATURVERZEICHNIS:

- /1/ H.O. HAUG

 "Anfall, Beseitigung und relative Toxizität langlebiger

 Spaltprodukte und Actiniden in den radioaktiven Abfällen der Kernbrennstoffzyklen".
 - KfK-2022 (1975)
- /2/ H.O. HAUG
 "Some aspects and long-term problems of high-level and
 actinide-contaminated spent fuel reprocessing wastes
 from the U-Pu and Th-U fuel cycles".
 Proc. Symp. "Management of Radioactive Wastes from the
 Nuclear Fuel Cycle", IAEA, Vol II (1976) 233-42
- /3/ H.O. HAUG

 "Relative toxicity and long-term problems of actinide bearing wastes from fuel reprocessing".

 Proc. Symp. "Waste Management '76", Tucson, Oct. 3-6, (1976) 262-71
- /4/
 H.O. HAUG

 "Zerfallsrechnungen verschiedener mittelaktiver und
 actinidenhaltiger Abfälle des LWR-Brennstoffkreislaufs.
 Teil I. Modellmäßig abgeleitete Basisdaten, Aktivität
 und Wärmeleistung".
 KfK-3221 (1981)
- /5/ W. JACOBI unveröffentlichte Ergebnisse (1981)
- /6/ H.O. HAUG unveröffentlichte Werte (1980)

- /7/ J.W. POSTON

 "Measures of equivalent hazard of radionuclides:
 A survey"

 Report Y/OWI/SUB -7278/2 (1978)
- /8/ M.J. BELL, R.S. DILLON

 "The long-term hazard of radioactive wastes produced by the enriched U, 238U-Pu and 233U-Th fuel cycles".

 Report ORNL/TM 3548 (1971)
- /9/ K.A. TONNESSEN, J.J.COHEN

 "Survey of naturally occurring hazardous material in deep geological formations: A perspective on the relative hazard of deep burial of nuclear wastes".

 Report UCRL 52199 (1977)
- /10/ C.F. SMITH, T.W.T. BURNETT, W.E. KASTENBERG
 "A new relative hazard index".
 Proc. Symp. on "Biological Effects of Low-Level
 Radiation".
 IAEA (1976) 325-33
- /11/ Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen.
 (Strahlenschutzverordnung StrlSchV, vom 13.10.1976)
 Bundesgesetzblatt (1976) 2905-95, Anhang IV, Nachtrag
 vom 26.1.1977, Bundesgesetzblatt (1977) 185-95
- /12/ L.E. BRUNS

 "Hazard available from toxic substances"

 Proc. Symp. "Waste Management '76, Tucson, Oct. (1976)

 105-116

- /13/ L.E. BRUNS

 "Toxic materials availability in perspective".

 Proc. Symp. "Waste Management '79, Tucson, Febr.

 (1979) 125-41
- /14/ C.F. SMITH, W.E. KASTENBERG

 "On risk assessment of high-level radioactive waste disposal".

 Nucl. Eng. Design 39 (1976) 293-333
- /15/ J. HAMSTRA

 "Radiotoxic hazard measure for buried solid radioactive waste".

 Nuclear Safety 16 (1975) 180-9
- /16/ Rat der Europäischen Gemeinschaften
 Richtlinien des Rates vom 15. Juli 1980;
 Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften Nr.L 246
 (1980) 1-72
- /17/ F. GERA, D.G. JACOBS

 "Hazard potential of radioactive waste"

 Proc. Int. Symp. on "Radioecology Applied to the Protection of Man and his Environment", Rome, Sept. 1971,

 EUR 4800 (1971) 891-907
- /18/ International Commission on Radiological Protection Publication No.2 (1959)
- /19/ A.E. RINGWOOD

 "Safe disposal of high-level radioactive wastes"
 Fortschritte der Mineralogie (im Druck, 1980);
 Publ. No. 1438 (1980) Research School of Earth
 Science, Australian Nat. University, Canberra,
 Australia

- /20/ International Commission on Radiological Protection Publication No.30 (1980)
- /21/ J.W. VOSS

 "Safety indices and their application to nuclear waste management safety assessment".

 PNL 2727 (1979)
- /22/ H. RÖTHEMEYER

 "Site investigations and conceptual design for the mined repository in the German nuclear 'Entsorgungs-zentrum'."

 Int. Symp. on the Underground Disposal of Radioactive Wastes, Otaniemi (Helsinki), 2-6 July 1979,

 IAEA-SM-243-48 (1979)
- /23/ N. ADAMS, B.W. HUNT, J.A. REISSLAND

 "Annual limits of intake of radionuclides for workers".

 Report NRPB R82 (1978)
- /24/ J.O. BLOMEKE, J.P. NICHOLS, W.C. McCLAIN "Managing radioactive wastes".

 Physics Today (Aug. 1973) 36-42

6. Abkürzungen

LWR Leichtwasserreaktor

DWR Druckwasserreaktor (englisch PWR)

SWR Siedewasserreaktor (englisch BWR)

SBR Schneller Brutreaktor

MOX Mischoxidbrennstoff

WA Wiederaufarbeitung

BE Brennelement

SM Schwermetall (U + Pu)

FP Spaltprodukte

ACT Actiniden

ZP Zerfallsprodukte

HAW hochaktiver Abfall

MAW mittelaktiver Abfall

HSM Hüll- und Strukturmaterial

FKS Feedklärschlamm

MLLW wässriger mittelaktiver Prozeßabfall

α-LAW leichtaktiver Alphaabfall (brennbar)

MZK Maximal zulässige Konzentration

JAZ Grenzwert der Jahresaktivitätszufuhr

ALI Annual Limit of Intake

ARI Jährlicher Radiotoxizitätsindex

ICRP-2 International Commission on Radiological Protection,

Publication No. 2

1. SSVO 1. Strahlenschutzverordnung

StrlSchV Strahlenschutzverordnung (1976)

US-CFR US Code of Federal Regulations

ORIGEN-73 Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code ORIGEN

KORIGEN-79 Karlsruher Version von ORIGEN (mit Jahreszahl)

VBA Verlorene Betonabschirmung

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Institut für Heiße Chemie

Anhang 1

"Modelle und Vergleiche zur Radiotoxizität von hochaktiven Abfällen und Natururan".

H.O. HAUG

Anhang zur Studie "Zerfallsrechnungen verschiedener mittelaktiver und actinidenhaltiger Abfälle des LWR-Brennstoffkreislaufes. Teil II. Radiotoxizitätsvergleiche", KfK-3222

Inhaltsverzeichnis Anhang 1

| | | Seite |
|------|---|-------|
| A1.1 | Allgemein | 81 |
| A1.2 | Randbedingungen und Definitionen | 82 |
| A1.3 | Zerfallskurven von HAW | 85 |
| A1.4 | Vergleich der Radiotoxizität von LWR-Waste mit Natururan | 91 |
| Al.5 | Literaturverzeichnis (Anhang 1) | 101 |

Al.1 Allgemein

Es gibt zahlreiche Versuche die potentielle Gefährdung durch Radionuklide – oder besser gesagt die Radiotoxizität von hochaktiven Abfällen mit Uranmineralien und Uranerzen oder mit der ursprünglichen Natururanmenge, aus der das angereicherte Uran stammt, zu vergleichen /Al, A2, A3/. Vorgeschlagene Parameter sind u. a. die Aktivität bzw. X-Aktivität, die spezifische Aktivität, oder Ingestions- und Inhalations-"Hazard Indizes". Solche Toxizitätsindizes beruhen auf der Wichtung der Aktivität mit den maximal zulässigen Konzentrationen in Wasser (oder Luft) oder mit den abgeleiteten Grenzwerten für die Jahresaktivitätszufuhr durch Ingestion (oder Inhalation). Die Radiotoxizitätsindizes lassen sich auf einfache Weise aus der Zusammensetzung der Abfälle berechnen und sind Eigenschaften des Radionuklidinventars.

Die Anwendung solcher Parameter in Vergleichen von Waste mit Natururan können zu in weiten Grenzen unterschiedlichen Aussagen führen, wie an einigen Beispielen in den nachfolgenden Diagrammen veranschaulicht wird. Parameter auf der Basis inhärenter Eigenschaften der Abfallnuklidmischungen erlauben keine Aussagen über Belastungen nach möglichen Freisetzungen. Sie haben nur sehr begrenzte Anwendbarkeit in der Sicherheitsanalyse und können - für sich allein auf Wastemanagementoptionen angewandt - auch irreführend sein. Sie erlauben nur einen relativen Vergleich der Radiotoxizität verschiedener Wastearten oder anderen radioaktiven Materialien wie Uranmineralien, sowie deren zeitliche Änderung. Sie erlauben dagegen nicht, ein "akzeptables Niveau" der Radiotoxizität oder signifikante Zerfalls-bzw. Einschlußzeiten für die Endlagerung, nach denen der Waste als nicht mehr toxisch angesehen werden kann, zu definieren.

A1.2 Randbedingungen und Definitionen

Dem Vergleich der Radiotoxizität von hochaktiven Abfällen des LWR mit der Radiotoxizität von Natururan in den nachfolgenden Diagrammen liegen folgende Bezugsgrößen und Definitionen zugrunde:

1) HAW-Glasprodukt:

KfK-Standardglasprodukt GP 98/12 mit

- 15 Gew.-% Gesamt-Waste-Oxide entsprechend
- ca. 10,5 Gew.-% Spaltproduktelemente;
- Dichte 2,83 g/cm^3 .

Da der Gehalt an Wasteoxiden mit der Konzentration der Korrosionsprodukte und den Verlusten an Uran schwankt, wurde auf die Konzentration der Spaltproduktelemente bezogen:

Definition:

REFERENZ-HAW-GLAS

- 10.0 Gew.-% Spaltproduktelemente
- 100 l Glas (= 280 kg Glas) bei 33 GWd/t SM Abbrand

2) HAW-Kokille

Edelstahlkokille mit den Abmessungen:

- Innendurchmesser 0.3 m
- Höhe 1.2 m
- Bruttovolumen 85 1

Aus dem Nutzvolumen ergibt sich folgende

Definition:

HAW-KOKILLE

- Nutzvolumen (85 %) 62 1
- Gebinde pro t SM 1.6
- Abmessungen pro t SM 0.3 m Ø

1,93 m Höhe

3) Ursprüngliche Natururanmenge

Zur Gewinnung von 1 t angereichertem Uran wird auf folgende Konzentrationen bezogen:

- angereichertes Uran mit 3.2 % U-235
- abgereichertes Uran mit 0.25 % U-235
- Uranverluste in den Milltailings: 5 %

Definition:

URSPRÜNGLICHE NATURURANMENGE

• 6,7 t U_{nat} ergibt 1 t Uran mit 3.2 % U-235

4) Maximal zulässige Konzentrationen in Wasser

Der Grenzwert für die Ingestion von Ra-226 ist eine kritische Bezugsgröße, da die Radiotoxizität von Natururan im Gleichgewicht mit seinen Töchtern überwiegend vom Ra-226 bestimmt wird. In der bisherigen Version des Abbrand- und ZerfallsprogrammsORIGEN (ORNL 1973) ist der Grenzwert für die maximal zulässige Konzentration in Wasser des US Code of Federal Regulations enthalten, der um den Faktor 3 höher liegt als die Empfehlung der ICRP /18/. Dieser restriktivere Wert, der sich in der Strahlenschutzverordnung /11/ findet, wurde in das Rechenprogramm KORIGEN-79 (KfK 1979) übernommen:

Maximal zulässige Konzentrationen in Wasser (MZK $_{_{\mathbf{M}}}$)

| | ICRP-2 | US-CFR |
|---|--------------------|--------------------|
| MZK_{w} von Ra-226 $\left[Ci/m^{3}\right]$ Ingestion hazard $\left[m^{3} H_{2}O/g U_{nat}\right]$ | 1•10 ⁻⁸ | 3·10 ⁻⁸ |

5) Abgeleitete Grenzwerte für die Jahresaktivitätszufuhr

In der neuen Strahlenschutzverordnung wurden anstelle der MZK-Werte die abgeleiteten Grenzwerte der Jahres-aktivitätszufuhr (JAZ) eingeführt und gleichzeitig auf das 30 mrem-Konzept Bezug genommen. Zum direkten Vergleich mit den Werten der Strahlenschutzverordnung wurden die neuen Grenzwerte "Annual Limits of Intake (ALI)" der ICRP-30 /20/ ebenfalls auf das 30 mrem-Konzept umgerechnet. Für die Ingestionsgrenzwerte von Ra-226 ergibt sich danach:

| | Str1SchV JAZ | ICRP-30 abgeleitete ^{ALI} ing |
|---|-----------------|--|
| Grenzwert für Ra-226 [Ci/a] | 5.8.10-10 | 1.1.10-8 |
| Jährlicher Radiotoxizitätsindex pro 1 g U _{nat} | 668 | *) 200 |

^{*)} ohne Berücksichtigung von Pa-231 (Wert noch nicht publiziert)

A1.3 Zerfallskurven von HAW

Der relative Beitrag der nichtflüchtigen Spaltprodukte und Actiniden zur Radiotoxizität hochaktiver Abfälle kann aus dem Diagramm Fig. A1-1 entnommen werden. Der Radiotoxizitätsindex fällt in den ersten 300 - 400 Jahren um mehr als 3 Größenordnungen ab, danach erfolgt nur noch ein sehr langsamer Abfall über Zeiträume von einigen Millionen Jahren.

Die berechneten Werte zeigen, daß bis zu einer Zerfallszeit von 300 Jahren der Radiotoxizitätsindex überwiegend von den Spaltprodukten Sr-90 und Cs-137 bestimmt wird (vergl. Fig. A1-2), danach von den langlebigen Actiniden, wie Curium, Americium, Neptunium, restliches Plutonium und Uran (sowie deren Zerfallsprodukte). Wie Fig. A1-3 zeigt, wird der Radiotoxizitätsindex bis über 10⁴ Jahre vom Americium bestimmt. Danach gewinnen Plutonium und Neptunium-237 an Bedeutung.

Nach mehr als 10⁵ Jahren steigt die Kurve des Radiotoxizitätsindex auf ein kleines Maximum an, das durch die Zerfallsprodukte wie Thorium-230, Radium-226 u. a. hervorgerufen wird.

Neue Stoffwechsel- und radiologische Daten und eine wesentliche Änderung der Dosisberechnung für die Ingestion führte
für viele Nuklide, insbesondere für α-Strahler zur Empfehlung
neuer Grenzwerte durch die ICRP /20/. Die neuen Werte waren
zum Zeitpunkt der Berechnung der Daten zur vorliegenden
Studie erst teilweise publiziert, die übrigen fanden sich
bei N. ADAMS et al. /23/. Die Verhältnisse der bisherigen,
abgeleiteten Grenzwerte für die Jahresaktivitätszufuhr
(basierend auf der Dosis für das kritische Organ) zu den
neuen "Annual Limits of Intake (ALI)" (basierend auf dem
effektiven Dosisäquivalent) sind bei Aufnahme durch Ingestion
wie folgt:

| Th-230 | 5 | Np-237 | 300 |
|--------|-------|--------|-----|
| Ra-226 | 0.05 | Pu-238 | 5 |
| Pb-210 | 2 | Pu-239 | 7 |
| Po-210 | 2 | Pu-240 | 7 |
| | | Am-241 | 22 |
| (Sr-90 | 0.12) | Am-243 | 26 |
| (TC-99 | 0.5) | Cm-244 | 24 |

Ra-226 erscheint also deutlich weniger toxisch als früher angenommen worden war, die Transurane erheblich höher. Aus dieser Änderung der Grenzwerte folgt, daß alle bisherigen Berechnungen von Radiotoxizitätsindizes revidiert werden müssen, wie der Vergleich von Fig. A1-3 und Fig. A1-4 zeigt. Der Vergleich der Radiotoxizität von Waste und Natururan führt, wie in Fig. A1-18 bis Fig. A1-20 dargestellt, zu grundlegend anderen Aussagen bei allen transuranhaltigen Abfällen. Zwar steht die Publikation der Grenzwerte für weitere wichtige Nuklide (insbes. Pa-231) noch aus, es resultiert aber eine um 1 bis 2 Größenordnungen höhere Einschätzung der Radiotoxizität der transuranhaltigen hochaktive Abfälle gegenüber Uranmineralien.

Aus dem Vergleich des Radiotoxizitätsindex mit Natururan kann nicht der Schluß gezogen werden, daß sich das "Millionen-Jahr-Problem" der hochaktiven Abfälle in ein solches von 1000 Jahren reduziert (auch Pechblende ist ja nicht harmlos). Im Lichte der neuen ICRP Grenzwerte ist eine solche Folgerung ohnehin kaum mehr möglich und das "Millionen-Jahre-Problem" könnte mangels geeigneter Sicherheitsanalysen schnell wieder in die Diskussion rücken.

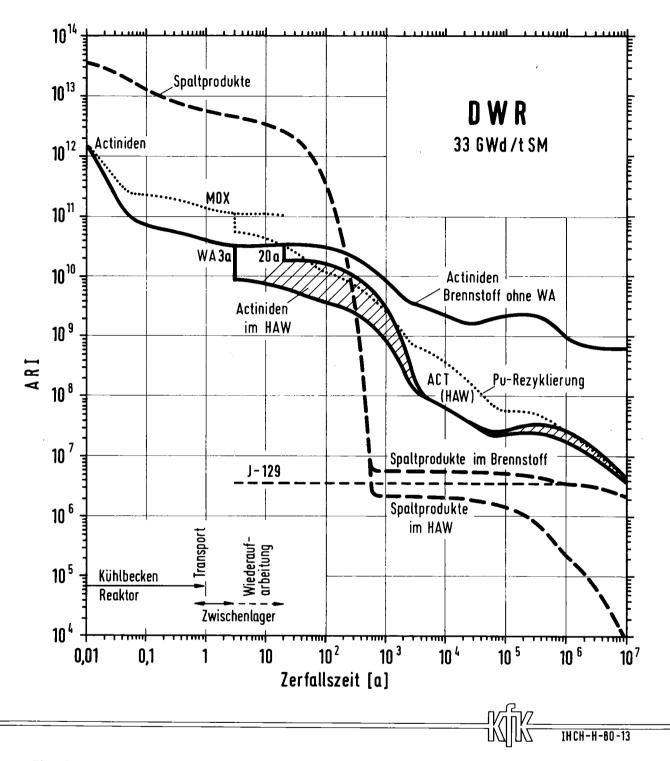


Fig. A1-1 Jährlicher Radiotoxizitätsindex für Ingestion von LWR-Brennstoff und hochaktivem Abfall nach Strahlenschutzverordnung.
(WA nach 3 bis 20a Kühlzeit)

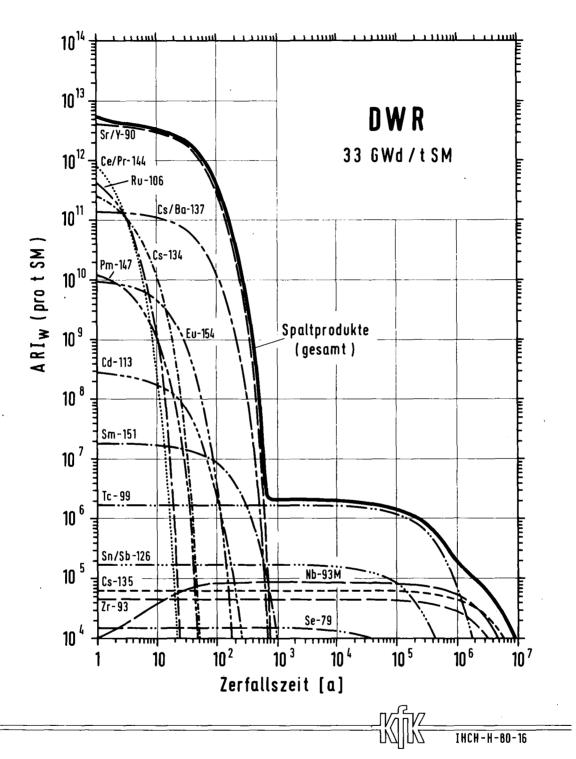


Fig.A1-2 Jährlicher Radiotoxizitätsindex für Ingestion (ARIw) einzelner Spaltprodukte im hochaktiven Abfall.

Basis: JAZw nach Strahlenschutzverordnung

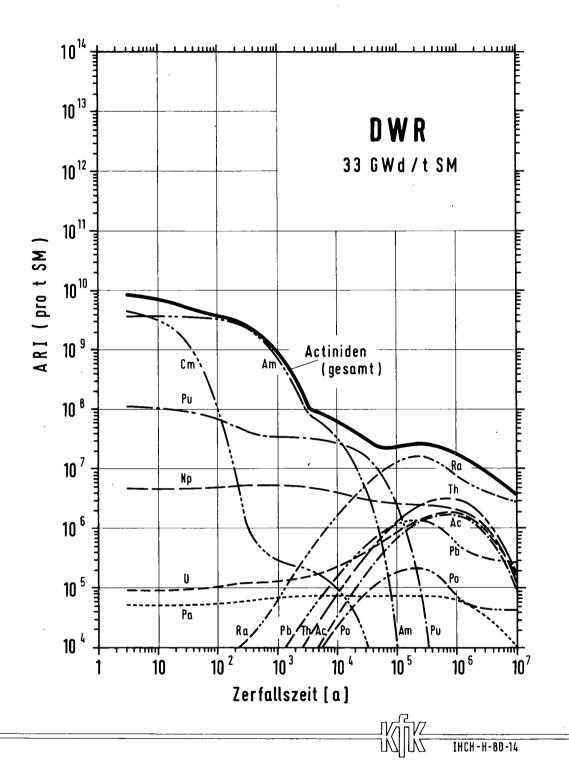


Fig.A1-3 Jährlicher Radiotoxizitätsindex für Ingestion (ARI $_{\rm W}$) einzelner Actiniden und Zerfallsprodukte im hochaktiven Abfall.

Basis: $JAZ_{\boldsymbol{W}}$ nach Strahlenschutzverordnung

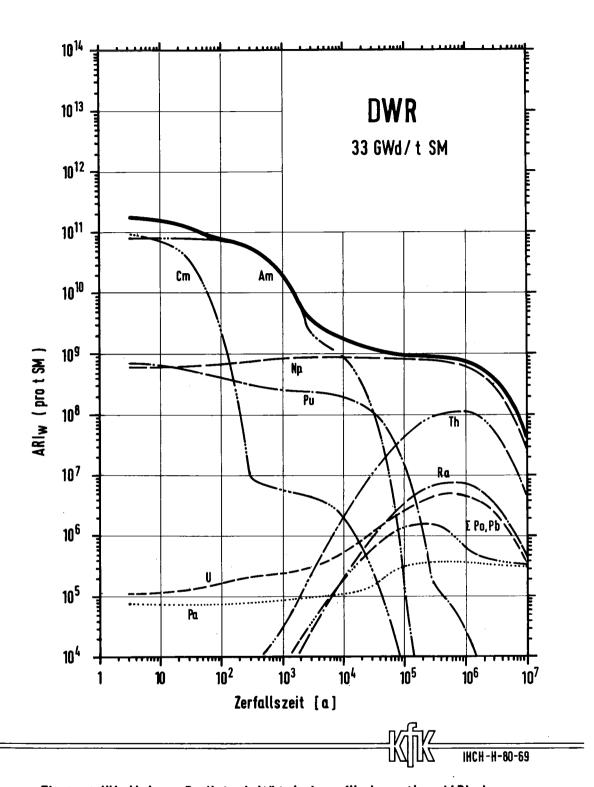


Fig.A1-4 Jährlicher Radiotoxizitätsindex für Ingestion (ARIw) einzelner Actiniden im hochaktiven Abfall von LWR Brennstoff Basis: abgeleitete ALI_{ing} nach ICRP-30

A1.4 Vergleich der Radiotoxizität von LWR-Waste mit Natururan

In den nachfolgenden Diagrammen Fig. A1-5 bis A1-21 sind die Ergebnisse eines Vergleichs verschiedener einfacher Indizes für die Radiotoxizität von LWR-Waste mit Natururan gegenübergestellt.

Folgende Aspekte wurden aufgezeigt:

- Der Einfluß unterschiedlicher Grenzwerte auf die Berechnung der Radiotoxizitätsindizes
- verschiedene Bezugssysteme wie Nuklidinventare pro t
 SM oder pro Volumeneinheit verfestigter Abfälle
- unterschiedliche Vergleichsmodelle wie die ursprüngliche Natururanmenge zur Gewinnung von 1 t angereichertem Uran, Volumen der Gebinde oder Vergleichsvolumen im Endlagerfeld.

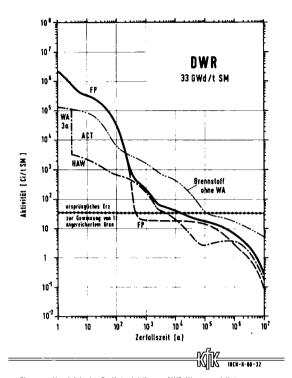


Fig.A1-5 Vergleich der Radiotoxizität von LWR Waste und Natururan Basis: Aktivität

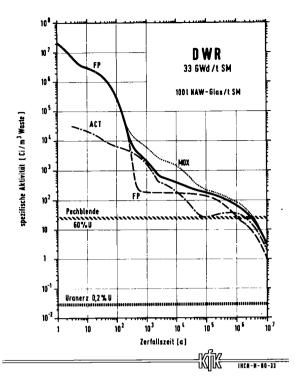


Fig.A1-6 Vergleich der Radiotoxizität von LWR Waste und Natururan Basis: Aktivität pro Volumeneinheit von verglastem HAW

Basis: Aktivität von Spaltprodukten und Actiniden bzw. von Natururan im Gleichgewicht mit seinen Zerfallsprodukten

Gesamte Aktivität (pro t SM)

Vergleich mit ursprünglicher Natururanmenge zur Gewinnung von 1 t 3.2 % angereichertem Uran.

Ergebnis

Die Aktivität des HAW wird bis 300 a und von 10⁴ bis 10⁶ a von den FP, zwischen 300 a und 10⁴ a von den Actiniden bestimmt. Für nicht aufgearbeitete BE bleiben die Actiniden > 300 a bestimmend.

Die Aktivität der FP im HAW fällt nach ca. 5000 a, die der ACT nach ca. 5000 a und die Gesamtaktivität nach ca. $2 \cdot 10^4$ Jahren unter die Aktivität des ursprünglichen Uranerzes ab. (Brennstoff ohne WA nach ca. 10^5 a).

Nachteil

Der Vergleich kann nicht unmittelbar auf den HAW von MOX- oder SBR-Brennstoff ausgedehnt werden, da die vergleichbare Natururanmenge deutlich niedriger wäre. Spezifische Aktivität (pro m³ Waste) Vergleich von gleichgroßen Volumina HAW-Glas und Uranerzen.

Ergebnis

Die spezifische Aktivität pro Volumeneinheit von verglastem HAW (100 l) liegt verglichen mit einem gleichgroßen Volumen Uranerz von 0.2 Gew.-% U nach Zerfallszeiten von 3·10⁶ a immer noch um ca. 3 Größenordnungen höher. Nur Pechblende hätte bei 3·10⁶ a etwa die gleiche spezifische Aktivität wie HAW. Die Aktivität der langlebigen Transurane erreicht das Aktivitätsniveau der Pechblende nach ca. 10⁵ Jahren.

Nachteil

Für die spezifische Aktivität geht das Volumen des Verfestigungsprodukts bzw. Gebindes ein; dies ist bei einem Vergleich mit anderen Wastearten (z. B. BE) zu berücksichtigen.

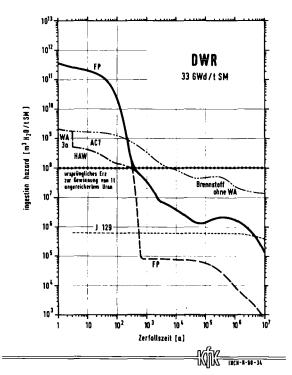


Fig.A1-7 Vergleich der Radiotoxizität von LWR Waste und Natururan Basis: Ingestion Hazard (MPCw in ORIGEN-73)

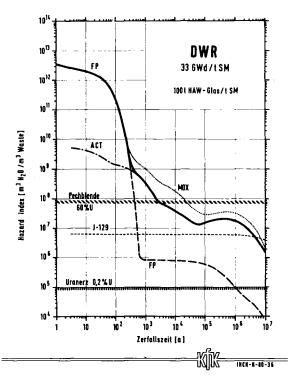


Fig. A1 - 8 Vergleich der Radiotoxizität von LWR Waste und Natururan Basis: Hazard Index pro Volumeneinheit von verglastem HAW { MPC w in ORIGEN-73)

Basis: Ingestion hazard measure des Nuklidinventars berechnet aus den MPC für Ingestion nach ORIGEN-73 (gemäß US-CFR)

Ingestion Hazard Measure (pro t SM)

Natururanmenge zur Gewinnung von 1 t 3.2 % angereichertem Uran.

Ergebnis

Das ingestion hazard measure der FP fällt nach ca. 300 a unter dasjenige der Actiniden.

Das ingestion hazard measure des HAW fällt nach ca. 500 a unter den Wert für das ursprüngliche Uranerz, während die abgebrannten Brennelemente erst nach ca. 10 000 a auf diese Größe abfallen.

<u>Nachteil</u>

Der Vergleich kann nicht unmittelbar auf den HAW von MOX- oder SBR-Brennstoff ausgedehnt werden, da die vergleichbare Natururanmenge deutlich niedriger wäre. Hazard Index pro Volumeneinheit

Vergleich von gleichgroßen Volumina HAW-Glas und Uranmineralien.

Ergebnis

Der hazard index pro Volumeneinheit von verglastem HAW liegt auch nach über 10^6 a noch um 2 Größenordnungen über dem von 0.2 % Uranerz. Der hazard index des HAW fällt bei ca. 3000 a unter den Wert der Pechblende; der HAW von MOX-Brennstoff nach ca. 30 000 a.

Nachte11

In den hazard index geht das Volumen des Verfestigungsprodukts bzw. des Gebindes ein; dies ist bei einem Vergleich mit anderen Wastearten (z. B. BE) zu berücksichtigen.

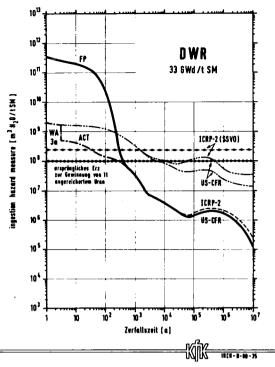


Fig.A1-9 Vergleich der Radiotoxizität von LWR Waste und Natururan Basis: Ingestion hazard measure { MPCw nach ICRP-2, KORIGEN-79 }

Basis: <u>Ingestion hazard measure</u> des Nuklidinventars berechnet mit den MPC für Ingestion des US-CFR (in ORIGEN-73) bzw. mit den MZK-Werten der ICRP-2 bzw. 1. SSVO (in KORIGEN-79).

Ingestion hazard measure (pro t SM)

Vergleich mit ursprünglicher Natururanmenge zur Gewinnung von 1 t 3.2 % angereichertem Uran.

Ergebnis

Die Unterschiede beruhen auf den um den Faktor 3 abweichenden Grenzwert für Ingestion von Ra-226 im US-CFR ($3\cdot 10^{-8}$ /uCi/ml) und den ICRP-2 Empfehlungen ($1\cdot 10^{-8}$ /uCi/ml) bzw. in der 1. SSVO.

Der Unterschied wirkt sich beim HAW > 10^5 a nur geringfügig aus. Dagegen liegt die nach ICRP-2 gerechnete Kurve für abgebrannte BE nach $3 \cdot 10^4$ a um einen Faktor von ca. 2.5 höher (Bildung des Zerfallsprodukts Ra-226).

Ebenso liegt das Uranerz, dessen Toxizität überwiegend von Ra-226 bestimmt wird, um etwa den gleichen Faktor 2.5 höher.

Eine entsprechende Verschiebung ergibt sich auch bei der Berechnung eines relativen Radiotoxizitätsindex.

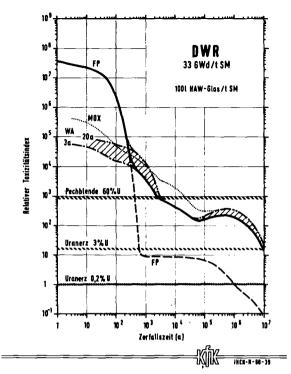


Fig.A1-10 Vergleich der Radiotoxizität von LWR Waste und Natururan Basis: Relativer Toxizitätsindex pro Volumeneinheit von verglastem HAW und 0,2 % Uranerz (MPC "nach ORIGEN-73)

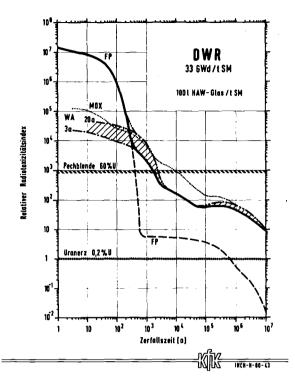


Fig.A1-11 Vergleich der Radiotoxizität von LWR Waste und Natururan Basis: Relativer Radiotoxizitätsindex pro Volumeneinheit von verglastem HAW (JAZ_w nach StrlSchV)

Basis: Relativer Radiotoxizitätsindex pro Volumeneinheit von verglastem HAW bezogen auf das gleiche Volumen Uranerz mit 0.2 % U.

Relativer Radiotoxizitätsindex auf Basis $\mbox{MPC}_{\mbox{W}}$. Vergleich von gleichgroßen Volumina von HAW-Glas und Uranmineralien.

Ergebnis

Die Kurve des Relativen Radiotoxizitätsindex basierend auf den MPC für Ingestion
(nach US-CFR) fallen beim HAW bei ca.
3000 a unter den Wert der Pechblende,
beim HAW von MOX-Brennstoff nach ca.
30 000 a.

Relativer Radiotoxizitätsindex auf Basis ${\sf JAZ}_{\sf w}$. Vergleich von gleichgroßen Volumina von HAW-Glas und Uranmineralien.

Ergebnis

Als Folge des niedrigeren Grenzwerts für Ra-226 nach ICRP-2 in der Strahlenschutz-verordnung liegt das Vergleichsniveau von Uranerz um den Faktor 2.5 höher.

Der Relative Radiotoxizitätsindex auf der Basis JAZ_w sinkt daher beim HAW nach ca. 2000 a unter den Wert für Pechblende, bei MOX-HAW nach ca. 10 000 a.

<u>Nachteil</u>

Der Relative Radiotoxizitätsindex bezieht sich auf das Volumen des Verfestigungsprodukts bzw. Gebindes; dies ist beim Vergleich mit anderen Wastearten (z. B. abgebrannten BE) zu berücksichtigen.

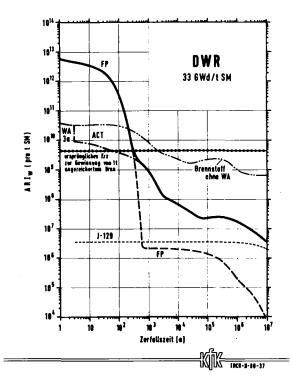


Fig.A1-12 Vergleich der Radiotoxizität von LWR Waste und Natururan Basis: Jährlicher Radiotoxizitätsindex (ARI_W) (JAZ_W nach StrlSchV)

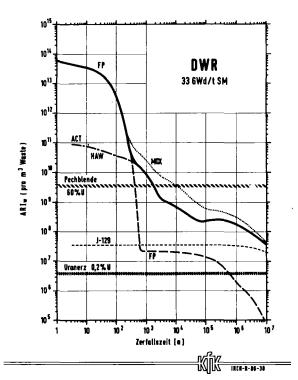


Fig.A1-13 Vergleich der Radiotoxizität von LWR Waste und Natururan Basis: Jährlicher Radiotoxizitätsindex pro Volumeneinheit von verglastem HAW (JAZ_w nach StrlSchV)

Basis: Jährlicher Radiotoxizitätsindex berechnet aus den Grenzwerten der Jahresaktivitätszufuhr für Ingestion gemäß Strahlenschutzverordnung.

Jährlicher Radiotoxizitätsindex (pro t SM)

Vergleich mit ursprünglicher Natururanmenge zur Gewinnung von 1 t 3.2 % angereichertem Uran.

Ergebnis

Der jährliche Radiotoxizitätsindex für Ingestion des Nuklidinventars fällt beim HAW nach ca. 300 a unter den Wert für das ursprüngliche Uranerz; bei den abgebrannten BE nach ca. 2000 a. Gemäß StrlSchV ist der niedrigere Grenzwert für Ra-226 nach ICRP-2 berücksichtigt.

Nachteil

Der Vergleich kann nicht unmittelbar auf den Waste von MOX- oder SBR-Brennstoff ausgedehnt werden, da die vergleichbare Natururanmenge deutlich niedriger wäre. Jährlicher Radiotoxizitätsindex pro Volumeneinheit.

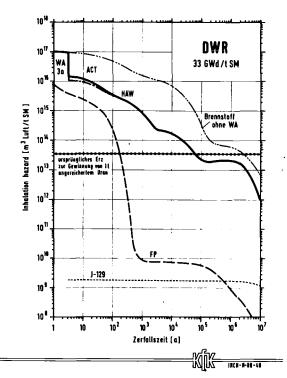
Vergleich von gleichgroßen Volumina HAW-Glas und Uranmineralien.

Ergebnis

Der jährliche Radiotoxizitätsindex pro Volumeneinheit von verglastem HAW liegt nach 10⁵ - 10⁶ Jahren immer noch um ca. 2 Größenordnungen über dem Index von 0.2 %igem Uranerz. Im Vergleich mit Pechblende fällt dagegen die Kurve des HAW nach ca. 2000 a unter das Niveau der Pechblende ab, bei HAW von MOX-Brennstoff nach ca. 10 000 a.

Nachteil

In den spezifischen Radiotoxizitätsindex geht das Volumen des Verfestigungsprodukts bzw. Gebindes ein, was im Vergleich mit anderen Wastearten (z. B. abgebrannte BE) zu berücksichtigen ist.





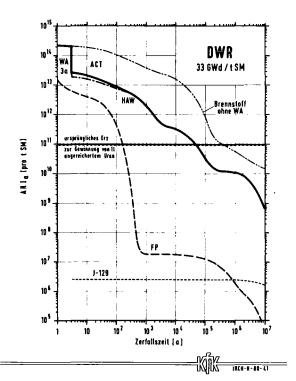


Fig.A1-15 Vergleich der Radiotoxizität von LWR Waste und Natururan Basis: Jährlicher Radiotoxizitätsindex (ARIa) für Inhalation (JAZa nach StrlSchV)

Basis: Hazard measure bzw. Radiotoxizitätsindex für Inhalation berechnet aus den MPC für Inhalation gemäß US-CFR (in ORIGEN-73) bzw. den Grenzwerten JAZ für Inhalation nach Strahlenschutzverordnung (in KORIGEN-79).

Inhalation hazard measure (pro t SM)

Vergleich mit ursprünglichem Natururan zur Gewinnung von 1 t 3.2 % angereichertem Uran.

Jährlicher Radiotoxizitätsindex für Inhalation (pro t SM).

Vergleich mit ursprünglichem Natururan zur Gewinnung von 1 t 3.2 % angereichertem Uran.

Ergebnis

Die Radiotoxizitätsindizes für Inhalation liegen bei den Actiniden durchweg über den Indizes für Spaltprodukte. Die Werte der FP fallen innerhalb von 600 a um 6 Zehnerpotenzen ab.

Die Kurve der Inhalation hazard measure auf der Basis der MPC_a fällt beim HAW nach ca. 60 000 a auf den Wert des ursprünglichen Erzes ab, bei abgebrannten BE nach ca. $3 \cdot 10^6$ a.

Die Kurve des jährlichen Radiotoxizitätsindex für Inhalation auf der Basis der JAZ $_{\rm a}$ fällt beim HAW auch nach ca. 60 000 a auf den Wert des ursprünglichen Erzes ab, bei abgebrannten BE nach ca. $4\cdot 10^5$ a.

Nachteile

Der Vergleich kann nicht unmittelbar auf den Waste von MOX- oder SBR-Brennstoff ausgedehnt werden, da die vergleichbare Natururanmenge deutlich niedriger wäre.

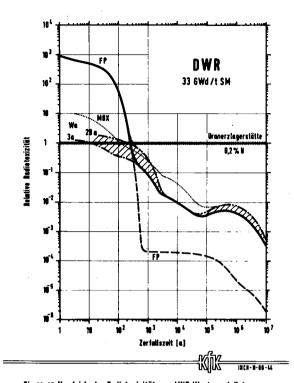


Fig. A1-16 Vergleich der Radiotexizität von LWR Waste und Natururan Basis: Endlagerfeld mit 50 = 50m Bohrlochabstand (MPCw nach ORIGEN-73)

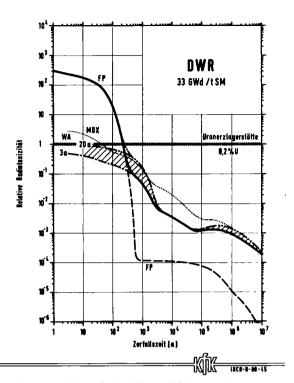


Fig.A1-17 Vergleich der Radiotoxizität von LWR Waste und Matururan Basis: Endlagerfeld mit 50≖50m Bohrlochabstand (JAZ_w nach StrlSchV)

Basis: Relative Radiotoxizität des gesamten Endlagerfeldes im Vergleich zu einer Uranerzlagerstätte gleicher Schichtdicke.

Relativer Radiotoxizitätsindex berechnet mit MPC, nach ORIGEN-73

Ergebnis

Die relative Radiotoxizität des gesamten Endlagerfeldes fällt nach dem Zerfall der FP (Sr/Cs) unter das Vergleichsniveau einer Uranerzlagerstätte (O.2 % U) und liegt nach ca. 2000 - 3000 a bereits ca. 1 Größenordnung darunter (auch MOX).

Relativer Radiotoxizitätsindex berechnet mit JAZ_{ω} nach Strahlenschutzverordnung

Ergebnis

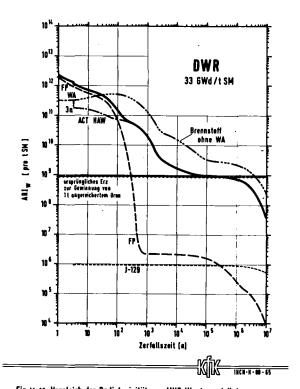
Auf Grund des niedrigeren Grenzwertes für Ra-226 liegt das Vergleichsniveau von Uranerz um den Faktor 2.5 höher.

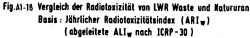
Der Relative Radiotoxizitätsindex fällt auch für MOX nach ca. 2000 a um mehr als eine Größenordnung unter das Vergleichsniveau.

Nachteile

Starker Einfluß des Bohrlochabstandes auf die relative Lage des Vergleichsniveaus.

Die Einbeziehung des löslichen Salzgesteins im Endlagerfeld verglichen mit der Matrix der Uranerzlagerstätte erscheint wenig akzeptabel, obwohl hier nur Aktivitätsinventare verglichen werden.





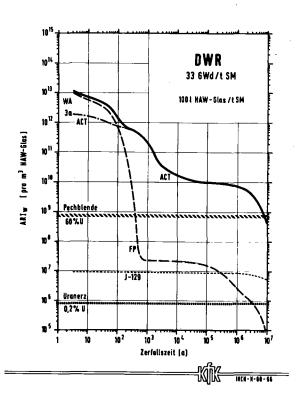


Fig.A1-19 Vergleich der Radiotoxizität von LWR Waste und Natururan Basis: Jährlicher Radiotoxizitätsindex pro Volumeneinheit von verglastem HAW (abgeleitete ALI_W nach ICRP-30)

Basis: <u>Jährlicher Radiotoxizitätsindex</u> berechnet nach den Annual Limits of Intake (ALI) für Ingestion nach ICRP-30 (jedoch umgerechnet auf Bevölkerungswerte und 30 mrem Konzept).

Jährlicher Radiotoxizitätsindex (pro t SM)

Vergleich mit ursprünglicher Uranerzmenge zur Gewinnung von 1 t 3.2 % angereichertem Uran.

<u>Ergebnis</u>

Der jährliche Radiotoxizitätsindex der Spaltprodukte fällt nach ca. 100 a unter die Kurve der Actiniden, nach ca. 300 a unter den Wert des ursprünglichen Uranerzes. Der Index der Actiniden bzw. des HAW erreicht bei etwa 50 000 a das Niveau des ursprünglichen Erzes, der Index der abgebrannten BE nach ca. $4 \cdot 10^6$ a.

Nachteil

Der Vergleich kann nicht unmittelbar auf den Waste von MOX- oder SBR-Brennstoff ausgedehnt werden, da die vergleichbare Natururanmenge deutlich niedriger wäre. Jährlicher Radiotoxizitätsindex pro Volumeneinheit.

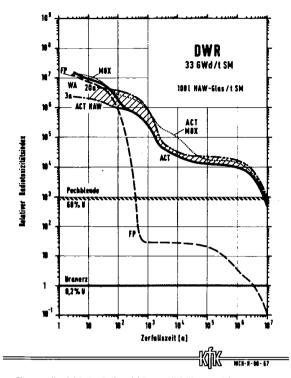
Vergleich von gleichgroßen Volumina HAW-Glas und Uranmineralien.

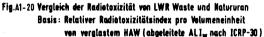
Ergebnis

Der jährliche Radiotoxizitätsindex pro Volumeneinheit fällt bei den FP nach ca. 400 a unter den Index für Pechblende, während die Kurve für die Actiniden (bzw. den gesamten HAW) erst nach ca. 10⁷ a unter den Wert der Pechblende fällt.

Nachteil

In den Radiotoxizitätsindex pro Volumeneinheit geht das Volumen des Verfestigungsprodukts bzw. des Gebindes ein, was im Vergleich mit anderen Wastearten (z. B. BE) zu berücksichtigen ist.





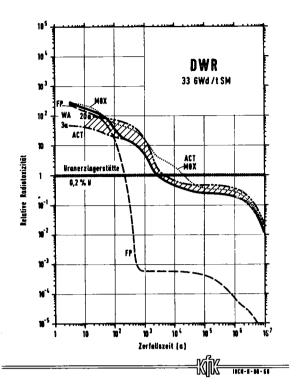


Fig.A1-21 Yergleich der Radiotoxizität von LWR Waste und Natururan Basis: Endlagerfeld mit 50×50m Bohrlochabstand (abgeleitete ALI, nach ICRP-30)

Basis: Relativer Radiotoxizitätsindex berechnet nach den Annual Limits of Intake (ALI) für Ingestion nach ICRP-30 (jedoch umgerechnet auf Bevölkerungswerte und 30 mrem Konzept)

Relativer Radiotoxizitätsindex pro Volumeneinheit.

Vergleich von gleichgroßen Volumina HAW-Glas und Uranmineralien.

Ergebnis

Der Relative Radiotoxizitätsindex pro Volumeneinheit fällt bei den Spaltprodukten nach ca. 400 a unter den Index für Pechblende, während die Kurve für die Actiniden (bzw. für den gesamten HAW) erst nach ca. 10⁷ a unter den Wert der Pechblende fällt.

<u>Nachteil</u>

In den Relativen Radiotoxizitätsindex geht das Volumen des Verfestigungsprodukts bzw. des Gebindes ein, was im Vergleich mit anderen Wastearten (z. B. BE) zu berücksichtigen ist.

Relative Radiotoxizität

Vergleich des gesamten Endlagerfelds mit einer Uranerzlagerstätte gleicher Schichtdicke.

Ergebnis

Nur beim Vergleich der Relativen Radiotoxizität des Nuklidinventars des gesamten Lagerfeldes fällt der Index nach ca. 3000 bis 5000 a, bzw. bei MOX nach ca. 20 000 a, unter das Vergleichsniveau der Uranerzlagerstätte (0.2 % U).

Nachteil

Die relative Lage des Vergleichsniveaus der Erzlagerstätte wird stark vom Bohrlochabstand bestimmt.

Al.5 Literaturverzeichnis (Anhang 1)

- /Al/ J.O. BLOMEKE, J.P. NICHOLS, W.C. McCLAIN "Managing radioactive wastes".

 Physics Today (Aug.1973) 36-42
- /A2/ H.O. HAUG

 "Anfall, Beseitigung und relative Toxizität langlebiger

 Spaltprodukte und Actiniden in den radioaktiven Abfällen der Kernbrennstoffzyklen".

 KfK-2022 (1975)
- /A3/ J. HAMSTRA

 "Radiotoxic hazard measure for buried solid radioactive waste".

 Nuclear Safety 16 (1975) 180-9
- /A4/ International Commission on Radiological Protection, Publication No.2 (1959)
- /A5/ Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen.
 (Strahlenschutzverordnung StrlSchV, vom 13.10.1976)
 Bundesgesetzblatt (1976) 2905-95, Anhang IV, Nachtrag
 vom 26.1.1977, Bundesgesetzblatt (1977) 185-95
- /A6/ International Commission on Radiological Protection, Publication No.30 (1980/1)
- /A7/ N. ADAMS, B.W. HUNT, J.A. REISSLAND

 "Annual limits of intake of radionuclides for workers".

 Report NRPB R82 (1978)