

Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) mbH

Gegenüberstellung einiger Langzeitsicherheitsanalysen für Endlager in Granit- und Salzformationen



Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) mbH

#1231

Gegenüberstellung einiger Langzeitsicherheitsanalysen für Endlager in Granit- und Salzformationen

Ulrich Noseck

Braunschweig September 1996



GSF-Forschungszentrum Für Umwelt und Gesundheit GmbH

Institut für Tieflagerung

GRS - 135 ISBN 3-923875-86-X

Die diesem Bericht zugrundeliegenden Arbeiten wurden mit Mitteln des Bundesministeriums für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie (BMBF) unter den Förderkennzeichen 02 E 8532 1 und 02 E 8775 1 gefördert. Im Zeitraum bis Juni 1995 wurden die Arbeiten vom GSF-Forschungszentrum am Institut für Tieflagerung in Braunschweig durchgeführt, ab Juli 1995 von der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH im neugegründeten Fachbereich Endlagersicherheitsforschung. Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt allein bei den Autoren.

Vorwort

Der Nachweis der Langzeitsicherheit von Endlagern für radioaktive Abfälle erfolgt auf der Basis von standortspezifischen Sicherheitsanalysen. Dafür werden Rechenprogramme und Daten verwendet, mit denen die relevanten physikalischen und chemischen Prozesse bei der Freisetzung der Nuklide, bei der Ausbreitung im Deckgebirge und bei der Exposition in der Biosphäre beschrieben werden. In zahlreichen nationalen und internationalen Vorhaben werden zu den wichtigen physikalischen und chemischen Fragestellungen theoretische und experimentelle Untersuchungen durchgeführt. Ein wesentliches Ziel des Vorhabens "Erarbeitung und Bewertung der wissenschaftlichen Grundlagen zur Sicherheitsanalyse eines Endlagers in der Nachbetriebsphase", FKZ: 02 E 8532 1 und 02 E 8775 1, war die Verfolgung dieser Arbeiten und die Auswertung der wissenschaftlichen Ergebnisse hinsichtlich der Bereitstellung neuer Modellansätze und Daten für Langzeitsicherheitsanalysen. Im Zeitraum bis Juni 1995 wurden diese Arbeiten vom GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, GmbH am Institut für Tieflagerung in Braunschweig durchgeführt, ab Juli 1995 von der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH im neugegründeten Fachbereich Endlagersicherheitsforschung.

Zu diesem sonderfinanzierten Vorhaben des Bundesministeriums für Forschung und Technologie (BMFT) - heute Bundesministerium für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie (BMBF) - in der Zeit vom 01.07.1992 bis 31.03.1996 sind vier wissenschaftliche Berichte entstanden, die die Ergebnisse des Vorhabens dokumentieren. Die Titel dieser Berichte lauten:

- GRS-Bericht 132 Ableitung einer Permeabilitäts-Porositäts-Beziehung für Salzgrus und Dammbaumaterialien.
- GRS-Bericht 133 Auswertung von in-situ Konvergenzdaten und Ableitung eines Modellansatzes.
- GRS-Bericht 134 Auswertung von Sorptionsdaten hinsichtlich nichtlinearer Sorptionsmodelle für die Nuklidausbreitung im Deckgebirge.

I

GRS-Bericht 135 Gegenüberstellung von Langzeitsicherheitsanalysen für Endlager in Granit- und Salzformationen

In diesen vier Berichten werden die zu den Schwerpunktthemen des Vorhabens durchgeführten wissenschaftlichen Arbeiten ausführlich dargestellt.

V

Abstract

In Deutschland sind Instrumentarien für Langzeitsicherheitsanalysen von Endlagern für radioaktive Abfälle im Hinblick auf Salzformationen entwickelt worden. In anderen Ländern lagen die Schwerpunkte der Entwicklung auf Granit- oder Tonformationen. Aufgrund weltweiter Harmonisierungsbestrebungen und verstärkter internationaler Zusammenarbeit bei der Endlagersicherheitsforschung ist es erforderlich, die methodischen Ansätze der verschiedenen Länder gegenüberzustellen. Zunächst sollten hierzu die Einlagerungsformationen Salz und Granit betrachtet und die wesentlichen sicherheitsrelevanten Parameter identifiziert werden. Auf dieser Basis kann der aus deutscher Sicht noch notwendige Forschungsbedarf für die Langzeitsicherheitsanalyse eines Endlagers in einer Granitformation abgeleitet werden.

Exemplarisch für Endlager in Granitformationen wurden die Studien der Schweizer und Schweden ausgewählt und deutschen Studien für Endlager in Salzformationen gegenübergestellt. Als Beispiel für ein Endlager von HAW-Abfällen aus der Wiederaufbereitung wurden die Studien Projekt Gewähr und Kristallin I der Studie PAGIS gegenübergestellt. Für ein Endlager mit direkt eingelagerten Brennelementen wurde die Studie Project-90 der Studie SAM gegenübergestellt.

Hierbei wurden die verwendeten Szenarien, Abfallarten und Inventare, die berücksichtigten Effekte, Modellansätze und Eingangsparameter sowie die Wirksamkeit der Effekte und Barrieren betrachtet. Es wurden jeweils nur die Ergebnisse von deterministischen Rechnungen für ein Referenzszenarium betrachtet. Die Wirksamkeit der einzelnen Barrieren wurde anhand der Konzentrationsreduktion ausgewählter Radionuklide während des Transports zur Biosphäre untersucht. Als wesentliche Reduktionseffekte für ein Endlager im Granit wurden identifiziert:

- Löslichkeitsgrenzen im Nahbereich,
- Sorption in der Bentonitschicht,
- Verdünnung im Fernfeld,
- Sorption und Matrixdiffusion im Fernfeld.

Die Zusammenwirkung aller Barriereeffekte führt letztendlich zu maximalen Dosisraten in der Biosphäre, die bei SAM und PAGIS eine Größenordnung über denen von Kristallin I und Project-90, bzw. sechs Größenordnungen über denen von Projekt Gewähr lie-

1A

gen. Die signifikant niedrigeren Dosisraten bei Projekt Gewähr sind auf den sehr effektiven Barriereeffekt der Matrixdiffusion zurückzuführen. Hinsichtlich der Dosisbelastung sind I-129 und Cs-135 die wichtigsten Nuklide, die in allen Studien die geringste Konzentrationsreduktion erfahren, da sie weder löslichkeitsbegrenzt noch stark sorbierend sind. Bei den Endlagern mit Wiederaufarbeitungsabfällen ist I-129 von untergeordneter Bedeutung, da dessen Inventar im Endlager gering ist.

Für eine zukünftige Modellierung der Langzeitsicherheit eines deutschen Endlagers in einer Hartgesteinsformation wird folgende Vorgehensweise vorgeschlagen. Aufgrund der erheblichen Unterschiede in der Nahbereichsmodellierung für Endlager in Granit und Salz sollte für den Nahbereich ein spezielles Rechenmodell zur Verfügung stehen. Dieses Modell müßte die Nuklidmobilisierung aus der Abfallmatrix, den diffusiven Transport durch den Bentonit und die Sorption an der Bentonitoberfläche berücksichtigen. Für den Transport im Fernfeld könnte das bisher in Langzeitsicherheitsanalysen für Endlager in Salz eingesetzte eindimensionale Transportmodell für poröses Medium um den Prozeß der Matrixdiffusion erweitert werden. Damit stände ein Doppel-Porositätsmodell zur Modellierung des Transports auch in geklüfteten Medien zur Verfügung.

Inhaltsverzeichnis

Vorwort				
Inhaltsv	erzeichnis	[1]		
Abbildu	ngsverzeichnis	VI		
Tabellen	nverzeichnis	VII		
1	Einleitung	1		
Teil 1:	Gegenüberstellung der Langzeitsicherheitsanalysen Projekt Gewähr, PAGIS und Kristallin I			
2	Beschreibung der Modellendlager	5		
2.1	Modellendlager Projekt Gewähr	5		
2.2	Modellendlager PAGIS	5		
2.3	Modellendlager Kristallin I	5		
2.4	Aktivitätsinventare	6		
3	Szenarien	9		
3.1	Projekt Gewähr	9		
3.2	PAGIS	10		
3.3	Kristallin I	12		
4	Modellansätze und Eingangsparameter	15		
4.1	Modellansätze und Parameter im Nahbereich	15		
4.1.1	Projekt Gewähr	15		
4.1.2	PAGIS	17		
4.1.3	Kristallin I	18		
4.2	Prozesse und Effekte im Fernfeld	19		
4.2.1	Projekt Gewähr	19		
4.2.2	PAGIS	21		
4.2.3	Kristallin I	21		
4.3	Modellansätze und Parameter in der Biosphäre	23		

5	Freisetzung aus dem Endlager25
6	Dosisbelastung in der Biosphäre27
7	Vergleich der Wirksamkeit einzelner Effekte am Verhalten von Nukliden
7.1	Wirksamkeit der Teilsysteme hinsichtlich Cs-13530
7.2	Wirksamkeit der Teilsysteme hinsichtlich Np-23732
7.3	Wirksamkeit der Teilsysteme hinsichtlich Pd-10733
8	Zusammenfassung von Teil 135
9	Literatur für Teil 1 39
Teil 2:	Gegenüberstellung der Langzeitsicherheitsanalysen Project-90 und SAM
10	Beschreibung der Modellendlager43
10.1	Modellendlager Project-9043
10.2	Modellendlager SAM43
10.3	Aktivitätsinventare44
11	Szenarien47
11.1	Project-9047
11.2	SAM49
12	Modellansätze und Eingangsparameter51
12.1	Modellansätze und Parameter im Nahbereich51
12.1.1	Project-9051
12.1.2	SAM52
12.2	Modellansätze und Parameter im Fernfeld56
12.2.1	Project-9056
12.2.2	SAM57
12.3	Modellansätze und Parameter in der Biosphäre58

	, and a	en en en
4	X	
	C	and the same

13	Freisetzung aus dem Endlager	61
14	Dosisbelastung in der Biosphäre	63
15	Vergleich der Wirksamkeit von Teilsystemen am Verhalte	n von Nukli-
	den	65
15.1	Wirksamkeit der Teilsysteme hinsichtlich I-129	65
15.2	Wirksamkeit der Teilsysteme hinsichtlich Cs-135	67
15.3	Wirksamkeit der Teilsysteme hinsichtlich Tc-99	68
15.4	Wirksamkeit der Teilsysteme hinsichtlich Np-237	69
16	Ergebnisse anderer Szenarien	71
17	Zusammenfassung von Teil 2	73
18	Schlußfolgerungen für eine Langzeitsicherheitsanalyse e	ines potenti-
	ellen deutschen Endlagers im Hartgestein	77
19	Literatur für Teil 2	79



Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1	Gewähr: Freisetzungsweg der Radionuklide für den Basisfall10
Abbildung 2	PAGIS: Freisetzungsweg der Radionuklide für das Störfallszenario: Laugenzutritt über den Anhydrit und aus Laugennestern
Abbildung 3	Reduktionsfaktoren im Nahbereich und Fernfeld für ausgewählte Nuklide in den drei Studien Gewähr (G), Kristallin I (K) und PAGIS (P)35
Abbildung 4	Project-90: Freisetzungsweg der Radionuklide für das Referenzszenario48
Abbildung 5	Reduktionsfaktoren im Nahbereich und Fernfeld für ausgewählte Nuklide in den Studien Project-90 und SAM74

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1	Inventar relevanter Nuklide in den Studien Gewähr, Kristallin I und PAGIS6
Tabelle 2	Löslichkeitsgrenzen im Nahfeld für die Studien Gewähr, Kristallin I und PA-GIS16
Tabelle 3	Sorptionswerte im Bentonit für die Studie Kristallin I19
Tabelle 4	Berücksichtigte Effekte im Nahbereich19
Tabelle 5	K _d -Werte im Fernfeld für die Studien Gewähr, Kristallin I und PAGIS20
Tabelle 6	Berücksichtigte Effekte im Fernfeld22
Tabelle 7	Dosiskonversionsfaktoren ausgewählter Spaltprodukte in den Studien Gewähr, Kristallin I und PAGIS23
Tabelle 8	Kumulierte relative Freisetzungsmengen ausgewählter Nuklide nach 1.5·10 ⁵ Jahren
Tabelle 9	Maximale Dosisraten relevanter Nuklide und Zeitpunkte des Auftretens27
Tabelle 10	Halbwertszeiten und Freisetzungsdauern in den beiden Studien für ausgewählte Nuklide29
Tabelle 11	Wirksamkeit von Effekten. Veränderung der maximalen Konzentrationen für Cs-13530
Tabelle 12	Wirksamkeit von Effekten. Veränderung der maximalen Konzentrationen für Np-23732
Tabelle 13	Wirksamkeit von Effekten. Veränderung der maximalen Konzentrationen für Pd-10733
Tabelle 14	Inventar relevanter Nuklide in den Studien Project-90 und SAM44
Tabelle 15	Bei Project-90 und SAM in Abhängigkeit des chemischen Milieus verwendete Löslichkeitsgrenzen53
Tabelle 16	Bei Project-90 für die Bentonit- und Granitsorption verwendete K _d -Werte in [m ³ /kg]53
Tabelle 17	Elementspezifische Inventaranteile für ausgewählte Elemente in den einzelnen Bereichen eines LWR-Brennelementes55
Tabelle 18	Berücksichtigte Effekte im Nahbereich56
Tabelle 19	Berücksichtigte Effekte im Fernfeld58
Tabelle 20	In Project-90 und SAM verwendete Dosiskonversionsfaktoren in [Sv/a pro Bq/l] für ausgewählte Spaltprodukte und Nuklide aus den Zerfallsketten 59
Tabelle 21	Kumulierte relative Freisetzungsmengen ausgewählter Nuklide nach 1.0·10 ⁶ Jahren. Die Fälle, bei denen die Löslichkeitsgrenze erreicht werden, sind kursiv gedruckt. Die relativen Freisetzungsmengen der Einlagerungsstrecken beziehen sich auf deren Inventar

Tabelle 22	Maximale Dosisraten der relevanten Nuklide in den Referenzfällen der Studien Project-90 und SAM. *) Das Dosismaximum wurde nach 10 ⁶ Jahren noch nicht erreicht
Tabelle 23	Halbwertszeiten und Freisetzungsdauern in den beiden Studien für ausgewählte Nuklide65
Tabelle 24	Reduktion der maximalen Konzentrationen während des Ausbreitungswegs und resultierende Dosis in der Biosphäre für I-12966
Tabelle 25	Reduktion der maximalen Konzentrationen während des Ausbreitungswegs und resultierende maximale Dosisrate in der Biosphäre für Cs-13567
Tabelle 26	Reduktion der maximalen Konzentrationen während des Ausbreitungswegs und resultierende Dosis in der Biosphäre für Tc-99
Tabelle 27	Reduktion der maximalen Konzentrationen während des Ausbreitungswegs und resultierende Dosis in der Biosphäre für Np-237

1 Einleitung

Die deutschen Konzepte zur Endlagerung von hochradioaktiven Abfällen sehen als Endlagerformation Salzstöcke vor. Daneben sind aber auch andere Wirtsgesteine, wie z. B. Granit aufgrund des Vorkommens potentieller Endlagerformationen in Deutschland denkbar. Um den Forschungsbedarf für die Langzeitsicherheitsbewertung eines Endlagers in einer Hartgesteinformation in Deutschland aufzuzeigen, werden im Rahmen dieses Berichts Langzeitsicherheitsanalysen anderer Länder für Endlager im Granit deutschen Langzeitsicherheitsanalysen für Endlager im Salzgestein gegenübergestellt. Die wesentlichen Unterschiede zwischen den Studien werden ermittelt.

Es wird untersucht, welche Effekte und Prozesse in den einzelnen Studien betrachtet werden und welche Auswirkungen diese Effekte auf die Langzeitsicherheit der Endlager in den beiden unterschiedlichen Formationen haben. Aus der Wirksamkeit dieser Effekte werden die generischen Unterschiede für die Langzeitsicherheit von Endlagern in den beiden geologischen Formationen abgeleitet. Im einzelnen werden charakteristische Kenngrößen wie die relativen Freisetzungsmengen aus dem Abfallgebinde oder aus dem Nahbereich sowie die Verdünnungseffekte beim Transport durch die Geosphäre erarbeitet.

Im ersten Teil des Berichts werden zwei ältere Studien für HAW-Endlager gegenübergestellt, die Mitte der achtziger Jahre entstanden sind: die Schweizer Studie Projekt Gewähr [2] von der NAGRA, und die deutsche Studie PAGIS [1]. In beiden Studien werden Endlager für hochaktive Abfälle aus der Wiederaufarbeitung betrachtet. In der Studie Projekt Gewähr wird ein Endlager im Granit in der Nordschweiz mit der Annahme reiner Modell-Datensätze untersucht. Die Endlagerstudie PAGIS für hochradioaktive Abfälle im Salz betrachtet ein Modellendlager mit Daten für den Standort Gorleben. Da die verwendeten Modellansätze für die Studien in Granit wesentlich weiterentwickelt worden sind, wird zusätzlich die neue Schweizer Langzeitsicherheitsstudie Kristallin I von 1994 [3] betrachtet. Die wesentlichen Unterschiede in der Modellierung und den verwendeten Daten gegenüber der Studie Projekt Gewähr werden herausgestellt und die Auswirkungen auf die Dosisraten werden erläutert.

Im zweiten Teil des Berichts werden zwei neuere Studien für Endlager mit direkt eingelagerten abgebrannten Brennelementen untersucht: die Endlagerstudien Project-90 [5], [6] für ein hypothetisches schwedisches Endlager im Granit und die deutsche Systemanalyse Mischkonzept Studie (SAM) [7] für ein Endlager im Salzgestein. Bei Project-90 wird ein Endlager betrachtet, in das ausschließlich abgebrannte Brennelemente eingelagert werden. Bei SAM wird ein Endlager betrachtet in dem alle Abfallarten außer LAW in unterschiedlichen Bereichen eingelagert werden. Für die Gegenüberstellung wurde bei SAM eine Variante ausgewählt, bei der die Radionuklidfreisetzung ausschließlich aus den direkt eingelagerten Brennelementen erfolgt.

Teil 1

Gegenüberstellung der Langzeitsicherheitsanalysen Projekt Gewähr, PAGIS und Kristallin I

1

2 Beschreibung der Modellendlager

2.1 Modellendlager Projekt Gewähr

Das Modellendlager wird in der Nordschweiz angenommen. Die Endlagerung soll in einer mehrere Kilometer breiten Granitscholle in 1200 m Tiefe erfolgen. Das Wirtsgestein hat dort eine geringe Permeabilität und damit eine geringe Wasserführung. Es wird angenommen, daß das Modellendlager in einer Ebene liegt und aus 20 Endlagerstollen mit je 1500 m Länge besteht.

Für die Studie wird ein Inventar zugrundegelegt, das aus einer Energieerzeugung von 240 GWa resultiert. Dabei fallen 5895 HAW-Glaskokillen als hochaktiver Abfall an. Es ist geplant, die Glaskokillen in 15 cm dicke Stahlbehälter einzuschweißen und sie in den 20 Stollen horizontal zu lagern. Das entspricht einem Inventar von ca. 300 Kokillen pro Stollen. Der Raum um die Behälter wird mit Bentonit in der Weise verfüllt, daß die Dicke der Bentonitschicht um jeden Behälter an jeder Stelle mindestens 1,35 m beträgt.

Es sollen auch mittelaktive Abfälle in 14 Silos in einem vom HAW-Bereich abgetrennten Teilbereich untergebracht werden. Da aber angenommen wird, daß die mittelaktiven Abfälle keinen Einfluß auf die Ausbreitung der Abfälle aus dem HAW-Bereich haben, werden sie in der Langzeitsicherheitsanalyse Projekt Gewähr nicht betrachtet.

2.2 Modellendlager PAGIS

Die Endlagerung ist in einem Salzstock in 840 m Tiefe vorgesehen. Für die PAGIS-Studie wurde ein Abfallaufkommen von 58080 Kokillen aus der Wiederaufbereitung angenommen, das bei einer Energieerzeugung von 2500 GWa anfällt. Diese Glaskokillen sollen in 300 m tiefen Bohrlöchern endgelagert werden. Insgesamt sind 264 Bohrlöcher vorhanden, was einer Anzahl von 230 Kokillen pro Bohrloch entspricht. Die Behälter sind mit 2 cm Wandstärke wesentlich dünnwandiger als diejenigen für das Granitendlager.

Innerhalb des Bohrlochs werden die Behälter direkt aufeinander gestapelt. Der Durchmesser des Bohrlochs ist nur unwesentlich größer als der eines Behälters. Das Bohrloch wird nicht mit Versatz gefüllt. Weitere Einzelheiten sollen an dieser Stelle nicht erwähnt werden und können dem PAGIS-Abschlußbericht entnommen werden [1].

2.3 Modellendlager Kristallin I

Die Studie Kristallin I ist 1994 veröffentlicht und schließt sich an die Vorgängerstudie zu einem HAW-Endlager in der Nordschweiz Projekt Gewähr an. Das Modellendlager entspricht dem in der Projekt Gewähr-Studie beschriebenen Endlager. Es wird in 1000 m Tiefe im Granit ange-

nommen. Im Gegensatz zur Studie Projekt Gewähr wird allerdings nur eine Energieerzeugung von 120 GWa zugrundegelegt. Entsprechend fallen nur 2693 Glaskokillen mit HAW-Abfällen aus der Wiederaufarbeitung an.

Die Abfallbehälter sollen in einer Ebene in 10 Endlagerstollen gelagert werden. Es werden die gleichen Behälter mit einer Wandstärke von 15 cm verwendet. Die Dicke der um die Behälter angebrachten Bentonitschicht beträgt 1.38 m.

2.4 Aktivitätsinventare

Das Gesamtinventar für ausgewählte Nuklide, das aus den obengenannten Abfallmengen für die beiden Endlager resultiert, ist in Tabelle 1 dargestellt.

		Gewähr		Kristallin I		PAGIS
Nuklid	Inventar [Bq]	Inventar [mol]	Inventar [Bq]	Inventar [mol]	Inventar [Bq]	Inventar [mol]
Se-79	1.2·10 ¹⁴	5.9·10 ²	6.2·10 ¹³	3.0·10 ²	1.0 10 ¹⁵	5.0·10 ³
Tc-99	3.7·10 ¹⁵	6.0·10 ⁴	2.0·10 ¹⁵	3.0·10 ⁴	3.8·10 ¹⁶	6.1·10 ⁵
Pd-107	3.1·10 ¹³	1.5·10 ⁴	1.6·10 ¹³	7.9·10 ³	3.1·10 ¹⁴	1.5·10 ⁵
Sn-126	2.7·10 ¹⁴	2.0·10 ³	1.2·10 ¹⁴	9.1·10 ²	1.6·10 ¹⁵	1.2·10 ⁴
Cs-135	1.1·10 ¹⁴	1.9·10 ⁴	5.6·10 ¹³	9.7·10 ³	1.0·10 ¹⁵	1.8·10 ⁵
Cm-244	3.6·10 ¹⁶	4.9·10 ¹	2.0·10 ¹⁷	2.7·10 ²	6.2·10 ¹⁸	8.5·10 ³
Pu-240	2.0·10 ¹⁵	9.9·10 ²	5.9·10 ¹⁴	2.9·10 ²	4.2·10 ¹⁶	2.1·10 ⁴
U-236	1.7·10 ¹¹	3.0·10 ²	6.2·10 ¹⁰	1.1·10 ²	3.6·10 ¹²	6.5·10 ³
Am-241	2.1·10 ¹⁷	6.8·10 ³	9.8·10 ¹⁶	3.2·10 ³	4.9·10 ¹⁸	1.6·10 ⁵
Np-237	9.6·10 ¹³	1.5·10 ⁴	4.7·10 ¹³	7.6·10 ³	9.8·10 ¹⁴	1.6·10 ⁵
U-233	3.0·10 ¹⁰	3.6·10 ⁻¹	2.3·10 ⁰⁸	2.7·10 ⁻³	1.3·10 ¹¹	1.5·10 ⁰
U-238	2.0·10 ¹¹	6.8·10 ⁴	7.4·10 ¹⁰	2.5·10 ⁴	3.9·10 ¹²	1.3·10 ⁶
U-234	1.9·10 ¹²	3.5·10 ¹	2.8·10 ¹¹	5.2·10 ⁰	1.5·10 ¹³	2.8·10 ²
Am-243	4.8·10 ¹⁵	2.7·10 ³	2.2·10 ¹⁵	1.2·10 ³	1.1·10 ¹⁷	6.2·10 ⁴
Pu-239	7.0·10 ¹⁴	1.3·10 ³	3.3·10 ¹⁴	6.0·10 ²	3.1·10 ¹⁵	5.6·10 ³

Tabelle 1: Inventar relevanter Nuklide in den Studien Gewähr, Kristallin I und PAGIS.

Das Aktivitätsinventar ist im Endlager der Studie PAGIS entsprechend der zehnfach höheren zugrundegelegten erzeugten Energiemenge etwa um einen Faktor 10 größer als im Endlager der

Studie Projekt Gewähr. Die Inventare pro Gebinde unterscheiden sich bei beiden Studien nur geringfügig. Bei der Kristallin I-Studie geht man von einer halb so großen Energieerzeugung wie bei der Gewährstudie aus. Die Inventare der meisten Nuklide sind aus diesem Grund nur halb so hoch. Bei einigen kurzlebigen Nukliden der Zerfallsreihen und deren Tochternukliden treten Abweichungen auf. Das ist auf die unterschiedlichen Zwischenlagerzeiten zurückzuführen. Die Inventare der Kristallin I-Studie wurden für 4 Jahre Standzeit nach Betrieb angegeben, die Inventare für Projekt Gewähr und PAGIS sind für Zwischenlagerzeiten von 30 Jahren errechnet.

3 Szenarien

3.1 Projekt Gewähr

In der Studie Projekt Gewähr wird als Szenario ein Basisfall festgelegt, der das wahrscheinlichste Verhalten des Endlagersystems repräsentieren soll. Dieser wird als Grundwasserszenario bezeichnet. Unsicherheiten werden in verschiedenen Parametervariationen berücksichtigt. Abbildung 1 zeigt schematisch die einzelnen Bereiche des Ausbreitungswegs der Radionuklide.

Im Unterschied zum Endlager im Salz ist der Wasserzutrittsprozeß im Granitgestein ein natürliches Szenario und stellt keinen Störfall dar. Das Grundwasser tritt kurze Zeit nach Verschluß des Endlagers in die Lagerkavernen, durchdringt den Bentonit und die Behälterkorrosion beginnt. Es wird angenommen, daß 1000 Jahre nach Wasserzutritt alle Behälter gleichzeitig versagen. Die Barrierewirkung der Bentonitverfüllung wird bei dieser Studie nur indirekt berücksichtigt: Die Freisetzungsraten der Spalt- und Aktivierungsprodukte werden separat mit einem Diffusionsmodell berechnet. Diejenigen Nuklide, deren so berechnete Aktivitätsfreisetzungsrate aus dem gesamten Endlager kleiner als $1\mu\text{Ci}/a$ ist, werden nicht weiter für die Ermittlung der Dosisbelastung berücksichtigt. Die Radionuklide werden entsprechend den Auslaugraten und ihren Löslichkeitsgrenzen freigesetzt.

Die Geosphäre besteht aus zwei unterschiedlichen Schichten, dem mittleren und dem oberen Kristallin. Im mittleren Kristallin erfolgt der Radionuklidtransport durch Adern von verwittertem Granitgestein, den Kakiritzonen. In diesen Zonen wird auch die Matrixdiffusion, d. h. die Diffusion in die Poren der Kakiritmatrix und dort stattfindende Sorption, berücksichtigt. Im oberen Kristallin wird aufgrund der dort viel höheren Grundwasserfließraten kein Transport mehr berechnet, sondern nur eine entsprechende Verdünnung des Schadstoffs angenommen. Eine weitere Verdünnung findet im fluviatilen Schotter des Rheins statt. Der darauffolgende Transport in der Biosphäre wird mit einem Kompartimentmodell berechnet.

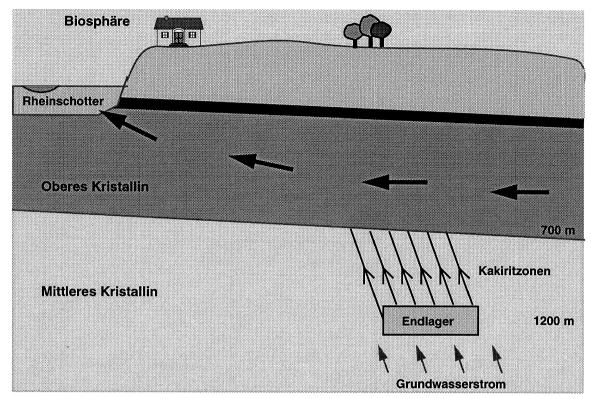


Abbildung 1: Gewähr: Freisetzungsweg der Radionuklide für den Basisfall.

Als Parametervariationen zu diesem Basisfall wurden hinsichtlich der Nuklidausbreitung im Nahfeld und in der Geosphäre sechs weitere Rechnungen durchgeführt. Dabei wurden folgende Parameter in den einzelnen Fällen entsprechend verändert:

- Matrixdiffusionskonstante konservativ
- Dispersionslänge konservativ
- Sorption in der Kakiritzone konservativ
- Mächtigkeit der Kakiritzonen konservativ
- Größere Röhrenfrequenz bei kleinerem Röhrendurchmesser
- Matrixdiffusion und Sorption in der Kakiritzone konservativ

Für die Gegenüberstellung der Studien wird die Variante mit konservativer Matrixdiffusionskonstante ausgewählt, da diese Variante am ausführlichsten beschrieben ist und im Basisfall überhaupt nur zwei Nuklide eine maximale Dosisrate > 1·10⁻¹⁵ Sv/a bewirken.

3.2 PAGIS

Man unterscheidet bei der Endlagerung im Salz zwischen einer normalen und einer gestörten Entwicklung eines Endlagers. Bei einer normalen Entwicklung werden keine Störungen des Systems betrachtet. Aufgrund des Kriechverhaltens des Salzes werden die verfüllten Hohlräume

des Endlagers wieder verschlossen und erreichen im Fall der Bohrlöcher nach etwa 150 Jahren und für die übrigen Resthohlräume der Endlagerformation nach ca. 1000 Jahren die Porosität, die der des umgebenden Salzgebirges entspricht. In diesem Fall werden keine Radionuklide freigesetzt. Es ist aber ein Szenario denkbar, bei dem durch Subrosion der Salzstock sehr langsam abgetragen wird und nach sehr langer Zeit eine Nuklidfreisetzung erfolgt.

Bei der Modellierung dieses Subrosionsszenarios wurde angenommen, daß nach Ablauf einer Zeitphase von 15 Millionen Jahren der obere Teil des Salzstocks soweit abgetragen wurde, daß sich auch Radionuklide aus freigelegten Abfallbehältern im Grundwasser lösen und in die Biosphäre gelangen. Die Bestimmung der Dosisraten in der Biosphäre basiert im wesentlichen auf der Verdünnung von Salzwasser auf trinkbare Konzentrationen von 0.03%.

Außerdem können Störungen des Endlagersystems auftreten, bei denen es zur Freisetzung von eingelagerten Nukliden kommt. In der Studie PAGIS wurden Rechnungen zur Langzeitsicherheit für zwei prinzipiell unterschiedliche Szenarien für eine gestörte Entwicklung des Endlagers durchgeführt:

- Laugenzutritt durch den Anhydrit und aus Laugennestern
- Kavernensolung

Wahrscheinlichkeitswerte für das Eintreten der Szenarien wurden im Rahmen der Studie nicht ermittelt. Für die Kavernensolung wurde angenommen, daß eine Speicherkaverne nach 50jähriger Nutzung mit Lauge verfüllt und verschlossen wird. 1000 Jahre nach Ende der Betriebszeit wird ein Laugenzutritt angenommen. Die eingetretene Lauge kann in Kontakt zu einer begrenzten Zahl von 115 Abfallgebinden kommen und nach dem Versagen des Kavernenverschlusses als kontaminierte Lauge aus dem Salzstock freigesetzt werden.

Für die Gegenüberstellung wird das Laugenzutrittsszenario betrachtet, da es innerhalb der nächsten 10⁵ Jahre in seinen Konsequenzen die anderen Szenarien übertrifft. Der Ablauf dieses Szenarios ist in Abbildung 2 schematisch dargestellt.

Solange die Resthohlräume des Endlagers durch die Konvergenz noch nicht verschlossen sind, kann Salzlauge in diese Hohlräume eindringen. Solche Laugenzutritte können aus begrenzten Einschlüssen im umgebenden Salzgestein herrühren. Gleichzeitig kann weitere Lauge über den Hauptanhydrit in Endlagerbereiche eindringen. Wenn alle Hohlräume des Endlagers mit Lauge verfüllt sind, kann die Lauge über die Wegsamkeit des Anhydrits ausgepreßt und mit dem Grundwasserstrom bis in die Biosphäre transportiert werden. Über verschiedene Ausbreitungspfade gelangen die Nuklide schließlich in die Nahrungskette und bewirken eine entsprechende Dosisbelastung des Menschen.

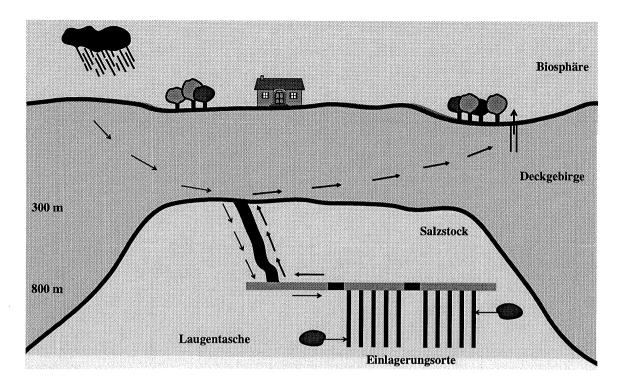


Abbildung 2: PAGIS: Freisetzungsweg der Radionuklide für das Störfallszenario: Laugenzutritt über den Anhydrit und aus Laugennestern.

Daten- und Modellunsicherheiten wurden zum einen in Parametervariationen, zum anderen in probabilistischen Rechnungen berücksichtigt. Die Ergebnisse der probabilistischen Rechnungen sollen bei dieser Gegenüberstellung nicht berücksichtigt werden.

3.3 Kristallin I

Das Referenzszenario der Kristallin I-Studie ist dem aus der Gewähr-Studie in vielen Punkten vergleichbar.

Direkt nach Verschluß des Endlagers tritt das im unteren Kristallin vorhandene Grundwasser in die Einlagerungsstrecken, durchdringt den Bentonit nach kurzer Zeit und hat dann Kontakt zu den Abfallbehältern. Dann beginnt die Behälterkorrosion. Wie bei der Gewähr-Studie wird angenommen, daß 1000 Jahre nach Wasserzutritt alle Behälter gleichzeitig versagen. Die Radionuklide werden entsprechend den Auslaugraten in das mit Wasser gefüllte Restvolumen der Abfallmatrix freigesetzt. Wenn Nuklide die Löslichkeitsgrenzen erreichen, fallen sie an der Grenzschicht zwischen Behälter und Bentonitschicht aus. Durch die Bentonitschicht erfolgt der Radionuklidtransport ausschließlich durch Diffusion. Dieser Prozeß wird im Gegensatz zur Gewähr-Studie modellmäßig berücksichtigt.

Zur Beschreibung der Granitschichten standen für diese Studie weitaus mehr Daten zur Verfügung als für die Gewähr-Studie. Aus diesem Grund ist das Modell für das Fernfeld viel komplexer als bei Projekt Gewähr. Der Transport kann in unterschiedlichen Verwitterungszonen stattfinden. Es wird ebenfalls Diffusion in die Poren des verwitterten Gesteins und dort stattfindende Sorption berücksichtigt. Für das geklüftete System werden basierend auf geohydraulischen Untersuchungen sechs verschiedene Geometrien betrachtet, von denen diejenige, bei der die höchsten maximalen Dosisraten erreicht werden, für den Referenzfall ausgewählt wird. Im oberen Kristallin sowie in Hauptkluftleitern, die auch im unteren Kristallin auftreten, wird aufgrund der dort viel höheren Grundwasserfließraten kein Transport mehr berechnet. Wenn der Nuklidstrom diese Grundwasserleiter erreicht, wird eine direkte Freisetzung in die fluviatilen Schotter des Rheins angenommen. Der Tranport in der Biosphäre wird wie in der Gewähr-Studie mit einem Kompartimentmodell berechnet.

Zu dem Referenzszenario werden Parametervariationen durchgeführt, die hier nicht im einzelnen betrachtet werden. Neben dem Referenzszenario werden die Konsequenzen für drei weiteren Szenarien berechnet:

- Entnahme des Trinkwassers aus einem sehr tiefen Brunnen
- Versagen aller Strecken- und Schachtverschlüsse
- Alternative Klimaentwicklungen

Für die hier durchgeführte Gegenüberstellung wird aus Gründen der Übersichtlichkeit nur das Referenzszenario mit den best estimate Werten betrachtet.

4 Modellansätze und Eingangsparameter

4.1 Modellansätze und Parameter im Nahbereich

Bei der Beschreibung wird nur auf die wesentlichen Modellansätze eingegangen. Alle im folgenden aufgeführten Modellansätze und Parameter beziehen sich auf die in den Kapiteln 3.1 bis 3.3 genannten Referenz-Fälle. Die in Parametervariationen veränderten Parametersätze werden nicht betrachtet.

4.1.1 Projekt Gewähr

Der Grundwasserstrom des Nahfeldes, der das Endlager durchfließt, beträgt 4.2 m³/a. Es wird davon ausgegangen, daß die Wassermenge sich auf die Behälter gleichmäßig verteilt, das heißt, es stehen pro Behälter 0.71 l/a zur Verfügung.

Eine Wassersättigung des Verfüllmaterials Bentonit ist nach wenigen hundert Jahren zu erwarten. Im Modell wird vereinfacht angenommen, daß das Wasser direkt nach Ende der Betriebsphase Kontakt zu den Abfallbehältern hat.

Es wird angenommen, daß die wesentliche Barrierenfunktion der Behälter dadurch gegeben ist, daß aufgrund der dicken Behälterwand ein Behälterausfall frühestens nach 1000 Jahren auftritt. Im verwendeten Modell fallen alle Behälter nach 1000 Jahren gleichzeitig aus. Das bedeutet, daß erst zu diesem Zeitpunkt die Abfallmatrix dem dort anstehenden Wasser ausgesetzt wird. Nach 1000 Jahren ist die Temperatur der Glasmatrix nahezu auf Gebirgstemperatur abgesunken. Die Glaskorrosion kann aus diesem Grund temperaturunabhängig modelliert werden.

Es wird eine kongruente Glasauflösung angenommen. Der Prozeß führt zu einer vollständigen Auflösung des Glases nach 1.5 10⁵ Jahren. Die Mobilisierung der Nuklide erfolgt dabei proportional zur noch in der Abfallmatrix vorhandenen Nuklidmenge:

$$\frac{dA_i}{dt} = \frac{3r_m}{1 - t/\tau} \cdot \frac{A_i}{\rho R_0} \tag{1}$$

Ai in der Matrix vorhandene Nuklidmenge des Nuklids i mit

r_m Matrixauslaugrate: 10⁻⁷g/(cm²d) τ Auflösungszeit: 1.5·10⁵ Jahre

ρ Dichte der Glasmatrix: 2750 kg/m³

R₀ Anfangsradius der Glaskugeln: 2.1 cm

Die Radionuklide werden aus Glasbruchstücken der Matrix freigesetzt. Es wird eine Vergrößerung der auslaugbaren Oberfläche um einen Faktor 12 angenommen. Im Modell wird das durch die Korrosion von gleichgroßen Glaskugeln simuliert, deren Radius R_0 so gewählt ist, daß die Gesamtoberfläche der um den Faktor zwölf erhöhten Oberfläche der Kokillenmatrix entspricht.

Die Freisetzung der Nuklide in den Wasserstrom ist für nicht löslichkeitsbegrenzte Radionuklide durch die Korrosionsgeschwindigkeit der Glasmatrix bestimmt. Die Konzentration ergibt sich aus dem Quotienten der Freisetzungsrate und dem Grundwasserstrom. Für die übrigen Radionuklide wird sie durch die Löslichkeitsgrenzen im Nahfeld limitiert. Die in Projekt Gewähr und PAGIS verwendeten Löslichkeitsgrenzen sind in Tabelle 2 dargestellt.

Element	Löslichkeitsgrenze [mol/l]			
Liement	Gewähr	Kristallin I	PAGIS	
Cäsium	hoch	hoch	hoch	
Selen	1.0·10 ⁻⁸	1.0·10 ⁻⁸	1.0·10 ⁻⁴	
Technetium	3.2·10 ⁻⁸	1.0·10 ⁻⁷	1.0·10 ⁻⁴	
Palladium	1.0·10 ⁻⁸	1.0·10 ⁻¹¹	1.0·10 ⁻²	
Zinn	1.0·10 ⁻⁹	1.0·10 ⁻⁵	1.0·10 ⁻²	
Radium	1.0·10 ⁻⁸	1.0·10 ⁻¹⁰	1.0·10 ⁻²	
Uran	2.5·10 ⁻⁹	1.0·10 ⁻⁹	1.0·10 ⁻⁴	
Americium	5.0·10 ⁻⁵	1.0·10 ⁻⁵	1.0·10 ⁻⁴	
Plutonium	1.0·10 ⁻⁷	1.0·10 ⁻⁸	1.0·10 ⁻⁴	
Neptunium	2.0·10 ⁻⁹	1.0·10 ⁻¹⁰	1.0·10 ⁻⁵	
Thorium	1.0·10 ⁻⁸	5.0·10 ⁻⁹	1.0·10 ⁻⁶	
Protactinium	1.0·10 ⁻⁸	1.0·10 ⁻¹⁰	1.0·10 ⁻⁶	

Tabelle 2: Löslichkeitsgrenzen im Nahfeld für die Studien Gewähr, Kristallin I und PAGIS

Die Barrierenwirkung des Bentonits wird bei den Ausbreitungsrechnungen der Nuklide nur insofern berücksichtigt, als daß relevante Spalt- und Aktivierungsprodukte ausgewählt bzw. schnell zerfallende für den weiteren Transport nicht mehr betrachtet werden. Die Freisetzung der Nuklide aus der Bentonitschicht wird separat mit einem Nahfeld-Diffusionsmodell berechnet. Dabei wird angenommen, daß die aus dem Bentonit freigesetzten Nuklide unmittelbar außerhalb des Bentonits mit dem vorbeifließenden Grundwasser gemischt werden. Wenn die so errechnete maximale Freisetzungsrate der Nuklide kleiner als 1μCi/a ist, wird angenommen, daß sie nur einen vernachlässigenden Beitrag zur Dosisbelastung in der Biosphäre liefern. Unter dieser Freisetzungsgrenze liegen z. B. die Spaltprodukte I-129, C-14, Zr-93, Mo-93 und Niob-94. Für die Fernfeldrechnung bleiben die Spaltprodukte Se-79, Tc-99, Pd-107, Sn-126 und Cs-135 übrig. Für alle Nuklide der Zerfallsketten wird die Ausbreitung berechnet. Für sie gilt das Auswahlkriterium nicht. Die so ausgewählten, aus der Abfallmatrix mobilisierten Nuklide gelangen somit direkt in den Grundwasserstrom.

4.1.2 **PAGIS**

An dieser Stelle sollen nur die wesentlichen Effekte, die im Nahbereich eine Barrierefunktion darstellen, diskutiert werden. Eine ausführliche Beschreibung der im Nahbereich verwendeten Modelle kann dem PAGIS-Abschlußbericht entnommen werden [1].

Der Wasserzutritt zum Endlager wird für den oben beschriebenen Referenzfall direkt nach Ende der Betriebsphase angenommen. Er kann sowohl aus Laugennestern als auch über eine Anhydritader erfolgen. Im Best estimate Fall wird angenommen, daß die pro Laugennest vorhandene Laugenmenge auf 30 m³ begrenzt ist. Für den Zulauf über den Anhydrit steht eine unbegrenzte Laugenmenge zur Verfügung.

Eine nennenswerte Barrierefunktion der Stahlbehälter wird bei der PAGIS-Studie nicht angenommen. Aus rechentechnischen Gründen wird eine mittlere Lebensdauer von fünf Jahren eingesetzt. Nach dem Behälterausfall beginnt die Glaskorrosion.

Die Glaskorrosion wird bei PAGIS im Gegensatz zur Gewährstudie temperaturabhängig nach folgendem Ansatz modelliert. Es wird eine Vergrößerung der auslaugbaren Oberfläche um einen Faktor 15 angenommen:

$$\frac{dA_i}{dt} = \frac{O_{eff}A_i}{m_0}r_m exp\left(-\frac{Q_G}{R}\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_r}\right)\right)$$
 (2)

mit A_i Nuklidmenge

O_{eff} effektive Oberfläche

m₀ Anfangs-Glasmasse

r_m Matrixauslaugrate

Q_G Aktivierungsenergie

R Allgemeine Gaskonstante

T Temperatur zum aktuellen Zeitpunkt

T_r Referenztemperatur (473 K)

Bei einer Matrixtemperatur von 200°C erhält man bei Multiplikation der Auslaugrate mit der effektiven Oberfläche einen jährlichen Massenumsatz von 6 kg, so daß die HAW-Glasmatrix mit einer Masse von 435 kg nach etwa 72 Jahren vollständig umgesetzt wäre. Findet die Korrosion dagegen bei der Gebirgstemperatur von ca. 40°C statt, so dauert die Umsetzung 1.2·10⁶ Jahre. Die Temperaturabhängigkeit bewirkt also, daß der Hauptanteil der Nuklide in den ersten 1000 Jahren nach Laugenzutritt mobilisiert wird.

Die Konzentration der mobilisierten Nuklide in der Lauge wird durch Löslichkeitsgrenzen limitiert. Die kontaminierte Lauge wird aufgrund der Gebirgskonvergenz aus dem Bohrloch ausgepreßt, sobald der gesamte noch vorhandene Hohlraum im Bohrloch mit Lauge gefüllt ist. Sie wird durch weitere Segmente des Endlagers transportiert. Während des Transports durch das Grubengebäude findet eine Verdünnung durch Lauge aus unkontaminierten Bereichen des Grubengebäu-

des statt. Die kontaminierte Lauge wird schließlich aus dem Mittelfeld in das über dem Salzstock liegende Deckgebirge ausgepreßt.

4.1.3 Kristallin I

Der Grundwasserstrom des Nahfeldes, der das gesamte Endlager durchfließt ist mit 3.0 m³/a etwas niedriger als bei Projekt Gewähr mit 4.2 m³/a. Aufgrund der niedrigeren Anzahl an Behältern ist die Grundwassermenge pro Behälter bei Kristallin I etwas höher.

Auch bei der Kristallin-Studie wird angenommen, daß das Wasser direkt nach Ende der Betriebsphase Kontakt zu den Abfallbehältern hat und, daß alle Behälter nach 1000 Jahren gleichzeitig ausfallen. Die Behälter stellen danach keine Barriere mehr für den Wasser- oder Radionuklidtransport dar. Die Glaskorrosion wird mit dem in der Gewähr-Studie verwendeten Modell temperaturunabhängig modelliert. Es wird angenommen, daß die Mobilisierung aus allen Abfallbehältern gleichartig erfolgt.

Der Wert 3.8·10⁻⁴ kg/(m²a) für die Matrixauslaugrate entspricht dem Wert 1.0·10⁻⁷ g/(cm²d), der bei Projekt Gewähr verwendet wurde. Alle anderen Werte sind identisch. Die Mobilisierung der Nuklide ist nach 1.5·10⁵ Jahren abgeschlossen. Die aus der Glasmatrix freigesetzten Nuklide diffundieren durch die Bentonitschicht. Löslichkeitsbegrenzte Radionuklide fallen am Übergang Glasmatrix/Bentonit aus. Die Freisetzung aus allen Behältern wird in ein hypothetisches Volumen von 99 m³ angenommen, das sich aus den Resthohlräumen der Abfallmatrix herleitet.

Im Gegensatz zur Studie Gewähr wird die Diffusion der Nuklide durch den Bentonit modelliert. Innerhalb des Bentonits wird lineare Sorption nach dem K_d-Konzept an der Bentonit-Oberfläche angenommen. Die Dicke der Bentonitschicht beträgt 1.38 m. Als effektive nuklidunabhängige Diffusionskonstante wird 6.3·10⁻³ m²/a gewählt. Die Dichte des Bentonits beträgt 2760 kg/m³, bei einer Porosität von 0.38. Die Diffusion erfolgt ausschließlich radial. Die Konzentration am inneren Bentonitrand ergibt sich aus der in dem hypothetischen Volumen gelösten Radionuklidmenge.

Die in der Studie Kristallin I verwendeten Löslichkeitsgrenzen und die im Bentonit verwendeten K_d -Werte sind in Tabelle 2 dargestellt. Das Element Zinn hat eine viel höhere, die Elemente Palladium, Radium, Plutonium, Neptunium und Protactinium haben deutlich niedrigere Löslichkeitsgrenzen als in der Gewähr-Studie. Bei den übrigen Elementen unterscheiden sich die Löslichkeitsgrenzen um weniger als einen Faktor 10.

Es wird weiter angenommen, daß Radionuklide, die durch die Bentonitschicht diffundiert sind, direkt in das wasserleitende Kluftsystem des Fernfelds gelangen. Als Randbedingung für den Diffusionsprozeß wird angenommen, daß die Rate der Nuklidfreisetzung am Übergang Bentonit - Granit gleich der Rate der Nuklid-Advektion im Fernfeld ist.

Alle relevanten Effekte und Modellansätze im Nahbereich sind in Tabelle 4 für die drei Studien zusammenfassend aufgeführt.

Element	K _d - Bentonit [m ³ /kg]	Element	K _d - Bentonit [m ³ /kg]
Cäsium	1.0·10 ⁻²	Uran	5.0·10 ⁰
Selen	5.0·10 ⁻³	Americium	5.0·10 ⁰
Technetium	1.0·10 ⁻¹	Plutonium	5.0·10 ⁰
Palladium	1.0·10 ⁰	Neptunium	5.0·10 ⁰
Zinn	1.0·10 ⁰	Thorium	5.0·10 ⁰
Radium	5.0·10 ⁰	Protactinium	1.0·10 ⁰

Tabelle 3: Sorptionswerte im Bentonit für die Studie Kristallin I

Gewähr und Kristallin I	PAGIS		
Grundwasserstrom	Laugenzutritt		
Lebensdauer der Behälter	- über den Anhydrit - aus Laugennestern		
Auslaugung der Glasmatrix	Temperaturverläufe und Temperaturgradien-		
Elementspezifische Löslichkeitsgrenzen	ten im Endlager		
Diffusion durch die Bentonitschicht:	Strömungswiderstände		
nur Nuklidauswahl	Auslaugung der Glasmatrix		
Radioaktiver Zerfall	Elementspezifische Löslichkeitsgrenzen		
zusätzlich in Kristallin:	Konvergenz des Gebirges		
Diffusion und Sorption im Bentonit	Nuklidtransport durch Diffusion, Konvektion und Advektion durch Konvergenz		
	Radioaktiver Zerfall		

Tabelle 4: Berücksichtigte Effekte im Nahbereich.

4.2 Prozesse und Effekte im Fernfeld

4.2.1 Projekt Gewähr

Das Fernfeld ist bei der Gewähr-Studie unterteilt in zwei Schichten des Kristallins, die sich in ihren hydraulischen Eigenschaften wesentlich unterscheiden: das mittlere Kristallin und das obere Kristallin. Das mittlere Kristallin besteht aus Granit, das von einem Netzwerk von 1m mächtigen

Kakiritzonen durchzogen ist. Im Referenzfall wird angenommen, daß diese Kakiritzonen in Abständen von 125 m auftreten und in einem Winkel von 70° zur Horizontalen stehen (vgl. Abbildung 1). In diesen Kakiritzonen verlaufen Röhren mit einem Durchmesser von 1 mm und einem Abstand von 1m zueinander, durch die der Grundwassertransport im mittleren Kristallin erfolgt. Es wird angenommen, daß die Nuklide während des Transports senkrecht zur Transportrichtung in die Kakiritmatrix diffundieren können und an den Korngrenzen in der Matrix sorbieren. Die Matrixdiffusionskonstante wird konservativ zu 4.7·10⁻⁴ m²/a angenommen, bei einer maximalen Eindringtiefe in die Matrix von 50 cm und einer Matrixporosität von 0.033. Die Sorption erfolgt dabei linear nach dem K_d-Konzept. Die verwendeten K_d-Werte sind in Tabelle 5 aufgeführt.

Element	Gewähr K _d [m ³ /kg]	Kristallin I K _d [m ³ /kg]	PAGIS K _d [m ³ /kg]
Cäsium	3.0·10 ⁻²	Freundlich *)	1.0·10 ⁻³
Selen	5.0·10 ⁻³	1.0 10 ⁻²	3.0·10 ⁻⁴
Technetium	2.5·10 ⁻¹	5.0·10 ⁻¹	7.0·10 ⁻³
Palladium	1.0·10 ⁻²	5.0·10 ⁻¹	1.0 10 ⁻²
Zinn	5.0·10 ⁻²	5.0·10 ⁻¹	2.0·10 ⁻¹
Radium	1.0·10 ⁺⁰	5.0·10 ⁻¹	9.0·10 ⁻⁴
Uran	1.0·10 ⁺⁰	1.0·10 ⁰	2.0·10 ⁻³
Americium	5.0·10 ⁺⁰	5.0·10 ⁰	1.0·10 ⁺⁰
Plutonium	5.0·10 ⁺⁰	5.0·10 ⁰	1.0·10 ⁺⁰
Neptunium	1.0·10 ⁺⁰	1.0·10 ⁰	3.0·10 ⁻²
Thorium	1.0·10 ⁺⁰	1.0·10 ⁰	3.0·10 ⁻¹
Protactinium	1.0·10 ⁺⁰	1.0·10 ⁰	1.0·10 ⁺⁰

Tabelle 5: K_d-Werte im Fernfeld für die Studien Gewähr, Kristallin I und PAGIS.

Die Länge des Transportwegs beträgt 500 m. Der Volumenstrom, der die gesamte Endlagerfläche passiert wird in der Studie zu 4.2 m³/a angenommen. Daraus ergibt sich eine Fluidtransportzeit von 85 Jahren. Legt man die gesamte Endlagerfläche zugrunde, ergibt sich, daß der Transport durch 8860 Röhren im Kakirit stattfindet, was einem Röhrenquerschnitt von insgesamt 0.7 m² entspricht. Als Referenzwert für die Dispersionslänge wird 50 m angenommen.

Im oberen Kristallin wird aufgrund der wesentlich höheren Grundwassergeschwindigkeiten kein Transport modelliert, sondern nur ein Verdünnungsfaktor von $2\cdot 10^4$ angenommen. Eine weitere Verdünnung, für die bei den Rechnungen ein Faktor 80 verwendet wird, findet beim Übergang in die fluviatilen Schotter des Rheins statt. Der gesamte Reduktionsfaktor durch Verdünnung im Fernfeld beträgt demnach $R_{Gew} = 1.6\cdot 10^6$.

4.2.2 PAGIS

Der Nuklidtransport durch das Deckgebirge findet bei PAGIS im porösen Medium statt. Er wird mit einem eindimensionalen Transportprogramm berechnet. Für den Transportweg wird eine homogene Stromröhre mit konstantem Querschnitt angenommen. Der Transportweg ist 9300 m lang bei einem Querschnitt von $3.69\cdot10^{+4}$ m². Der Volumenstrom beträgt $4.8\cdot10^{+4}$ m³/a. Daraus ergibt sich eine Fluidtransportzeit von 1450 Jahren. Als Dispersionslänge wurde 65 m gewählt. Die Porosität beträgt 0.2, die Dichte des Gesteins 2500 kg/m³. Es wird lineare Sorption nach dem K_d -Konzept an der Oberfläche des Aquifermaterials angenommen. Die verwendeten K_d -Werte sind in Tabelle 5 angegeben.

Der Volumenstrom liegt etwa in der Größenordnung desjenigen im oberen Kristallin der Gewähr-Studie. Beim Übergang der aus dem Endlager ausgepreßten kontaminierten Lauge in den Volumenstrom des Deckgebirges ergibt sich ebenfalls ein Verdünnungsfaktor R_{Pag} . Dieser entspricht dem Verhältnis von Volumenstrom im Deckgebirge \dot{v}_{D} zu Laugenstrom aus dem Grubengebäude \dot{v}_{L} .

$$R_{\text{Pag}} = \frac{v_{\text{D}}}{\dot{v}_{\text{L}}} \tag{3}$$

Der Laugenstrom \dot{v}_L nimmt allerdings mit zunehmender Zeit ab. Zur Bestimmung des Verdünnungsfaktors wurde derjenige Laugenstrom zum Zeitpunkt der maximalen Nuklidfreisetzung gewählt. Dieser Laugenstrom beträgt ca. 1.2 m³/a, woraus ein Verdünnungsfaktor von 4·10⁴ resultiert.

4.2.3 Kristallin I

Das Endlager soll im unteren Granitgestein errichtet werden. An eine untere Granitzone mit geringer Permeabilität schließt sich oberhalb 500 m Teufe eine Zone mit höherer Permeabilität an. In der Studie wird zwischen einem westlichen und einem östlichen Gebiet in der unteren Zone unterschieden. Für den Referenzfall wird die Ausbreitung durch das westliche Gebiet betrachtet. Als Wasserleiter befinden sich in diesem Gebiet kataklastische Zonen, "jointed Zonen", Aplit/Pegmatit-Spalte und Hauptkluftzonen. Es wird angenommen, daß das Endlager einen Mindestabstand von 100 m von den Hauptkluftleitern hat. Für den Referenzfall wird deswegen angenommen, daß der Transport nur durch kataklastische und jointed Zonen stattfindet. Es wird ein Modell entwickelt, in dem sechs verschiedene Geometrien für den Verlauf dieser wasserleitenden Zonen angenommen wird. Für den Referenzfall wird aus Konservativitätsgründen diejenige von den sechs Geometrien ausgewählt, für die sich die höchste Dosisbelastung durch Cs-135 in der Biosphäre ergibt. Bei dieser Geometrie wird angenommen, daß der Fluidtransport nur in planaren kataklastischen bzw. jointed Zonen stattfindet. Diese Klüfte haben eine Höhe von 1 mm und eine Breite von 100 mm. Die gesamte Endlagerfläche A_E, die vom Grundwasserstrom

durchflossen wird, beträgt $1.4\cdot10^5$ m². Für den Fluidtransport steht ein Flächenanteil H von $2.4\cdot10^{-6}$ zur Verfügung. Daraus ergibt sich ein Querschnitt A_{Fl} von 0.336 m².

$$A_{\rm Fl} = A_{\rm E} H \tag{4}$$

Das entspricht 3336 Klüften mit einer Höhe von 1 mm und einer Breite von 100 mm. Der gesamte Volumenstrom im Fernfeld \dot{V}_{Fe} beträgt 3 m³/a. Als Länge des Transportweges wird 200 m angenommen. Die Transportzeit ergibt sich daraus zu 20 Jahren. Die Dispersionslänge beträgt 50 m. Während des Transports wird Diffusion in die Matrix und Sorption an der Matrixoberfläche angenommen. Die Matrixdiffusionskonstante beträgt $1\cdot 10^{-3}$ m²/a, bei einer maximalen Eindringtiefe in die Matrix von 5 cm und einer Matrixporosität von 0.05. Die verwendeten K_d -Werte sind in Tabelle 5 aufgeführt. In dem darüberliegenden Kristallin bzw. in einer Hauptkluftzone wird kein Transport modelliert. Aus diesem Grund wird nach dem Transport durch die untere Granitzone eine Freisetzung der Nuklide direkt in die Rheinschotter angenommen. Der Grundwasserstrom \dot{V}_{Rh} durch die fluviatilen Rheinschotter beträgt 5.5·10⁶ m³/a. Man erhält also einen Verdünnungsfaktor R_{Kri} beim Übergang vom unteren Granit in die Rheinschotter:

$$R_{Kri} = \frac{\dot{V}_{Fe}}{\dot{V}_{Rh}} = 2 \cdot 10^6.$$
 (5)

Die im Fernfeld verwendeten Modellansätze sind für die drei Studien in Tabelle 6 zusammenfassend dargestellt.

Gewähr und Kristallin I	PAGIS
1-dimensionaler Transport im geklüfteten Medium	1-dimensionaler Transport im porösen Medium
Advektion	Advektion
Diffusion und Dispersion	Diffusion und Dispersion
Matrixdiffusion und Sorption	Lineare Sorption
Verdünnung	Verdünnung
Radioaktiver Zerfall	Radioaktiver Zerfall

Tabelle 6: Berücksichtigte Effekte im Fernfeld.

4.3 Modellansätze und Parameter in der Biosphäre

In der Studie PAGIS sind Dosiskonversionsfaktoren die zentralen Eingangsgrößen zur Berechnung von Dosisraten. Bei der Ermittlung der Dosiskonversionsfaktoren werden die verschiedenen Pfade betrachtet, auf dem die Radionuklide aus dem kontaminierten Grundwasser in den Menschen gelangen. Dabei werden die Verzehrsgewohnheiten eines Erwachsenen und die Dosisfaktoren zugrunde gelegt. Mit den Dosiskonversionsfaktoren werden die Konzentrationen der Nuklide am Übergang Geosphäre/Biosphäre in Dosisraten umgerechnet.

Der Transport in der Biosphäre wird bei Projekt Gewähr und Kristallin I mit einem Kompartimentmodell berechnet. Nach dem Übergang in die Rheinschotter findet ein Stoffaustausch zwischen
den unterschiedlichen Kompartimenten Bodenwasser mit Boden, Flüssen und Seen mit Sedimenten statt. Die Nuklidaufnahme von Pflanzen und Tieren in den Kompartimenten wird ermittelt. Die resultierende Dosis wird aus den Aktivitätskonzentrationen in den einzelnen Nahrungsmitteln, den Konsummengen der Nahrungsmittel und den Dosisfaktoren berechnet. Um einen
groben Vergleich der Wirkung der Biosphären in diesen beiden Studien mit derjenigen in der PAGIS-Studie zu haben, wurden für Projekt Gewähr und Kristallin I aus dem Quotient von maximaler Dosisrate und maximaler Konzentration im Rheinschotter quasi Dosiskonversionsfaktoren abgeschätzt. Diese sind in Tabelle 7 vergleichend zu den bei PAGIS und Kristallin I verwendeten
Dosiskonversionsfaktoren dargestellt.

Nuklid	Dosiskonversionsfaktoren [Sv/a : Bq/l]			
	Gewähr	Kristallin I	PAGIS	
Se-79	3.9·10 ⁻⁶	3.9·10 ⁻⁵	6.1·10 ⁻⁷	
Tc-99	9.0·10 ⁻⁷	2.0·10 ⁻⁵	6.3·10 ⁻⁷	
Pd-107	2.3·10 ⁻⁸	-	5.4·10 ⁻⁸	
Sn-126	5.6·10 ⁻⁵	-	4.6·10 ⁻⁶	
Cs-135	2.3·10 ⁻⁶	8.3·10 ⁻⁶	3.7·10 ⁻⁶	
Np-237	8.5·10 ⁻³	1.5·10 ⁻²	7.5·10 ⁻⁴	

Tabelle 7: Dosiskonversionsfaktoren ausgewählter Spaltprodukte in den Studien Gewähr, Kristallin I und PAGIS.

Bei der Studie Kristallin I wurden keine maximalen Konzentrationen am Übergang Geosphäre/Biosphäre angegeben. Diese maximalen Konzentration nach Verdünnung durch den Grundwasserstrom \dot{V}_{Rh} wurden aus den Konzentrationen am Übergang Nahbereich/Fernfeld und dem Verhältnis aus Eingangs- und Ausgangsstrom in bzw. aus der Geosphäre für das jeweilige Nuklid berechnet. Für Pd-107 und Sn-126 wurden im Abschlußbericht [3] keine maximalen Dosisraten für den Referenzfall angegeben, da die maximalen Dosisraten beider Nuklide um mehr als fünf Größenordnungen niedriger liegen als die maximale Dosisrate von Cs-135. Für diese beiden Nuklide konnten deswegen keine Dosiskonversionsfaktoren berechnet werden.

5 Freisetzung aus dem Endlager

Bei Projekt Gewähr wird unter Freisetzung aus dem Endlager die Freisetzung aus der Abfallmatrix in die wasserleitenden Störzonen des Granits verstanden. Bei PAGIS wird darunter die Freisetzung aus dem Grubengebäude in den Grundwasserstrom des Deckgebirges verstanden. Zum Vergleich der Barrierewirkungen von Gewähr und PAGIS wurden die relativen freigesetzten Mengen der einzelnen Nuklide nach 1.5·10⁵ Jahren bestimmt und in Tabelle 8 dargestellt. Die fettgedruckten Werte weisen darauf hin, daß Löslichkeitsgrenzen dieser Nuklide erreicht werden.

In der Gewähr-Studie werden bis auf Cs-135 bei allen Nukliden Löslichkeitsgrenzen erreicht. Entsprechend ist nur für Cs-135 nach 1.5·10⁵ Jahren der gesamte Inventar mobilisiert. Die unterschiedliche kumulierte relative Freisetzung der einzelnen Nuklide ist bei dieser Studie ausschließlich durch die verschiedenen eingelagerten Mengen und die unterschiedlichen Löslichkeitsgrenzen bedingt.

Nuklid	Gewähr	PAGIS		
Nuniu	Endlager	Bohrlöcher	Endlager	
Se-79	1.1·10 ⁻³	6.4·10 ⁻²	4.9 10 ⁻⁴	
Tc-99	3.1·10 ⁻³	5.1·10 ⁻⁴	2.6·10 ⁻⁶	
Pd-107	4.2·10 ⁻⁴	2.1·10 ⁻¹	1.1·10 ⁻³	
Sn-126	3.5·10 ⁻⁴	2.6·10 ⁻¹	1.2·10 ⁻³	
Cs-135	1	2.7·10 ⁻¹	1.2·10 ⁻³	
Np-237	5.8·10 ⁻⁵	2.0·10 ⁻⁴	1.0·10 ⁻⁵	

Tabelle 8: Kumulierte relative Freisetzungsmengen ausgewählter Nuklide nach 1.5·10⁵ Jahren. Die Fälle, bei denen die Löslichkeitsgrenze erreicht wird, sind kursiv gedruckt. Bei PAGIS sind die relativen Freisetzungsmengen in der Spalte Bohrlöcher auf das Inventar in den beiden betroffenen Bohrlöchern bezogen.

Bei der PAGIS-Studie werden zwei Bohrlöcher und das Endlager betrachtet. Ein wesentlicher Rückhalteeffekt besteht bei PAGIS darin, daß aus 262 Bohrlöchern keine Freisetzung erfolgt, da sie aufgrund der Konvergenz des Gebirges verschlossen sind bevor Lauge eindringen kann. In der ersten Spalte ist die relative Freisetzung der beiden Bohrlöcher, aus denen freigesetzt wird, bezogen auf deren Inventar aufgeführt. Cs-135 und Sn-126 erreichen keine Löslichkeitsgrenzen. Dies führt bei beiden Nukliden trotzdem nur zu einer kumulierten relativen Freisetzung aus den Bohrlöchern von 26%. Das liegt zum einen an der noch nicht abgeschlossenen Mobilisierung aus der Glasmatrix und zum anderen daran, daß zu diesem Zeitpunkt noch nicht die gesamte kontaminierte Lauge ausgepreßt wurde.

Der Anteil, der aus dem gesamten Endlager freigesetzt wurde, liegt für diese Nuklide bei 0.12%, da der Inventar der beiden Bohrlöcher nur 1/132 des Gesamtinventars entspricht und ein Teil in

der nicht ausgepreßten Restlauge im Grubengebäude verbleibt. Die Barrierewirkung ist bei Tc-99 und Np-237 am stärksten, was durch die im Verhältnis zum Inventar niedrigen Löslichkeitsgrenzen dieser beiden Nuklide bedingt ist. Bei Np-237 tritt während des Transports vom Bohrloch zum Mittelfeld noch ein zusätzlicher Aufbaueffekt durch Zerfall des Mutternuklids Am-241 auf. Deswegen ist das Verhältnis der kumulierten Freisetzungsmengen aus dem Endlager zu denen aus den Bohrlöchern mit 1/20 deutlich größer als 1/132.

Die Wassermenge, die bei dem Granitendlager Kontakt zu den Abfällen hatte, ist um einen Faktor 2.6·10⁴ größer als die Laugenmenge, die in die beiden Bohrlöcher des Salzendlagers zugelaufen ist. Dieser Unterschied und der Umstand, daß nur 1/132 des Inventars in PAGIS überhaupt mobilisiert werden kann, erklärt, daß trotz der in der Gewähr-Studie z.T. um 10⁴ bis 10⁶ niedrigeren Löslichkeitsgrenzen nach 1.5·10⁵ Jahren vergleichbare relative Mengen der Nuklide mobilisiert werden.

6 Dosisbelastung in der Biosphäre

Die maximalen Dosisraten der in den drei betrachteten Referenzfällen dosisrelevanten Nuklide sind in Tabelle 9 zusammengefaßt. Bei beiden Studien ergibt sich die maximale Dosisrate durch Cs-135. Daneben gehören Np-237 und Se-79 in beiden Studien zu den wichtigsten Nukliden. Bei beiden Studien spielen weitere Spaltprodukte eine Rolle. Sn-126 und Pd-107 sind bei Projekt Gewähr wichtig, Tc-99 ist bei PAGIS von Bedeutung. Zusätzlich treten bei PAGIS hohe Dosisraten durch U-233 und die Töchter von U-234, wie z. B. Ra-226 auf.

	Gewähr			Kristallin I *)			PAGIS	
Nuklid	Zeit- punkt	max. Dosisrate [Sv/a]	Nuklid	Zeit- punkt	max. Dosisrate [Sv/a]	Nuklid	Zeit- punkt	max. Dosisrate [Sv/a]
Cs-135	6.1·10 ⁶	8.4·10 ⁻¹²	Cs-135	3·10 ⁵	2·10 ⁻⁷	Cs-135	1.9·10 ⁴	7.8·10 ⁻⁶
Np-237	2.1·10 ⁷	3.6·10 ⁻¹³	Pa-231	> 1·10 ⁷	9·10 ⁻⁹	Np-237	4.4·10 ⁵	1.0·10 ⁻⁶
Se-79	4.4·10 ⁵	3.5·10 ⁻¹³	Se-79	7·10 ⁴	5·10 ⁻⁹	Se-79	8.6·10 ³	3.8·10 ⁻⁷
Sn-126	8.8·10 ⁵	1.4·10 ⁻¹³	Np-237	> 1·10 ⁷	8·10 ⁻¹⁰	U-233	3.0·10 ⁵	4.4·10 ⁻⁸
Th-228	2.1·10 ⁷	1.0·10 ⁻¹³	Tc-99	2·10 ⁶	6·10 ⁻¹⁰	Tc-99	1.1·10 ⁵	2.6·10 ⁻⁸
Pd-107	3.5·10 ⁷	8.7·10 ⁻¹⁴			100-400-400-400-400-400-400-400-400-400-	Ra-226	4.9·10 ⁴	1.2·10 ⁻⁸

Tabelle 9: Maximale Dosisraten relevanter Nuklide und Zeitpunkte des Auftretens. *) Die maximalen Dosisraten von Pa-231 und Np-237 sind in der Kristallin I Studie für die gesamte 4N+1, bzw. 4N+3 Zerfallsreihe angegeben.

Die für den Referenzfall genannten Nuklide sind auch bei den sieben verschiedenen Parametervariationsrechnungen der Gewähr-Studie die wichtigsten Nuklide. Ebenso sind bei den drei verschiedenen Szenarien der PAGIS-Studie die in Tabelle 9 genannten Nuklide diejenigen, die im wesentlichen die maximalen Dosisraten bestimmen.

Bei der Kristallin-Studie ergibt sich im hier ausgewählten Referenzfall die maximale Summendosisrate auch durch Cs-135. Mehr als eine Größenordnung niedriger ist die Summendosis der 4N+3 Kette, die im wesentlichen durch Pa-231 bewirkt wird. Die 4N+1 Kette mit Np-237 und die beiden Spaltprodukte Se-79 und im Gegensatz zur Gewähr-Studie Tc-99 haben noch eine wichtige Bedeutung.

7 Vergleich der Wirksamkeit von Teilsystemen am Verhalten von Nukliden

Um die Wirksamkeit einzelner Effekte hinsichtlich ihrer Barrierenfunktion zu beurteilen, wurde die Ausbreitung ausgewählter Nuklide untersucht. Dazu wurden die maximalen Konzentrationen der Nuklide an verschiedenen Stellen des Ausbreitungswegsfür bei den drei Studien gegenübergestellt.

Bei der Studie Projekt Gewähr wurde nicht das Basisfallszenarium sondern die Rechnung mit konservativer Matrixdiffusion zugrundegelegt, da dieser Fall in den Abschlußberichten [2] als Referenzfall am ausführlichsten betrachtet wurde. Außerdem bewirken im Basisfallszenarium nur die Nuklide Cs-135 und Pd-107 eine Dosisrate >10⁻¹⁵ Sv/a in der Biosphäre, für alle anderen Nuklide sind keine Konzentrations- bzw. Dosisverläufe dargestellt. Im Fall der PAGIS-Studie wird der frühe Laugenzutritt unmittelbar nach der Betriebsphase ausgewählt, da dieser Fall ebenfalls als Referenzfall betrachtet wurde und ausführlich beschrieben ist. Wenn man für den Zeitpunkt des Laugenzutritts den best estimate Wert von 85 Jahren verwendet, findet beim Anhydrit-Szenario keine Freisetzung statt.

Für einen detaillierte Gegenüberstellung der Barriereeffekte wurden Cs-135, Np-237 und Pd-107 ausgewählt. Cs-135 stellt in allen drei Studien das wichtigste und das einzige relevante nichtlöslichkeitsbegrenzte Nuklid dar. Np-237 erreicht während des Transports im Nahbereich bei allen drei Studien die Löslichkeitsgrenzen und gehört in den drei Studien jeweils zu den vier wichtigsten Nukliden. Pd-107 verhält sich aufgrund seiner Eigenschaften in der Gewähr-Studie anders als Np-237. Die Halbwertszeiten und die Freisetzungsdauern dieser und weiterer relevanter Nuklide sind in Tabelle 10 aufgeführt.

Nuklid	+ [6]	Freisetzungsdauer [a]		
	t _{1/2} [a]	Gewähr	PAGIS *)	
Se-79	6.5·10 ⁴	5·10 ⁵		
Tc-99	2.1·10 ⁵	1·10 ⁶		
Pd-107	6.5·10 ⁶	6·10 ⁷	2.0·10 ⁴	
Cs-135	2.3·10 ⁶	1.5·10 ⁵		
Np-237	2.1·10 ⁶	2·10 ⁷		

Tabelle 10: Halbwertszeiten und Freisetzungsdauern in den beiden Studien für ausgewählte Nuklide. *) Als Freisetzungsdauer wurde die Breite der Freisetzungskurve bei einem Zehntel der maximalen Freisetzung aus dem Nahbereich gewählt.

Das Verhältnis von Freisetzungsdauer aus dem Grubengebäude zur Transportzeit in der Geosphäre ist dafür ausschlaggebend, ob während des Transports durch das Fernfeld eine Reduk-

tion der maximalen Konzentration durch longitudinale Dispersion stattfindet. Eine Konzentrationsreduktion durch longitudinale Dispersion findet nur dann statt, wenn die Freisetzung eher einem δ -Impuls entspricht. Bei einer konstanten Freisetzungsquelle hat die longitudinale Dispersion keinen Einfluß auf die Maximalkonzentration. Parametervariationen zeigen, daß die Schadstofffreisetzung als konstante Quelle beschrieben werden kann, wenn die Freisetzungsdauer mehr als 80% der Schadstofftransportzeit beträgt [4]. Der Einfluß der longitudinalen Dispersion wird für die einzelnen Nuklide jeweils überprüft.

7.1 Wirksamkeit der Teilsysteme hinsichtlich Cs-135

Die am Übergang Nahbereich/Fernfeld auftretenden maximalen Konzentrationen und die wesentlichen Effekte, die zur Konzentrationsreduktion von Cs-135 führen, sind in Tabelle 11 zusammengefaßt.

	Gewähr	Kristallin I	PAGIS
Inventar [mol]	1.9·10 ⁴	9.7·10 ³	1.8·10 ⁵
Rückhalt	ung im Nahbereic	:h	
nichtisoliertes Inventar [mol]	1.9·10 ⁴	9.7·10 ³	1.4·10 ³
Löslichkeitsgrenze [mol/l] c _{max} (Abfallbehälter) [mol/l] c _{max} (Nah-/Fernfeld) [mol/l]	- 3⋅10 ⁻⁵ 3⋅10 ⁻⁵	- 1·10 ⁻⁵ 1·10 ⁻⁵	- 1·10 ⁻² 1·10 ⁻⁵
Konzentrations	verringerung im F	ernfeld	
Reduktion durch - Verdünnung Geosphäre - Dispersion und Zerfall - Verdünnung Biosphäre	2·10 ⁴ 4·10 ⁴ 80	2·10 ⁶ *) 1.5	4·10 ⁴
Gesamt-Reduktionsfaktor	6⋅10 ¹⁰	3·10 ⁶	4·10 ⁴
Strahlenexpo	sition in der Biosp	ohäre	
c _{max} (Biosphäre) [mol/l]	6·10 ⁻¹⁶	4·10 ⁻¹²	3·10 ⁻¹⁰
DKF [(Sv/a):(mol/l)]	1.3·10 ⁴	4.8·10 ⁴	2.1·10 ⁴
Dosis in [Sv/a]	8·10 ⁻¹²	2·10 ⁻⁷	7·10 ⁻⁶
Zeitpunkt [Jahre]	6·10 ⁶	3·10 ⁵	2·10 ⁴

Tabelle 11: Wirksamkeit von Effekten. Veränderung der maximalen Konzentrationen für Cs-135.
*) Bei Kristallin I wurde nicht zwischen Verdünnung in der Geosphäre und Biosphäre unterschieden

Die maximale Konzentration am Übergang Nahfeld/Fernfeld liegt bei allen drei Studien in der gleichen Größenordnung. Bei Projekt Gewähr ergibt sich die maximale Konzentration von 3·10⁻⁵

mol/l aus der maximalen Mobilisierungsrate von Cs-135 von 6.5·10⁻⁵ mol/a und dem Grundwasserstrom pro Behälter von 0.71 l/a. Die zusätzliche Berücksichtigung der Diffusion durch die Bentonitmatrix bei Kristallin I führt nicht zu einer wesentlich geringeren maximalen Konzentration von Cs-135 im Nahbereich.

Bei PAGIS ergibt sich die Konzentration im Bohrloch aus der bis zu diesem Zeitpunkt freigesetzten Nuklidmenge und dem Volumen der Lauge von 13 m³ und beträgt ca. 1·10⁻² mol/l. Die kontaminierte Lauge wird nach Auspressen aus dem Bohrloch mit nicht kontaminierter Lauge aus anderen Bereichen des Grubengebäudes verdünnt. Das führt zu einer Reduktion um drei Größenordnungen auf ca. 1·10⁻⁵ mol/l. Die hier angegebene Konzentration C_{max} am Übergang Nahfeld/Fernfeld entspricht der Konzentration zum Zeitpunkt der maximalen Freisetzung von Cs-135.

Der in Kapitel 4 beschrieben Rückhaltemechanismus von Matrixdiffusion mit Sorption ist bei Projekt Gewähr sehr effektiv und führt für stark sorbierende Nuklide zu Nuklidtransportzeiten, die um mehrere Größenordnung über der Grundwassertransportzeit von 85 Jahren liegen. Im Fall des Cäsiums beträgt die Transportzeit 6·10⁶ Jahre. Dies führt aufgrund des radioaktiven Zerfalls zu einer Reduktion der Maximalkonzentration um einen Faktor von 4·10⁴. Beim Übergang vom mittleren in das obere Kristallin erfolgt eine weitere Reduktion um einen Faktor 2·10⁴ und um einen Faktor 80 in der Biosphäre beim Übergang in die Rheinschotter. Dies führt zu einer Gesamtreduktion im Fernfeld von 6·10¹⁰ und mit dem Dosiskonversionsfaktor zu einer Dosis von 8·10⁻¹² Sv/a.

Bei Kristallin I wurde nach der Ausbreitung im unteren Kristallin eine direkte Freisetzung in die Rheinschotter modelliert. Daraus resultiert der in Kapitel 4.2.3 beschriebene Reduktionsfaktor von $2\cdot 10^6$, d. h. es wurde nicht unterschieden zwischen Verdünnung in der Geo- und Biosphäre. Der Effekt der Matrixdiffusion mit Sorption führt bei Kristallin I nur zu einer Reduktion um den Faktor 1.5. Dieser Unterschied resultiert aus dem kürzeren Transportweg bei Kristallin I von nur 200 m gegenüber 500 m bei Projekt Gewähr und der viel geringeren Eindringtiefe in die Matrix von nur 5 cm gegenüber 50 cm bei Projekt Gewähr. Die Sorptionswerte liegen in der gleichen Größenordnung. Bei Projekt Gewähr wird ein K_d -Wert von $3\cdot 10^{-2}$ m 3 /kg verwendet, bei Kristallin I wird mit nichtlinearer Sorption nach Freundlich gerechnet. Bei einer maximalen Konzentration während des Transports durch das untere Kristallin von ca. $1\cdot 10^{-5}$ mol/I entspricht die Rückhaltung derjenigen bei einem K_d -Wert von ca. $4\cdot 10^{-2}$ m 3 /kg. Mit einem dreifach höheren Dosiskonversionsfaktor ergibt sich bei Kristallin I eine um einen Faktor $2.5\cdot 10^4$ höhere Dosis als bei Projekt Gewähr.

Im Fall der PAGIS-Studie wird die aus dem Grubengebäude austretende kontaminierte Lauge durch den Grundwasserstrom im Deckgebirge verdünnt. Die Reduktion der Maximalkonzentration einschließlich der transversalen Dispersion beträgt 4·10⁴. Der weitere Transport durch das Deckgebirge dauert ca. 2·10⁴ Jahre. Eine merkliche Konzentrationsabnahme durch radioaktiven Zerfall tritt nicht auf, da die Transportzeit im Verhältnis zur Halbwertszeit von Cs-135 klein ist. Eine Verdünnung durch longitudinale Dispersion tritt ebenfalls nicht auf, da die Freisetzungsdauer von Cs-135 mit 2·10⁴ Jahren etwa genauso groß wie die Transportzeit ist, die Freisetzung also einer konstanten Quelle entspricht.

7.2 Wirksamkeit der Teilsysteme hinsichtlich Np-237

Die am Übergang Nahbereich/Fernfeld auftretenden maximalen Konzentrationen von Np-237 und die wesentlichen Effekte, die zur Konzentrationsreduktion führen, sind in Tabelle 12 zusammengefaßt. Die Löslichkeitsgrenzen differieren um einen Faktor von 10⁵. Der Reduktionsfaktor durch Verdünnung mit unkontaminierter Lauge bei PAGIS beträgt wie bei den beiden anderen Nukliden 1·10³. Allerdings wird Np-237 während des Transports im Grubengebäude durch den Zerfall des Mutternuklids Am-241 nachgebildet. Daraus resultiert ein Unterschied zwischen den maximalen Konzentrationen an der Grenze Nahfeld/Fernfeld von nur 2, bzw. 3.5 Größenordnungen. Die gegenüber Gewähr um den Faktor 40 niedrigere maximale Konzentration im Nahbereich bei Kristallin I wird hauptsächlich durch die um den Faktor 20 niedrigeren Löslichkeitsgrenzen bewirkt. Zusätzlich tritt bei Kristallin I ein Reduktionseffekt durch Sorption am Bentonit auf.

	Gewähr	Kristallin I	PAGIS
Inventar [mol]	1.5·10 ⁴	7.6·10 ³	1.6·10 ⁵
Rückhalt	ung im Nahbereid	h	1
nichtisoliertes Inventar [mol]	1.5·10 ⁴	7.6·10 ³	1.2·10 ³
Löslichkeitsgrenze [mol/l]	2·10 ⁻⁹	1.10 ⁻¹⁰	1·10 ⁻⁵
c _{max} (Abfallbehälter) [mol/l] c _{max} (Nah-/Fernfeld) [mol/l]	2·10 ⁻⁹	5·10 ⁻¹¹	1·10 ⁻⁵ 1·10 ⁻⁷
Konzentrations	verringerung im F	ernfeld	
Reduktion durch - Verdünnung Geosphäre - Dispersion und Zerfall - Verdünnung Biosphäre	2·10 ⁴ 2·10 ⁵ 80	2·10 ⁶ *) 3.5	4·10 ⁴ 12
Gesamt-Reduktionsfaktor	2·10 ¹¹	7·10 ⁶	5·10 ⁵
Strahlenexpo	sition in der Bios	ohäre	
c _{max} (Biosphäre) [mol/l]	9·10 ⁻²¹	8·10 ⁻¹⁸	2·10 ⁻¹³
DKF [(Sv/a):(mol/l)]	5.2·10 ⁷	9.3 10 ⁷	4.6·10 ⁶
Dosis in [Sv/a]	4·10 ⁻¹³	8·10 ⁻¹⁰	1.10 ⁻⁶
Zeitpunkt [Jahre]	2·10 ⁷	1·10 ⁷	4·10 ⁵

Tabelle 12: Wirksamkeit von Effekten. Veränderung der maximalen Konzentrationen für das Nuklid Np-237. *) Bei Kristallin I wurde nicht zwischen Verdünnung in der Geosphäre und Biosphäre unterschieden

Im Fernfeld ist der Gesamtreduktionsfaktor bei Projekt Gewähr mit $2\cdot 10^{11}$ sehr groß. Das ist darin begründet, daß aufgrund des sehr hohen K_d -Werts eine starke Rückhaltung auftritt und die Halbwertszeit des Np-237 gegenüber der Transportzeit von $2\cdot 10^7$ Jahren klein ist. Es ergibt sich eine Dosis von $4\cdot 10^{-13}$ Sv/a. Im Fernfeld der Kristallin I Studie ist bei Np-237 wie auch bei Cs-135

der Effekt der Matrixdiffusion und Sorption fast vernachlässigbar. Die maximale Konzentration wird um einen Faktor 3.5 reduziert. Diese wesentlich schwächere Reduktion der maximalen Konzentration von Np-237 bei Kristallin I führt zu einer um mehr als drei Größenordnungen höheren maximalen Dosisrate als bei Projekt Gewähr. Die Dosiskonversionsfaktoren in der Biosphäre liegen bei beiden Studien in der gleichen Größenordnung.

Bei PAGIS beträgt der Gesamtreduktionsfaktor im Fernfeld 5·10⁵. Np-237 hat mit 4·10⁵ Jahren eine längere Transportzeit als Cs-135. Das Verhältnis von Freisetzungsdauer zu Transportzeit entspricht 0.05, d. h. es tritt neben der Verdünnung ein Reduktionseffekt durch longitudinale Dispersion auf. Es ergibt sich eine maximale Dosis von 1·10⁻⁶ Sv/a.

7.3 Wirksamkeit der Teilsysteme hinsichtlich Pd-107

Die am Übergang Nahbereich/Fernfeld auftretenden maximalen Konzentrationen von Pd-107 und die wesentlichen Effekte, die zur Konzentrationsreduktion führen, sind in Tabelle 13 zusammengefaßt. Die maximale Konzentration am Übergang Nahfeld/Fernfeld liegt in der Gewähr-Studie um drei Größenordnungen niedriger als in der PAGIS-Studie. Bei beiden Studien werden die

	Gewähr	PAGIS				
Inventar [mol]	1.5·10 ⁴	1.5·10 ⁵				
Rückhaltuı	ng im Nahbereich					
nichtisoliertes Inventar [mol]	1.5·10 ⁴	1.1·10 ³				
Löslichkeitsgrenze [mol/l]	1·10 ⁻⁸	1.10-2				
c _{max} (Abfallbehälter) [mol/l] c _{max} (Nah-/Fernfeld) [mol/l]	1·10 ⁻⁸	1·10 ⁻² 1·10 ⁻⁵				
Konzentrationsvo	Konzentrationsverringerung im Fernfeld					
Reduktion durch - Verdünnung Geosphäre: - Dispersion und Zerfall: - Verdünnung Biosphäre:	2·10 ⁴ 3 80	4·10 ⁴ 5				
Gesamt-Reduktionsfaktor:	5.10 ⁶	2·10 ⁵				
Strahlenexpos	ition in der Biosphäre					
c _{max} (Biosphäre) [mol/l]	2·10 ⁻¹⁵	6·10 ⁻¹¹				
DKF [(Sv/a):(mol/l)]	4.7⋅10 ¹	1.1·10 ²				
Dosis in [Sv/a]	8·10 ⁻¹⁴	7·10 ⁻⁹				
Zeitpunkt [Jahre]	4·10 ⁷	1·10 ⁵				

Tabelle 13: Wirksamkeit von Effekten. Veränderung der maximalen Konzentrationen für Pd-107.

maximalen Konzentrationen am Abfallort durch die Löslichkeitsgrenzen bestimmt. Diese sind in der Studie Projekt Gewähr um sechs Größenordnungen niedriger als bei PAGIS. Bei PAGIS bewirkt die Verdünnung mit unkontaminierter Lauge eine Reduktion der Konzentration um drei Größenordnungen.

Im Fernfeld der Gewähr-Studie bewirkt die Matrixdiffusion mit Sorption nur eine Konzentrationsreduktion um einen Faktor 3. Diese gegenüber den anderen Nukliden wesentlich geringere Reduktion ist darauf zurückzuführen, daß die Freisetzung von Pd-107 in der Gewähr-Studie einer konstanten Quelle entspricht. Grund dafür ist die durch die niedrigen Löslichkeitsgrenzen und das hohe Inventar hervorgerufene sehr lange Freisetzungsdauer. Wegen der hohen Halbwertszeit von Pd-107 bleibt die Freisetzungsrate sehr lange auf dem gleichen Niveau. Die Matrixdiffusion mit Sorption bewirkt zwar auch eine deutliche Rückhaltung von Pd-107, es kommt aber aufgrund dieser sehr langen Freisetzungsdauer nicht zu einer Konzentrationsreduktion durch Dispersion. Die Halbwertszeit von Pd-107 ist nur geringfügig kleiner als die Transportzeit, woraus der Reduktionsfaktor 3 resultiert. Die Verdünnungsfaktoren beim Übergang mittleres/oberes Kristallin und in der Biosphäre ergeben damit einen Gesamtreduktionsfaktor für das Fernfeld von 5·10⁶. Dementsprechend ergibt sich eine Dosis in der Biosphäre von 8·10⁻¹⁴ Sv/a.

Der Gesamtreduktionsfaktor des Fernfelds in der PAGIS-Studie ist für Pd-107 mit $2\cdot10^5$ nur um einen Faktor 30 geringer als in der Gewähr-Studie. Er setzt sich zusammen aus der Verdünnung durch den Grundwasserstrom in der Geosphäre und einem kleinen Anteil durch longitudinale Dispersion. Ein Effekt durch longitudinale Dispersion tritt auf, da das Verhältnis von Freisetzungsdauer zu Transportzeit aufgrund der starken Rückhaltung von Pd-107 nur ca. 0.1 beträgt, d. h. die Nuklidfreisetzung entspricht einem δ -Impuls. Der Anteil durch longitudinale Dispersion ist allerdings ca. zweifach niedriger als im Falle des Neptuniums, was auf den höheren K_d -Wert und die damit längere Transportzeit des Neptuniums zurückzuführen ist. Es ergibt sich eine gegenüber Projekt Gewähr um fünf Größenordnungen höhere Dosis von $7\cdot10^{-9}$ Sv/a.

Bei Kristallin I bewirkt Pd-107 u. a. wegen seiner niedrigeren Löslichkeitsgrenzen von 1·10⁻¹¹ mol/l nur vernachlässigbare Dosisraten. Für den Referenzfall sind daher nicht ausreichend Daten im Abschlußbericht dokumentiert, weswegen es hier nicht berücksichtigt wird.

8 Zusammenfassung von Teil 1

Im ersten Teil dieses Berichts wurden die Langzeitsicherheitsanalysen Projekt Gewähr, Kristallin I und PAGIS für ein Endlager für hochradioaktive Abfälle aus der Wiederaufarbeitung betrachtet. Schwerpunktmäßig wurden die Ergebnisse von deterministischen Rechnungen dieser Studien gegenübergestellt. Bei Projekt Gewähr wurde die Variante mit konservativer Matrixdiffusion, bei PAGIS die Variante mit frühem Laugenzutritt direkt nach Ende der Betriebsphase und bei Kristallin I der Referenzfall ausgewählt.

Ein entscheidender Unterschied zwischen den Studien besteht darin, daß aus dem Granit-Endlager nach entsprechend langer Zeit das gesamte Abfallinventar freigesetzt wird. Im Salzendlager werden im betrachteten Referenzfall mehr als 99% der Abfälle eingeschlossen und damit von der Biosphäre isoliert, weil die Transportwege im Grubengebäude durch die Konvergenz des Salzgebirges bereits verschlossen sind, bevor Lauge in die Einlagerungsorte eindringen kann. Das Gesamtinventar ist im Salzendlager von PAGIS zwar eine Größenordnung höher als in der Studie Projekt Gewähr, das freigesetzte Inventar ist aus diesem Grund aber eine Größenordnung niedriger. Bei Kristallin I wurde nur die Hälfte des bei Projekt Gewähr angesetzten Inventars angenommen.

Die Wirksamkeit der einzelnen Barrieren, wurde anhand der Konzentrationsreduktion ausgewählter Radionuklide während des Ausbreitungswegs untersucht. Die so bestimmten Reduktionsfaktoren sind in Abbildung 3 graphisch dargestellt.

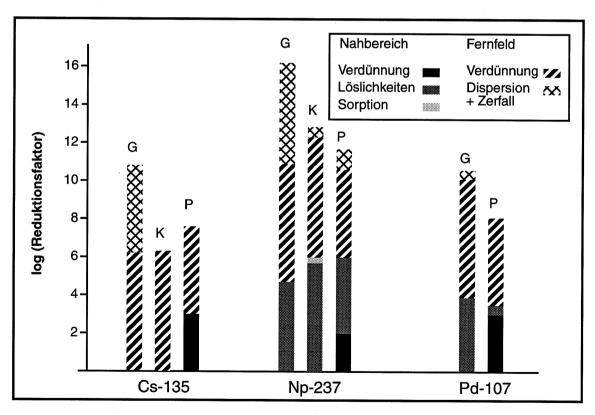


Abbildung 3: Reduktionsfaktoren im Nahbereich und Fernfeld für ausgewählte Nuklide in den drei Studien Gewähr (G), Kristallin I (K) und PAGIS (P)

Die Konzentrationen am Abfallort werden für nichtlöslichkeitsbegrenzte Nuklide, wie Cs-135 durch die vorhandenen Wassermengen und die Mobilisierungsraten aus der Matrix bestimmt. Dabei stellen sich bei PAGIS ca. drei Größenordnungen höhere Konzentrationen als bei den beiden Granitstudien ein. Der Hauptgrund dafür ist der deutlich langsamere Auslaugprozeß der Glasmatrix bei diesen Studien, der erst nach 10³ Jahren beginnt und deswegen bei tiefen Temperaturen verläuft. Ein weiterer Reduktionseffekt im Nahbereich tritt bei den Granitstudien nicht auf. Von den dosisrelevanten Nukliden ist in allen drei Studien nur Cs-135 nicht löslichkeitsbegrenzt und bewirkt deswegen auch die mit Abstand höchsten maximalen Dosisraten.

Die Löslichkeitsgrenzen stellen bei fast allen Nukliden sehr wirksame Nahfeldbarrieren dar und reduzieren die hypothetischen Konzentrationen am Abfallort um mehrere Größenordnungen. Die Löslichkeitsgrenzen der relevanten Nuklide liegen bei den Granitstudien drei bis sechs Größenordnungen niedriger als in der PAGIS-Studie und führen deswegen zu einer größeren Konzentrationsreduktion. Neben diesem Effekt tritt im Grubengebäude des Salzendlagers für alle Radionuklide aber ein zusätzlicher Verdünnungseffekt durch nichtkontaminierte Lauge auf. Dieser führt zu einer Reduktion der maximalen Konzentration um drei Größenordnungen. Daraus resultieren für löslichkeitsbegrenzte Nuklide um zwei bis vier Größenordnungen niedrigere maximale Nuklidkonzentrationen am Übergang Nahbereich/Fernfeld bei der Granit-Studie. Bei Cs-135 stellen sich bei allen drei Studien etwa gleiche Konzentrationen am Übergang Nahbereich/Fernfeld ein.

Im Gegensatz zur Gewähr-Studie wurde bei Kristallin I die Diffusion durch den Bentonit modelliert. Die Auswirkungen auf die maximalen Nuklidkonzentrationen am Übergang Nahbereich/Fernfeld sind allerdings für die relevanten Nuklide gering.

Im Fernfeld findet bei allen Studien ein nuklidunabhängiger Reduktionseffekt durch Verdünnung des kontaminierten Wasserstromes mit dem Grundwasserstrom statt. Bei den Granitstudien wird eine zusätzliche Verdünnung in der Biosphäre angenommen. Daraus resultiert mit ca. 2·10⁶ ein 50 fach höherer Verdünnungseffekt als bei PAGIS mit 4·10⁴.

Bei der Gewähr-Studie tritt während des Deckgebirgstransports ein weiterer sehr effektiver Rückhaltemechanismus durch Matrixdiffusion und Sorption in der Kakiritmatrix auf. Dieser Mechanismus führt bei allen relevanten Nukliden mit Ausnahme von Pd-107 zu einer weiteren Konzentrationsreduktion von vier bis sechs Größenordnungen. Pd-107 ist charakterisiert durch eine hohe Halbwertszeit, ein hohes Inventar und relativ niedrige Löslichkeitsgrenzen. Aus diesem Grund erfolgt eine extrem lange konstante Freisetzung in das Fernfeld, der einer konstanten Quelle entspricht. Dadurch erfolgt nur eine geringe Konzentrationsreduktion. Bei der Studie Kristallin I ist der Effekt der Matrixdiffusion und Sorption für die relevanten Nuklide dagegen vernachlässigbar gering. Verantwortlich dafür ist der kürzere Transportweg bei Kristallin I von nur 200 m gegenüber 500 m und die viel geringere Eindringtiefe in die Matrix von nur 5 cm gegenüber 50 cm bei Projekt Gewähr.

Bei der PAGIS-Studie tritt nur für die dosisrelevanten Spaltprodukte Tc-99 und Pd-107 ein zusätzlicher Verdünnungseffekt durch longitudinale Dispersion auf. Eine zusätzliche effektive Barriere bildet das Deckgebirge nur für solche Nuklide, die aufgrund niedriger Halbwertszeiten und/oder sehr hoher K_d-Werte während des Transports merklich zerfallen. Solche Nuklide wurden bei der Gegenüberstellung nicht betrachtet.

Die genannten Effekte führen letztendlich in der Granitstudie Projekt Gewähr gegenüber PAGIS zu mehr als sechs Größenordnungen niedrigeren und gegenüber Kristallin I zu mehr als fünf Größenordnungen niedrigeren maximalen Dosisraten.

9 Literatur für Teil 1

- [1] R. Storck, J. Aschenbach, R.P. Hirsekorn, A. Nies, N. Stelte: Performance Assessment of Geological Isolation Systems for Radioactive Waste (PAGIS): Disposal in Salt Formations. EUR 11 778 EN, GSF-Bericht 23/88. Commission of the European Communities, Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH München, Brussels-Luxembourg 1988.
- [2] NAGRA: Project Gewähr 1985. Vol. 1-5, Nagra Gewähr Report Series NGB 85-01/05, Nagra, Wettingen, Switzerland, 1985.
- [3] Nagra: Kristallin I Safety assessment report. Technical report 93-22. Juli 1994
- [4] U. Noseck, R. Storck: Grundsätzliche Ausbreitungsrechnungen mit dem eindimensionalen Transportprogramm CHET1. Bericht in Vorbereitung.

Teil 2

Gegenüberstellung der Langzeitsicherheitsanalysen Project-90 und SAM

10 Beschreibung der Modellendlager

10.1 Modellendlager Project-90

Für das Abfallaufkommen in der schwedischen Studie Project-90 wird eine Energieerzeugung von 710 GWa zugrundegelegt. Das Modellendlager wird in 500 m Tiefe in einer Granitformation angenommen. Die Brennstäbe werden in Kupferkanister mit Wandstärken von 10 cm eingeschweißt und der Platz zwischen den Brennstäben wird mit Blei gefüllt. Es sollen 5000 Behälter eingelagert werden, die insgesamt 7000 t Uran enthalten.

Das Referenzgebiet liegt in einer hügeligen Region nahe der Küste mit Erhebungen von maximal 250 m. Das Endlager besteht aus einem System von horizontalen parallelen Strecken, die einen Mindestabstand von 25 m, im Mittel 30 - 35 m, zueinander haben. Die Strecken sollen in ein oder zwei Ebenen angebracht sein. Damit ist gewährleistet, daß kein Kanister eine Temperatur über 80°C erreicht. Die Kanister werden in 7.5 m tiefen Löchern eingelagert, die in den Strecken mit einem mittleren Abstand von sechs Metern angebracht worden sind. Die Zwischenräume zwischen Behälter und Bohrlochwand sowie eine 1.5 m dicke Schicht über den Behältern werden mit hoch kompaktierten Bentonitblöcken ausgefüllt. Der Boden des Lochs und die dann noch verbliebenen Resthohlräume zwischen Behälter und Bohrlochwand werden mit Bentonit Pulver ausgefüllt. Die übrigen Hohlräume in den Strecken werden mit einem Sand-Bentonit-Gemisch verfüllt.

10.2 Modellendlager SAM

Das Abfallaufkommen in dieser deutschen Endlagerstudie resultiert aus einer angenommenen Energieerzeugung von ca. 4000 GWa. Das Grubengebäude für die Studie GBS-A ist in sieben nebeneinanderliegende Einlagerungsabteilungen unterteilt. In jeder Abteilung existiert ein Feld für Leichtwasserreaktor (LWR)-Brennelemente, ein Feld für HAW und ein Feld für MAW und HTR-Brennelemente. Die abgebrannten Brennelemente werden in Polluxbehälter eingeschweißt. Jedes Feld für LWR-Brennelemente besteht aus 20 Einlagerungsstrecken mit je 17 Polluxbehältern. Die HAW-, MAW- und HTR-Abfälle werden in Bohrlöchern eingelagert.

Bei der SAM-Studie wurden verschiedene Einlagerungskonzepte betrachtet. Bei der hier durchgeführten Gegenüberstellung wurde das Konzept der gemeinsamen Bohrloch- und Streckenlagerung GBS-A betrachtet, da bei diesem Konzept die Freisetzung wie bei Project-90 ausschließlich aus den LWR-Brennelementabfällen erfolgt. Das Freisetzungsverhalten der Nuklide wird nicht durch freigesetzte Nuklide aus anderen Abfallarten überlagert. In der SAM-Studie wurden zwei Entsorgungsvarianten mit unterschiedlichen Verhältnissen betrachtet.

Integrierte Entsorgung (IE) : Direkte Endlagerung (DE) = 5 : 2 und Integrierte Entsorgung (IE) : Direkte Endlagerung (DE) = 2 : 5.

Das Verhältnis IE:DE = 5:2 bedeutet, daß Abfälle aus der Wiederaufarbeitung von 500 t Brennstoff und 200 t Brennstoff direkt endgelagert werden. Die Ergebnisse der beiden Varianten unterscheiden sich hinsichtlich der Dosisbelastung in der Biosphäre nicht signifikant. Aus diesem Grund wurde der besser dokumentierte Fall mit einem Endlagerverhältnis von IE:DE = 5:2 ausgewählt. Das gesamte Inventar setzt sich für diese Variante aus 2380 Polluxbehältern, 22656 HAW-Kokillen und 105300 Fässern für MAW- und HTR-Abfälle zusammen. Das LWR-Inventar resultiert aus einer Energieerzeugung von 1232 GWa.

10.3 Aktivitätsinventare

Die Inventare der relevanten Radionuklide beider Studien sind in Tabelle 14 aufgeführt. Bei der SAM-Studie ist zusätzlich der Anteil des Nuklidinventars der LWR-Abfälle zum Gesamtinventar dargestellt. Die Inventare der meisten Nuklide unterscheiden sich für die beiden Studien um weniger als einen Faktor 10. Auffällig ist, daß die U-238 Menge bei SAM nur einen Faktor 2 höher als bei Project 90 ist, während bei den übrigen Nukliden das LWR-Inventar von SAM deutlicher überwiegt. Eine Erklärung dafür ist, daß die Hauptmenge an U-238 in den LWR-Abfällen enthalten ist. Das Inventar der LWR-Abfälle zwischen SAM und Project-90 unterscheidet sich etwa um einen Faktor 1.6. Weitere Unterschiede im Inventar können aus dem höheren Abbrand der Abfälle von 45 GWd/t_{SM} bei SAM gegenüber 38 GWd/t_{SM} bei Project-90 resultieren.

	Project-90		SAM		
Nuklid	Inventar [Bq]	Inventar [mol]	Inventar [Bq]	Inventar [mol]	LWR-Anteil
C-14	8.2·10 ⁺¹³	3.6·10 ⁺¹	1.7·10 ⁺¹⁵	7.4·10 ⁺²	27.7%
Se-79	1.0·10 ⁺¹⁴	4.9·10 ⁺²	6.6·10 ⁺¹⁴	3.2·10 ⁺³	28.1%
Tc-99	4.1·10 ⁺¹⁵	6.6·10 ⁺⁴	2.2·10 ⁺¹⁶	3.5·10 ⁺⁵	28.9%
Pd-107	-	-	1.8·10 ⁺¹⁴	8.8·10 ⁺⁴	31.8%
Sn-126	1.1·10 ⁺¹⁴	8.3·10 ⁺²	9.8·10 ⁺¹⁴	7.4·10 ⁺³	29.9%
l-129	1.1·10 ⁺¹³	1.3·10 ⁺⁴	1.9·10 ⁺¹³	2.3·10 ⁺⁴	87.5%

Tabelle 14: Inventar relevanter Nuklide in den Studien Project-90 und SAM.

	Project-90		SAM		
Nuklid	Inventar [Bq]	Inventar [mol]	Inventar [Bq]	Inventar [mol]	LWR-Anteil
Cs-135	7.5·10 ⁺¹³	1.3·10 ⁺⁴	5.7·10 ⁺¹⁴	9.9·10 ⁺⁴	31.9%
Pu-240	1.2·10 ⁺¹⁷	5.9·10 ⁺⁴	2.6·10 ⁺¹⁷	1.3·10 ⁺⁵	95.7%
U-236	4.8·10 ⁺¹³	8.5·10 ⁺⁴	1.4·10 ⁺¹⁴	2.5·10 ⁺⁵	87.0%
Am-241	8.8·10 ⁺¹⁷	2.9 10+4	2.9·10 ⁺¹⁸	9.5·10 ⁺⁴	52.8%
Np-237	1.4·10 ⁺¹⁴	2.3·10 ⁺⁴	6.0·10 ⁺¹⁴	9.7·10 ⁺⁴	30.0%
U-233	5.8·10 ⁺¹⁰	6.9·10 ⁻¹	4.4·10 ⁺¹⁵	5.2·10 ⁺⁴	1.1·10 ⁻³ %
U-238	8.2·10 ⁺¹³	2.8·10 ⁺⁷	1.2·10 ⁺¹⁴	4.1·10 ⁺⁷	97.5%
U-234	5.0·10 ⁺¹⁴	9.2·10 ⁺³	1.2·10 ⁺¹⁵	2.2·10 ⁺⁴	38.4%
Am-243	1.2·10 ⁺¹⁶	6.7·10 ⁺³	3.7·10 ⁺¹⁶	2.1·10 ⁺⁴	36.0%
Pu-239	7.5·10 ⁺¹⁶	1.4·10 ⁺⁵	1.4·10 ⁺¹⁷	2.5·10 ⁺⁵	97.3%

Tabelle 14: Inventar relevanter Nuklide in den Studien Project-90 und SAM. (Forts.)

11 Szenarien

11.1 Project-90

Bei der Project-90 Studie werden zu ausgewählten Szenarien Konsequenzberechnungen durchgeführt. Es wird ein Referenz-Szenario mit best estimate Werten ausgewählt, das im folgenden ausführlich beschrieben wird. Dieses Szenario wurde auch für die hier durchgeführte Gegenüberstellung betrachtet.

Das Szenario des Referenzfalls beginnt mit dem Zutritt des Grundwassers zu den Abfallbehältern nach Beendigung der Betriebsphase. Es wird angenommen, daß genau ein Behälter nach 10.000 Jahren ausfällt. Nach dem Behälterausfall erfolgt die Korrosion des Brennstoffs. Die entsprechend der Auslaugraten und ihrer Löslichkeitsgrenzen mobilisierten Radionuklide diffundieren durch die 0.4 m dicke radial um den Behälter angebrachte Bentonitschicht und gelangen in die Gesteinsmatrix. Durch die Radiolyse können oxidierende Substanzen, wie Sauerstoff und Wasserstoffperoxid, gebildet werden. Diese Substanzen diffundieren ebenfalls durch die Bentonitschicht und die Gesteinsmatrix. Ihr Transport findet nur in oxidierender Umgebung statt, sonst werden sie verbraucht. Reduzierende Substanzen im Bentonit und in der Gesteinsmatrix sind vor allem zweiwertige Eisenverbindungen in Eisenmineralien wie Siderit, Pyrit oder Magnetit. Als Folge des Prozesses bildet sich eine Redoxfront aus, die langsam vom Abfallbehälter durch die Bentonitschicht in die umgebende Gesteinsmatrix wandert. Das Redoxmilieu hat wesentlichen Einfluß auf Löslichkeitsgrenzen und Sorptionswerte der meisten Radionuklide und damit auf deren Diffusionsgeschwindigkeit. Der Transport im Fernfeld findet in Kluftzonen statt. Es wird angenommen, daß sich in 200 m Abstand vom Endlager eine Hauptkluftzone mit sehr hoher Permeabilität befindet, in der die Nuklide ohne nennenswerte Verzögerung in den Bereich eines Trinkwasserbrunnens gelangen. Entsprechend wird der Geosphärentransport entlang eines 200 m langen Ausbreitungswegs in parallelen planaren Kluftleitern bis zur Hauptkluftzone modelliert. Das kontaminierte Wasser wird entsprechend der Grundwasserneubildungsrate verdünnt. Für die Berechnung von Dosiskonversionsfaktoren in der Biosphäre wird angenommen, daß das

Brunnenwasser ausschließlich als Trinkwasser verwendet wird. Das Referenzszenario ist schematisch in Abbildung 2 dargestellt.

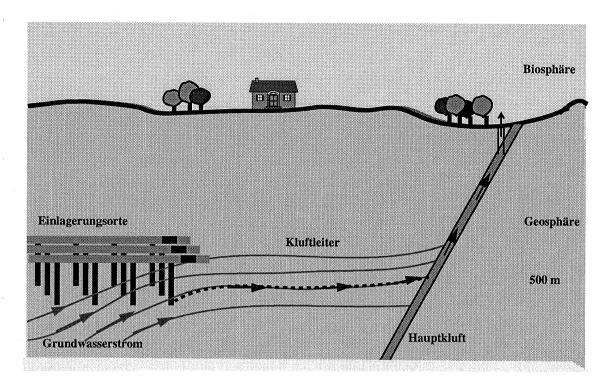


Abbildung 4: Project-90: Freisetzungsweg der Radionuklide für das Referenzszenario.

Zusätzlich zum Referenzfall wurden Konsequenzen für fünf weitere Szenarien ermittelt. Bei der Auswahl der Szenarien wurde nicht auf Vollständigkeit geachtet. Es wurden solche ausgewählt, von denen hohe Dosisraten erwartet wurden. Im einzelnen sind dies:

- Verwerfung
- Auswirkungen menschlicher Einwirkung
- Ausfall des Verschlusses
- Frühes Behälterversagen
- Spätes Behälterversagen

Zur Modellierung der einzelnen Szenarien wurden gegenüber dem Referenzfall entweder Parameter für bestimmte Effekte verändert oder vereinfachte Modelle zur Abschätzung einzelner Prozesse verwendet.

Der Eintritt des Szenarios Verwerfung wurde nach 5·10⁴ Jahren angenommen. Vier unterschiedliche Fälle wurden betrachtet. Im ersten Fall wurde eine erhöhte Grundwasserfließrate im Nahfeld angenommen. Im zweiten und dritten Fall wurde postuliert, daß die Grundwasserfließrate des Nahfelds erhöht ist und außerdem die Bentonitbarriere unwirksam geworden ist. Diese Variante wurde mit einem sehr vereinfachten Freisetzungsmodell modelliert, das nur die Auflösungsrate der Brennstoffmatrix, die Löslichkeitsgrenzen und den jährlichen Grundwasserfluß pro Behälter berücksichtigt. Im dritten Fall wird zusätzlich eine erhöhte Grundwasserfließge-

schwindigkeit im Fernfeld angenommen. Der vierte Fall entspricht weitgehend Fall 3. Es werden im Unterschied zu Fall 3 auf dem gesamten Ausbreitungsweg oxidierende Bedingungen angenommen.

Als Szenarien zur direkten menschlichen Einwirkung wurden zum einen eine Erhöhung der Grundwasserfließrate im Nah- und Fernfeld angenommen. Zum anderen wurde postuliert, daß menschliche Einwirkungen die chemischen Eigenschaften im Nah- und Fernfeld verändern. Dabei wurden für Bentonit und Granit konservative Sorptionswerte eingesetzt.

Der Ausfall des Endlagerverschlusses wurde im ersten Fall mit dem vereinfachten Freisetzungsmodell unter Vernachlässigung der Bentonitbarriere modelliert. Als Grundwasserfließraten wurden aber die des Referenzfalls zugrundegelegt. Zwei weitere Fälle betrachten einen erhöhten Grundwasserfluß und vernachlässigen das Fernfeld. In einem der Fälle wird zusätzlich im gesamten Gebiet oxidierende Bedingungen angenommen.

Bei den beiden Szenarien zum Behälterausfall wurde der Zeitpunkt des Behälterausfalls variiert und bei spätem Behälterausfall auch überprüft, welche Auswirkungen der Ausfall aller Behälter hat.

11.2 SAM

Bei einer ungestörten Entwicklung des Endlagers werden die verbliebenen Hohlräume durch die Konvergenz der Resthohlräume im Salz ca. 1000 Jahre nach Beendigung des Endlagerbetriebs verschlossen, so daß ein völliger Abschluß der Abfälle von der Biosphäre gewährleistet ist. Es können aber Störfälle auftreten. Als möglicher Störfall wird in der SAM-Studie sowohl ein unbegrenzter Laugenzutritt über den Hauptanhydrit als auch ein Laugenzutritt aus Laugeneinschlüssen mit begrenztem Volumen im umliegenden Wirtsgestein betrachtet. Es wird angenommen, daß der Laugenzutritt über den Hauptanhydrit in das Mittelfeld des Grubengebäudes frühestens nach 85 Jahren erfolgt. Der Laugenzutritt aus Einschlüssen erfolgt direkt nach Ende der Betriebsphase. Sobald die Resthohlräume der einzelnen Segmente vollständig mit Lauge gefüllt sind, wird die kontaminierte Lauge ausgepreßt. Nach Eintritt in das Deckgebirge werden die ausgepreßten Schadstoffe mit dem Grundwasserstrom in oberflächennahe Wässer transportiert, von wo sie in die Biosphäre gelangen und zu einer Dosisbelastung für den Menschen führen können. Das Szenario entspricht im wesentlichen dem in der PAGIS-Studie beschriebenen (Abbildung 2). Die Endlager unterscheiden sich allerdings in ihrer Struktur und weisen dementsprechend andere Eigenschaften, wie z. B. andere Temperaturverteilungen und Resthohlräume auf.

In der SAM-Studie, deren Hauptzweck der Vergleich verschiedener Einlagerungskonzepte war, wurden keine weiteren Szenarien betrachtet. Es wurde aber eine ausführliche probabilistische Analyse durchgeführt.

12 Modellansätze und Eingangsparameter

12.1 Modellansätze und Parameter im Nahbereich

12.1.1 Project-90

Alle im folgenden genannten Modelle und Daten beziehen sich auf den Referenzfall. Rechnungen und Abschätzungen zur Korrosion der verwendeten Kupferbehälter führen zu Behälterlebensdauern > 1·10⁶ Jahren. Aus diesem Grund wird nur der Ausfall eines einzelnen Behälters angenommen. Im Referenzfall wird eine Lebensdauer von 1·10⁴ Jahren unterstellt.

Es wird angenommen, daß Grundwasser sofort nach Ende der Betriebsphase Kontakt zu den Behältern hat. Direkt nach Behälterausfall setzt die Korrosion der Brennstoffmatrix ein. Die Mobilisierung der Radionuklide wird aus drei unterschiedlichen Komponenten des Brennstoffs modelliert.

Gasraum:

Die Mobilisierung erfolgt instantan.

- Korngrenzen:

Die Mobilisierung erfolgt mit einer Rate von 3.65·10⁻⁵ pro Jahr. Es wird eine Kinetik erster Ordnung angenommen. Die Mobilisierung aus der

Matrix ist nach 2.7·10⁴ Jahren beendet.

Matrix:

Die Radionuklide werden mit der Rate aus der Matrix freigesetzt, mit der die $\rm UO_2$ -Matrix oxidiert wird. Die Oxidation der $\rm UO_2$ -Matrix erfolgt durch $\rm \alpha$ -Radiolyse. Da die radiolytische Oxidation nur in wäßriger Lösung stattfindet, wird die Rate durch den Zeitpunkt des Behälterausfalls bestimmt. Bei einem Behälterausfall nach $\rm 10^4$ Jahren dauert die vollständige Mobilisierung aus der Matrix $\rm 4.10^4$ Jahre. Je später der Behälterausfall erfolgt, desto langsamer verläuft die Mobilisierung aus der Matrix, da durch den Zerfall die Radiolyserate mit der Zeit abnimmt.

Es wird angenommen, daß sich das Gesamtinventar eines Behälters wie folgt auf die drei Bereiche verteilt:

- 10% des eingelagerten I, Cs, und C sowie für 1% des Tc befinden sich im Gasraum.
- 90% des eingelagerten I, Cs, und C sowie für 10% des Tc befinden sich auf Korngrenzen.
- Alle übrigen Nuklide befinden sich ausschließlich in der Matrix.

Das Nahfeld besteht aus dem Behälter mit Brennstoffmatrix, der umgebenden 0.4 m dicken Bentonitschicht und einem daran anschließenden Teil der Granitmatrix mit einer Länge von wenigen Metern. In der Granitmatrix verlaufen parallele Klüfte senkrecht auf die Behälterachse zu. Die Klüfte haben einen Abstand von 1m zueinander und eine Höhe von 1mm.

Die aus der Abfallmatrix eines Behälters mobilisierten Radionuklide werden in ein geringes Volumen freigesetzt, das sich aus dem Resthohlraum der Abfallmatrix zu ca. 0.002 m³ ergibt. Von dort diffundieren die Nuklide durch den Bentonit. Für die Diffusion durch die Bentonitschicht wird eine radiale Symmetrie angenommen. Es wird für alle Elemente ein Diffusionskoeffizient von 4·10⁻¹¹ m²/s angenommen. Die Porosität des Bentonits beträgt 0.35 bei einer Dichte von 2050 kg/m³. Für nicht sorbierende Nuklide beträgt die Diffusionszeit durch den Bentonit ca. 100 Jahre. Nuklide, die an der Bentonitmatrix sorbieren, diffundieren entsprechend langsamer. Bei löslichkeitsbegrenzten Nukliden führt die Sorption dazu, daß der Anstieg auf die konstante maximale Konzentration am Übergang Bentonit/Granit viel länger dauert.

In der angrenzenden Granitzone findet der Nuklidtransport durch Diffusion in der Matrix und durch Advektion in den Klüften statt. Der Diffusionsprozeß durch die Granitmatrix wird mit einem zweidimensionalen Modell berechnet. Als Diffusionskonstante in der Granitmatrix wird 5·10⁻¹⁴ m²/s angenommen. Der Volumenstrom in den für den Transport zur Verfügung stehenden Klüften beträgt 6.5·10⁻⁴ m³/a.

Da im Bentonit und Granit wegen dort vorhandener elementarer Eisen-, und Eisen(II)-Bestandteile reduzierendes chemisches Milieu herrscht und durch α-Radiolyse oxidierende Substanzen im Wasser entstehen, wird die Ausbildung und Wanderung einer Redoxfront angenommen. Die durch α-Radiolyse gebildete Menge an oxidierenden Substanzen wird als Funktion der Zeit eingegeben. Eine weitere konservative Annahme ist, daß die gesamte Menge der gebildeten oxidierenden Substanzen sowohl für die Umwandlung der UO2-Matrix als auch für die Diffusion durch die Bentonit- und Granitmatrix zur Verfügung steht. Für die einzelnen Systemkomponenten Behälter, Bentonit und Gesteinsmatrix wird jeweils eine begrenzte Reduktionskapazität angenommen. Für die Kluftzonen wird postuliert, daß die Reduktionskapazität des Grundwassers unbegrenzt ist, dort also immer reduzierende Bedingungen herrschen. Weiter wird angenommen, daß alle Redoxreaktionen instantan ablaufen. Unter den angenommenen Bedingungen bewegt sich die Redoxfront in 3000 Jahren vom Behälterrand durch die Bentonitschicht. Der darauffolgende Transport in der Gesteinsmatrix ist aufgrund der geringeren Porosität wesentlich langsamer. Nach einer Zeit von 1·10⁶ Jahren ist die Redoxfront bei allen Parametervariationen maximal einen Meter in die Matrix vorgedrungen. Die Redoxverhältnisse haben wesentlichen Einfluß auf die Löslichkeiten und die Sorption der meisten Elemente im Nahbereich.

Die in Project-90 verwendeten elementspezifischen Löslichkeitsgrenzen sind in Tabelle 15 zusammengefaßt. In Tabelle 16 sind die Sorptionswerte am Bentonit und die Sorptionswerte an der Gesteinsmatrix für die Rechnungen zum Referenzfall für beide Materialien aufgelistet.

12.1.2 SAM

Der Laugenzutritt wird über den Hauptanhydrit mit einer unbegrenzten Laugenmenge und über Laugeneinschlüsse mit einem begrenzten Volumen modelliert. Der Zutritt über den Hauptanhydrit beginnt 85 Jahre nach Ende der Betriebsphase und führt über Zufahrtsstrecken in das Mittelfeld. Erst wenn alle Hohlräume des Mittelfelds mit Lauge gefüllt sind, wird Lauge in andere Segmente transportiert. Der Zutritt aus unentdeckten Laugennestern erfolgt direkt nach Ende der

	Project-90		SA	λM
Element	Oxidierend	Reduzierend	sauer	unbekannt
Selen	1.0·10 ⁻¹	3.0·10 ⁻⁸	1.0·10 ⁻⁴	1.0·10 ⁻⁴
Technetium	-	2.0·10 ⁻⁹	1.0·10 ⁻⁴	1.0·10 ⁻⁴
Zinn	1.0·10 ⁻⁹	1.0·10 ⁻¹¹	1.0·10 ⁻²	1.0·10 ⁻⁴
lod	-	-	-	-
Cäsium	-	-	-	-
Uran	1.0·10 ⁻⁵	4.0·10 ⁻⁸	1.0·10 ⁻⁴	1.0·10 ⁻⁴
Americium	4.0·10 ⁻⁷	4.0·10 ⁻⁷	1.0·10 ⁻⁴	1.0·10 ⁻⁵
Plutonium	4.0·10 ⁻⁹	4.0·10 ⁻⁸	1.0·10 ⁻⁶	1.0·10 ⁻⁷
Neptunium	1.5·10 ⁻³	4.0·10 ⁻⁹	1.0·10 ⁻⁵	1.0·10 ⁻⁶
Thorium	1.7·10 ⁻⁹	1.7·10 ⁻⁹	1.0·10 ⁻⁶	1.0·10 ⁻⁷
Protactinum	1.6·10 ⁻⁸	1.6·10 ⁻⁸	1.0·10 ⁻⁶	1.0·10 ⁻⁷

Tabelle 15: Bei Project-90 und SAM in Abhängigkeit des chemischen Milieus verwendete Löslichkeitsgrenzen.

Element	Bentonit	Granit
Selen	1.0·10 ⁻²	1.0·10 ⁻³
Technetium *)	2.0·10 ⁻⁴ (5.0·10 ⁻²)	2.0·10 ⁻⁴ (5.0·10 ⁻³)
Zinn	1.0·10 ⁻¹	1.0·10 ⁻²
lod	1.0·10 ⁻³	0
Cäsium	2.0 10 ⁻²	5.0·10 ⁻²
Radium	2.0·10 ⁻²	1.0·10 ⁻¹
Uran * ⁾	2.0·10 ⁻² (2.0·10 ⁻¹)	1.0·10 ⁻² (5.0·10 ⁺⁰)
Americium	2.0·10 ⁺⁰	5.0·10 ⁺⁰
Plutonium *)	1.0·10 ⁺⁰ (1.5·10 ⁺⁰)	3.0·10 ⁺⁰ (5.0·10 ⁺⁰)
Neptunium *)	1.0·10 ⁻¹ (1.0·10 ⁺⁰)	1.0·10 ⁻² (5.0·10 ⁺⁰)
Thorium	1.0·10 ⁺⁰	5.0·10 ⁺⁰
Protactinium	1.0·10 ⁺⁰	5.0·10 ⁺⁰

Tabelle 16: Bei Project-90 für die Bentonit- und Granitsorption verwendete K_d-Werte in [m³/kg].

*) Wenn sich die Werte für oxidierende und reduzierende Bedingungen unterscheiden, ist der Wert für reduzierende Bedingungen in Klammern dargestellt.

Betriebsphase. Das Volumen der Einschlüsse wurde im Referenzfall auf 45 m³ beschränkt. Bei der Konsequenzberechnung zum Szenario für das GBS-A Konzept mit best estimate Werten findet keine Nuklidfreisetzung statt, da aufgrund der Konvergenz des Salzgesteins die Verbindungswege zwischen Abfällen und Geosphäre geschlossen sind, bevor kontaminierte Lauge ausgetreten ist. Aus diesem Grund wird hier eine Rechnung mit erhöhten Laugenmengen von 500 m³ in den Laugeneinschlüssen sonst aber mit best estimate Werten betrachtet. Es werden sechs Laugeneinschlüsse in der Umgebung ausgewählter Einlagerungsstrecken und sechs Laugeneinschlüsse in der Umgebung ausgewählter Bohrlöcher angenommen.

Der Laugenzutritt in die Einlagerungsorte erfolgt ausschließlich aus den Laugennestern, da der Zulauf über den Anhydrit sehr lange dauert. Die Resthohlräume des Mittelfelds sind erst zu einem Zeitpunkt vollständig mit Lauge gefüllt, zu dem schon kontaminierte Lauge aus dem Einlagerungsort ausgepreßt wird. Nach 1100 Jahren sind ca. 300 m³ Lauge in die beiden Einlagerungsstrecken zugelaufen und davon knapp 200 m³ Lauge wieder ausgepreßt worden; nach 1.0·10⁶ Jahren sind 626 m³ Lauge zugelaufen.

Nach Laugenzutritt in die Abfallsegmente erfolgt die Nuklidmobilisierung. Die Geschwindigkeit der Mobilisierung ist abhängig von der Behälterlebensdauer und der Mobilisierungsrate aus der Brennstoffmatrix. Die Mobilisierung aus den HAW-Glaskokillen wird wie in der PAGIS-Studie modelliert und ist bereits im ersten Teil des Berichts beschrieben worden.

Die Mobilisierung der Radionuklide aus LWR-Brennelementen wird mit folgenden Modellen beschrieben. Die LWR-Brennelemente werden in Polluxbehältern gelagert. Für die Behälter wird eine exponentialverteilte Lebensdauer angenommen. Der Anteil der ausgefallenen Behälter $n_B(\tau)$ in Abhängigkeit der Zeit ist:

$$n_{B}(\tau) = 1 - \exp\left(-\frac{\tau}{\tau_{Bm}}\right) \tag{6}$$

Für die mittlere Behälterlebensdauer τ_{Bm} wird als best estimate Wert 500 Jahre eingesetzt. Das bedeutet, daß nach 350 Jahren 50% und nach 2300 Jahren 99% der Behälter ausgefallen sind.

Die Brennstoffmobilisierung erfolgt bei der SAM-Studie aus drei verschiedenen Teilbereichen:

- Metallteilen
- Gasraum in den Brennstäben
- Brennstoffpellets

Die elementspezifischen Mobilisierungsraten $\mu_{eff,x,i}(\tau)$ haben für alle drei Teilbereiche die folgende Form:

$$\mu_{\text{eff. x. i}}(\tau) = n_{\text{B}}(\tau) a_{\text{x. e(i)}} r_{\text{Mx}} \tag{7}$$

Dabei sind r_{Mx} die Mobilisierungsraten im x-ten Bereich und $a_{x,e(i)}$ der relative Anteil des Elements e(i) im Bereich x. Alle Raten r_{Mx} werden als konstant angenommen und haben die folgenden Werte:

Metallteile

 $r_{MM} = 0.02 a$

Gasraum

 $r_{MG} = 0.1 a$

- Brennstoffpellets

 $r_{MP} = 0.0016 a$

Die Mobilisierung aus dem Gasraum erfolgt also innerhalb von 10 Jahren nach Behälterausfall. Unter den Bedingungen des Referenzfall ist die Mobilisierung der Radionuklide ca. 1100 Jahre nach Zutritt der Lauge zu den Behältern abgeschlossen. Dabei wird für die relevanten Nuklide die in Tabelle 17 dargestellte Verteilung zwischen den drei Bereichen angenommen.

Elemente	relat	relativer Inventaranteil in [%]			
,	Gasraum	Korngrenze	Metallteile		
Kohlenstoff	0.0	0.0	100.0		
Selen	1.0	99.0	0.0		
Technetium	1.5	98.4	0.1		
Palladium, Zinn	1.5	98.5	0.0		
Uran, Aktiniden	0.8	99.2	0.0		

Tabelle 17: Elementspezifische Inventaranteile für ausgewählte Elemente in den einzelnen Bereichen eines LWR-Brennelementes.

Die Werte der elementspezifischen Löslichkeitsgrenzen sind Tabelle 16 zu entnehmen. Es wurden unterschiedliche Löslichkeitsgrenzen für verschiedene pH-Bedingungen angenommen. Dabei wurde abgeschätzt, daß der pH-Wert der Lauge in den Einlagerungsstrecken aufgrund des Gehalts an Magnesium im sauren Bereich liegt. In den Querschlägen, den Richtstrecken und im Mittelfeld fließen Laugen aus unterschiedlichen Segmenten zusammen. Hier wurden Werte für ein unbekanntes chemisches Milieu angenommen. In der Tabelle sind nur die Löslichkeitsgrenzen für diese beiden Bedingungen aufgeführt, da basische und neutrale pH-Bedingungen auf dem Ausbreitungsweg der LWR-Abfälle nicht auftreten.

Es wird angenommen, daß Sorption im Grubengebäude ausschließlich an Korrosionsprodukten des Zements stattfindet. In den LWR-Endlagerbereichen und den Ausbreitungswegen bis zur Geosphäre ist kein Zement vorhanden, so daß Sorption im Nahbereich der LWR-Abfälle nicht modelliert wird.

Die kontaminierte Lauge wird aufgrund der Gebirgskonvergenz aus den Einlagerungsstrecken ausgepreßt, sobald der gesamte noch vorhandene Hohlraum der Strecken mit Lauge gefüllt ist. Sie wird durch weitere Segmente bis in das Mittelfeld transportiert und von dort in das darüber-

liegende Deckgebirge ausgepreßt. Auf dem gesamten Transportweg besonders aber im Mittelfeld findet eine Verdünnung der kontaminierten Lauge mit unkontaminierter Lauge statt.

Die im Nahfeld beider Studien verwendeten wesentlichen Effekte und Modellansätze sind in Tabelle 18 aufgelistet.

Project-90	SAM
Grundwasserstrom	Laugenzutritt
Lebensdauer der Behälter	- über den Anhydrit - aus Laugennestern
Auslaugung der Brennstoffmatrix	Lebensdauer der Pollux-Behälter
Ausbildung einer Redoxfront	Temperaturverläufe und Temperaturgradien-
Diffusion durch die Bentonitschicht	ten im Endlager
Elementspezifische Löslichkeitsgrenzen	Strömungswiderstände
Elementspezifische Sorption an Bentonit und	Auslaugung der Brennstoffmatrix
Gesteinsmatrix	Elementspezifische Löslichkeitsgrenzen
Radioaktiver Zerfall	Konvergenz des Gebirges
	Nuklidtransport durch Diffusion, Konvektion und Advektion durch Konvergenz
	Radioaktiver Zerfall

Tabelle 18: Berücksichtigte Effekte im Nahbereich.

12.2 Modellansätze und Parameter im Fernfeld

12.2.1 Project-90

Der Transport im Fernfeld wird mit einem eindimensionalen Transportcode modelliert. Es wird ein Transport durch parallele planare Klüfte mit einer Klufthöhe von 10⁻⁴ m angenommen. Die Porosität des geklüfteten Gesteins beträgt 10⁻⁴ was einem Kluftabstand von 1 m entspricht. Die Länge des Transportwegs beträgt 200 m. Wenn man als Querschnittsfläche des Endlagers 1.0·10⁶ m² zugrunde legt, erhält man für den Referenzfall einen Volumenstrom von 100 m³/a. Daraus ergibt sich eine Fluidtransportzeit von 200 Jahren. Als Referenzwert für die Dispersionslänge wird 50 m angenommen.

Bei den betrachteten Szenarien wird nur der Ausfall eines einzelnen Behälters angenommen. Die zugehörige Fläche, die vom Grundwasser durchflossen wird, beträgt 6.5 m². Das entspricht einer jährlich für die Lösung der Nuklide zur Verfügung stehende Wassermenge von 0.65 l. Im gesamten Sicherheitsbericht werden keine Nuklidkonzentrationen sondern ausschließlich Freisetzungsraten angegeben. Um diese besser mit den Daten der SAM-Studie und der im ersten Teil des Berichts untersuchten Studien vergleichen zu können, werden die Freisetzungsraten in Konzentrationen umgerechnet.

Im Fernfeld errechnet sich der Verdünnungsfaktor R_{P90} am Übergang Geosphäre/Biosphäre als Quotient aus Wasserneubildungsrate des Brunnens \dot{v}_B durch den Wasserfluß pro Abfallbehälter im Endlager \dot{v}_A :

$$R_{p90} = \frac{\dot{v}_B}{\dot{v}_A}. \tag{8}$$

Mit der Wasserneubildungsrate $\dot{v}_B=4.5\cdot 10^3$ m³/a und dem Wasserfluß pro Behälter $\dot{v}_A=6.5\cdot 10^{-4}$ m³/a ergibt sich der Reduktionsfaktor zu ca. $7\cdot 10^6$. Der Wert dieses Reduktionsfaktors ist für alle Nuklide identisch.

Matrixdiffusion wird senkrecht zur Transportrichtung in die Gesteinsmatrix angenommen. Als Parameter für die Matrixdiffusion wurden die Matrixporosität Θ_{M} von $1\cdot 10^{-3}$, die Diffusion in die Matrix $\Theta_{M}D_{M}$ von $5\cdot 10^{-14}$ m²/s, die Eindringtiefe von 0.1 m und ein Faktor von 0.01 m⁻¹, der ein Maß für die in der Kluft zur Verfügung stehende Matrixoberfläche darstellt, durch die die Diffusion erfolgt. Als Sorptionswerte werden die im Nahbereich für Granit verwendeten K_{d} -Werte aus Tabelle 16 eingesetzt. Da die Redoxfront in $1\cdot 10^{6}$ Jahren nur ca. 1 m weit in die Granitmatrix gewandert ist, werden für den gesamten Ausbreitungsweg im Fernfeld reduzierende Bedingungen angenommen.

12.2.2 SAM

Die Modellierung des Geosphärentransports erfolgt bei der SAM-Studie analog zur PAGIS-Studie. Der Nuklidtransport findet im porösen Medium statt. Er wird mit einem eindimensionalen Transportprogramm modelliert. Für den Transportweg wird eine homogene Strömungsröhre mit konstantem Querschnitt angenommen. Der Transportweg ist 9300 m lang bei einem Querschnitt von $3.69\cdot10^{+4}$ m². Der Volumenstrom beträgt $4.8\cdot10^{+4}$ m³/a. Daraus ergibt sich eine Transportzeit von 1450 Jahren. Als Dispersionslänge wurde 65 m gewählt. Die Porosität beträgt 0.2, die Dichte des Gesteins 2500 kg/m³. Es wird lineare Sorption nach dem K_d -Konzept an der Oberfläche der Gesteinsmatrix angenommen. Die verwendeten K_d -Werte sind in Tabelle 5 im ersten Teil des Berichts angegeben.

Beim Übergang der aus dem Endlager ausgepreßten kontaminierten Lauge in den Volumenstrom des Deckgebirges ergibt sich ein Verdünnungsfaktor R_{SAM} . Dieser entspricht dem Verhältnis von Volumenstrom im Deckgebirge \dot{v}_{D} zu Laugenstrom aus dem Grubengebäude \dot{v}_{L} .

$$R_{SAM} = \frac{v_D}{\dot{v}_L} \tag{9}$$

Der Laugenstrom aus dem Grubengebäude nimmt mit zunehmender Zeit ab. Zur Bestimmung des Verdünnungsfaktors wurde der Laugenstrom zum Zeitpunkt der maximalen Nuklidfreisetzung gewählt. Bei der SAM-Studie liegt dieser Laugenstrom für alle Nuklide im Mittel bei 0.5 m³/a, woraus ein Verdünnungsfaktor von ca. 1·10⁵ resultiert.

Die im Fernfeld beider Studien verwendeten Effekte und Modellansätze sind in Tabelle 19 zusammengestellt.

Project-90	SA	М
1-dimensionaler Transport im geklüfteten Medium	1-dimensionaler Transport im porösen Medium	
Advektion	Advektion	
Diffusion und Dispersion	Diffusion und Dispersion	
Matrixdiffusion und Sorption	Lineare Sorption	
Verdünnung	Verdünnung	
Radioaktiver Zerfall	Radioaktiver Zerfall	

Tabelle 19: Berücksichtigte Effekte im Fernfeld.

12.3 Modellansätze und Parameter in der Biosphäre

Bei Project-90 werden zwei mögliche Ausbreitungspfade in der Biosphäre betrachtet, der Radionuklidfluß in einen Brunnen zur Trinkwassergewinnung und der Radionuklidfluß in einen See. Für beide Szenarien wurden Dosiskonversionsfaktoren hergeleitet. Mit den getroffenen Annahmen liegen die Dosiskonversionsfaktoren für den Ausbreitungsweg über den Brunnen um mehrere Größenordnungen höher als die bei Ausbreitung über einen See. Für die Gegenüberstellung der Studien wird nur der zu erheblich höheren Dosisbelastungen führende Brunnenpfad betrachtet. In der Studie Project-90 ist Aktivitätsfluß in [Bq/a] aus der Geosphäre die Eingangsgröße für die Biosphärenberechnung. Dementsprechend sind die Dosiskonversionsfaktoren F^o_{D,P} bei Project-90 in [Sv/a pro Bq/a] angegeben. Zum Vergleich beider Werte wurden die Project-90-Werte umgerechnet. Der Umrechnungsfaktor entspricht der Wasserneubildungsrate \dot{Q}_B des Brunnens. Der neue Dosiskonversionsfaktor $F_{D,P}$ wird in der Einheit [Sv/a pro Bq/l] angegeben.

$$F_{D,P} = F_{D,P}^{o} \dot{Q}_{B}$$
 (10)

Der Wert der Wasserneubildungsrate $\dot{Q}_{\rm B}$ beträgt 4.5·10⁺³ m³/a. Alle Werte sind [5] entnommen. Die so errechneten neuen Dosiskonversionsfaktoren sind für relevante Nuklide in Tabelle 20 aufgeführt. Für alle hier ausgewählten Nuklide aus Zerfallsketten liegen die Dosiskonversi-

Nuklid	F _{D,P} für Spaltprodukte		Nuklid	F _{D,P} für Zerfa	F _{D,P} für Zerfallsketten	
Nullia	Project-90 *)	SAM	Nukiiu	Project-90 *)	SAM	
Se-79	1.4·10 ⁻⁶	6.1·10 ⁻⁷	Np-237	6.7·10 ⁻⁴	7.5·10 ⁻⁴	
Tc-99	2.1·10 ⁻⁷	6.3·10 ⁻⁷	U-233	4.3·10 ⁻⁵	4.7·10 ⁻⁵	
Pd-107	-	5.4·10 ⁻⁸	U-238	4.0·10 ⁻⁵	4.2·10 ⁻⁵	
Sn-126	3.1·10 ⁻⁶	4.6·10 ⁻⁶	U-234	4.2·10 ⁻⁵	4.6·10 ⁻⁵	
l-129	4.0·10 ⁻⁵	2.1·10 ⁻⁴	Pa-231	1.8·10 ⁻³	2.0·10 ⁻³	
Cs-135	1.0·10 ⁻⁶	3.7·10 ⁻⁶	Th-232	4.5·10 ⁻⁴	5.4·10 ⁻⁴	

Tabelle 20: In Project-90 und SAM verwendete Dosiskonversionsfaktoren in [Sv/a pro Bq/l] für ausgewählte Spaltprodukte und Nuklide aus den Zerfallsketten. *) Die Werte für Project-90 wurden wie im Text beschrieben umgerechnet.

onsfaktoren bei beiden Studien in der gleichen Größenordnung. Bei den Spaltprodukten sind die Abweichungen zwischen beiden Studien etwas größer. Die Werte liegen mit Ausnahme des Se-79 bei der SAM-Studie um einen Faktor zwei bis maximal vier höher.

13 Freisetzung aus dem Endlager

Mit Ausnahme von C-14, Cs-135 und I-129 erreichen alle relevanten Nuklide in beiden Studien die Löslichkeitsgrenzen im Nahbereich. Zum Vergleich der Barrierewirkungen von Project-90 und SAM wurden die kumulierten relativen freigesetzten Mengen der einzelnen Nuklide nach 1.0·10⁶ Jahren bestimmt und in Tabelle 21 dargestellt. Die kursivgedruckten Werte weisen darauf hin, daß Löslichkeitsgrenzen dieser Nuklide erreicht werden. In den Berichten der Project-90 Studie sind keine Angaben zu den kumulierten freigesetzten Mengen enthalten. Die Werte wurden deshalb aus den graphischen Abbildungen der Freisetzungskurven abgeschätzt.

Nuklid	Project 90	SAM	1
Nukiiu	Endlager	Einlagerungsstrecken	Mittelfeld
C-14	8·10 ⁻⁹	5.0·10 ⁻¹	1.7·10 ⁻⁴
Se-79	2·10 ⁻⁵	7.2·10 ⁻¹	7.4·10 ⁻⁴
Tc-99	4·10 ⁻⁸	2.2·10 ⁻²	2.4·10 ⁻⁵
Pd-107	-	9.9·10 ⁻¹	1.1·10 ⁻³
Sn-126	6 10 ⁻⁹	7.7·10 ⁻¹	1.2·10 ⁻³
I-129	2·10 ⁻⁴	9.5·10 ⁻¹	7.2·10 ⁻³
Cs-135	6·10 ⁻⁵	9.4·10 ⁻¹	2.5·10 ⁻³
Np-237	4·10 ⁻⁹	2.0·10 ⁻⁴	3.0·10 ⁻⁶

Tabelle 21: Kumulierte relative Freisetzungsmengen ausgewählter Nuklide nach 1.0·10⁶ Jahren. Die Fälle, bei denen die Löslichkeitsgrenze erreicht werden, sind kursiv gedruckt. Die relativen Freisetzungsmengen der Einlagerungsstrecken beziehen sich auf deren Inventar.

Die kumulierten relativen Freisetzungsmengen liegen bei der Project-90 Studie für alle Nuklide deutlich unterhalb der in SAM auftretenden. Hauptgrund dafür ist der wesentlich stärkere Isolationseffekt. Bei der Project-90 Studie wird angenommen, daß nur einer von 5000 eingelagerten Behältern innerhalb des betrachteten Zeitraums von 1·10⁶ Jahren ausfällt, während bei SAM eine Freisetzung aus 1/70 des LWR-Inventars erfolgt.

I-129, das weder löslichkeitsbegrenzt ist noch stark sorbiert, wird bei Project-90 nahezu vollständig aus einem Behälter freigesetzt. Die reduzierte Freisetzung von 1/5000 wird ausschließlich durch die Behälterbarriere hervorgerufen. Für das ebenfalls nicht löslichkeitsbegrenzte Cs-135 findet eine zusätzliche Reduktion durch eine etwas stärkere Sorption am Bentonit und an der Granitmatrix statt. Die Freisetzung ist nach 1·10⁶ Jahren noch nicht vollständig erfolgt. Bei C-14 tritt aufgrund seiner kurzen Halbwertszeit von 5.7·10³ Jahren eine erhebliche Reduktion durch

radioaktiven Zerfall ein. Alle anderen Nuklide sind löslichkeitsbegrenzt. Das führt im wesentlichen dazu, daß deren Freisetzung deutlich länger dauert und innerhalb von 10⁶ Jahren nur ein entsprechend kleiner Teil dieser Nuklide freigesetzt wurde.

Für die SAM-Studie werden in Tabelle 21 Ergebnisse aus zwei unterschiedlichen Segmenten des Grubengebäudes angegeben; zwei Einlagerungsstrecken, aus denen die Nuklide mobilisiert werden, und das Mittelfeld, aus dem die Freisetzung in das Fernfeld erfolgt. Wenn die Werte für das Mittelfeld fettgedruckt sind, bedeutet das, daß die Löslichkeitsgrenzen in Segmenten außerhalb der Einlagerungsstrecken erreicht werden. Das kann der Fall sein, wenn die Löslichkeitsgrenzen für unbekanntes chemisches Milieu der Lauge wie in der Richtstrecke, Querschlag und Mittelfeld niedriger sind als in der Einlagerungsstrecke. Auch bei der SAM-Studie besteht ein wesentlicher Rückhalteeffekt darin, daß eine Freisetzung ausschließlich aus dem LWR-Feld aus der ersten Abteilung erfolgt, da die Verbindungswege zum HAW- und MAW-Feld sowie zu den übrigen sechs Abteilungen aufgrund der Konvergenz des Gebirges verschlossen sind bevor Lauge eindringen kann, bzw. bevor kontaminierte Lauge ausgepreßt wird. Aus dem LWR-Feld der ersten Abteilung erfolgt ausschließlich eine Freisetzung aus zwei von 20 Strecken, da die übrigen 18 Strecken verschlossen sind, bevor Lauge eindringen kann. Dementsprechend kann also nur 1/70 des LWR-Inventars überhaupt freigesetzt werden.

Für die Nuklide Cs-135 und I-129, die weder merklich zerfallen noch die Löslichkeitsgrenzen erreichen, wird die geringe relative Freisetzung aus dem Grubengebäude hauptsächlich durch die oben beschriebene Isolation der Abfälle verursacht. Aus den beiden offenen Einlagerungsstrecken findet eine fast vollständige Freisetzung statt. Die kumulierte relative Freisetzung liegt bei 95%. Der Anteil, der aus dem Mittelfeld freigesetzt wurde, liegt dagegen für lod bei 0.72%, für Cs-135 bei 0.25%, und entspricht etwa dem Abfallanteil der beiden Einlagerungsstrecken bezogen auf das Gesamtinventar beider Nuklide. Ein zusätzlicher Effekt ist, daß nicht die gesamte Menge der kontaminierten Lauge aus dem Grubengebäude ausgepreßt wird. Der Unterschied zwischen I-129 und Cs-135 ist auf deren unterschiedlichen LWR-Anteile am Gesamtinventar zurückzuführen. 87.5% des I-129 Inventars aber nur 31.9% des gesamten Cs-135 Inventars befinden sich in den LWR-Abfällen.

Die Barrierewirkung im Nahfeld ist in der SAM-Studie, wie schon in der PAGIS-Studie, bei Tc-99 und Np-237 am stärksten, was durch die im Verhältnis zum Inventar niedrigen Löslichkeitsgrenzen dieser beiden Nuklide bedingt ist. Bei Np-237 tritt während des Transports vom Bohrloch zum Mittelfeld noch ein zusätzlicher Aufbaueffekt durch Zerfall des Mutternuklids Am-241 auf. Aus diesem Grund werden Löslichkeitsgrenzen in mehreren Segmenten des Endlagerbereichs überschritten.

14 Dosisbelastung in der Biosphäre

Im hier untersuchten Referenzfall der Studie Project-90 wird die maximale Dosisrate von 3·10⁻⁷ Sv/a von I-129 bestimmt. Die drei nächstwichtigen Nuklide, mit einer um zwei Größenordnungen niedrigeren maximalen Dosisrate sind Se-79, Cs-135 und Pa-231.

	Project-90			SAM	
Nuklid	max. Dosis- rate [Sv/a]	Zeitpunkt	Nuklid	max. Dosis- rate [Sv/a]	Zeitpunkt
I-129	3·10 ⁻⁷	3·10 ⁴	l-129	7·10 ⁻⁶	2·10 ⁴
Pa-231	5·10 ⁻⁹	1·10 ⁶	Cs-135	1.10 ⁻⁶	3·10 ⁴
Cs-135	1·10 ⁻⁹	4·10 ⁵	Np-237	1.10 ⁻⁷	4·10 ⁵
Se-79	1·10 ⁻⁹	5·10 ⁵	Se-79	1.10 ⁻⁷	2·10 ⁴
Th-230	3·10 ⁻¹¹	7·10 ⁵	Tc-99	6·10 ⁻⁸	2·10 ⁵
Pu-242*)	2·10 ⁻¹¹	1·10 ⁶	U-233	1.10 ⁻⁸	5·10 ⁴
Np-237*)	1.10 ⁻¹¹	1·10 ⁶	Ra-226	9·10 ⁻⁹	8·10 ⁴

Tabelle 22: Maximale Dosisraten der relevanten Nuklide in den Referenzfällen der Studien Project-90 und SAM. *) Das Dosismaximum wurde nach 10⁶ Jahren noch nicht erreicht.

Wiederum zwei Größenordnungen niedrigere maximale Dosisraten weisen die Nuklide Th-230, Pu-242 und Np-237 auf. Die Werte sind in Tabelle 22 zusammengefaßt. In den verschiedenen Parametervariationsrechnungen liefern ebenfalls die genannten Nuklide die wesentlichen Beiträge.

In der hier betrachteten Rechnung der SAM-Studie wird die maximale Dosisrate von 7.6·10⁻⁶ Sv/a im wesentlichen durch die Nuklide I-129 und Cs-135 bestimmt. Die nächstfolgenden Nuklide in der Reihenfolge des Maximums ihrer Dosisrate sind Np-237, Se-79, Tc-99, U-233 und Ra-226. Die Relevanz der Nuklide in der ausgewählten deterministischen Rechnung stimmt weitgehend mit Ergebnissen aus hier nicht betrachteten probabilistischen Rechnungen überein.

15 Vergleich der Wirksamkeit von Teilsystemen am Verhalten von Nukliden

Für die Dosisrate in der Biosphäre sind die Konzentrationen der Nuklide entscheidend. Aus diesem Grund wurden zur weitergehenden Bewertung der Wirksamkeit einzelner Effekte die maximalen Konzentrationen der Nuklide an entsprechenden Stellen des Ausbreitungswegs miteinander verglichen. Für diese Gegenüberstellung der Barriereneffekte wurden die in beiden Studien relevanten Nuklide I-129, Cs-135, Np-237 und Tc-99 ausgewählt. Diese Nuklide stehen auch repräsentativ für Gruppen mit unterschiedliche Elementeigenschaften.

Gruppe 1 nicht löslichkeitsbegrenzte und schwach sorbierende, wie I-129 und Cs-135,

Gruppe 2 löslichkeitsbegrenzte und schwach sorbierende, wie Tc-99 sowie

Gruppe 3 löslichkeitsbegrenzte und stark sorbierende wie Np-237.

Die Nuklide I-129, Cs-135 und Tc-99 sind Spaltprodukte. Die Barriereeffekte können also unabhängig von Aufbaueffekten durch Zerfall der Mutternuklide untersucht werden. Bei Neptunium beeinflußt der Zerfall von Am-241 die maximale Konzentration nur im Grubengebäude, im Fernfeld verhält sich Np-237 wie ein Spaltprodukt. Die Halbwertszeiten und die Freisetzungsdauern der relevanten Nuklide aus dem Nahbereich sind in Tabelle 23 aufgeführt.

Nuklid	+ [a]	Freisetzungsdauer [a]		
Nukiid	t _{1/2} [a]	Project-90 *)	SAM * ⁾	
Tc-99	2.1·10 ⁵	>1·10 ⁶		
I-129	1.5·10 ⁷	1.5·10 ⁵		
Cs-135	2.3·10 ⁶	>1.10 ⁶	1.0·10 ⁵	
Np-237	2.1·10 ⁶	>1·10 ⁶		

Tabelle 23: Halbwertszeiten und Freisetzungsdauern in den beiden Studien für ausgewählte Nuklide. *) Als Freisetzungsdauer wurde die Breite der Freisetzungskurve bei einem Zehntel der maximalen Freisetzung aus dem Nahbereich gewählt.

Da bei der SAM-Studie das gleiche Deckgebirgsmodell verwendet wurde wie in der PAGIS-Studie, unterscheiden sich die Barriereeffekte im Fernfeld kaum voneinander. Wie bereits in Kapitel 7 beschrieben, ist das Verhältnis von Freisetzungsdauer zu Nuklidtransportzeit ausschlaggebend dafür, ob eine Konzentrationsreduktion im Fernfeld durch longitudinale Dispersion erfolgt.

15.1 Wirksamkeit der Teilsysteme hinsichtlich I-129

Die am Übergang Nahbereich/Fernfeld auftretenden maximalen Konzentrationen und die wesentlichen Effekte, die zur Konzentrationsreduktion führen, sind in Tabelle 24 zusammengefaßt.

	Project-90	SAM	
LWR-Inventar [mol]	1.3·10 ⁴	2.0·10 ⁴	
Rückhaltung im Nahbereich			
nichtisoliertes Inventar [mol]	2.6	280	
Löslichkeitsgrenze [mol/l] c _{max} (Abfallbehälter) [mol/l] c _{max} (Nah-/Fernfeld) [mol/l]	- 7·10 ⁻⁵	- 5·10 ⁻³ 8·10 ⁻⁶	
Konzentrationsverringerung im Fernfeld			
Reduktion durch - Verdünnung - Dispersion Gesamtreduktionsfaktor	7·10 ⁶ - 7·10 ⁶	2·10 ⁵ - 2·10 ⁵	
	ition in der Biosphäre	2.10	
c _{max} (Biosphäre) [mol/l]	9·10 ⁻¹¹	4·10 ⁻¹¹	
DKF [(Sv/a):(mol/l)]	3.4·10 ⁴	1.7·10 ⁴	
Dosis in [Sv/a]	3⋅10 ⁻⁷	7·10 ⁻⁶	
Zeitpunkt [Jahre]	3·10 ⁴	2·10 ⁴	

Tabelle 24: Reduktion der maximalen Konzentrationen während des Ausbreitungswegs und resultierende Dosis in der Biosphäre für I-129.

Das nichtisolierte Inventar ist bei Project-90 zwei Größenordnungen niedriger als bei SAM. Die Maximalkonzentration am Übergang Nahbereich/Fernfeld ergibt sich bei Project-90 aus der Mobilisierungsrate und der pro Jahr durch das Endlager fließenden Wassermenge.

Bei der SAM-Studie ergibt sich die Konzentration in den Einlagerungsstrecken aus der bis zu dem betrachteten Zeitpunkt freigesetzten Nuklidmenge und dem Volumen der Lauge. Die maximale Konzentration in den Einlagerungsstrecken beträgt ca. 5·10⁻³ mol/l. Die kontaminierte Lauge wird aus den Einlagerungsstrecken ausgepreßt und mit nicht kontaminierter Lauge aus anderen Bereichen des Grubengebäudes verdünnt. Das führt zu einer Reduktion der Iod-Konzentration im Nahbereich um einen Faktor 650. Dieser Verdünnungseffekt bewirkt, daß sich trotz des viel höheren nichtisolierten Inventars am Übergang Nahbereich/Fernfeld mit 8·10⁻⁶ mol/l eine um eine Größenordnung niedrigere Konzentration als bei Project-90 einstellt.

Bei Project-90 tritt für I-129 im Fernfeld neben der Verdünnung mit Grundwasser von 7·10⁶ aufgrund der schwachen Sorption und der kurzen Transportzeit von 100 Jahren kein weiterer Reduktionseffekt im Fernfeld auf.

Bei der Studie SAM ergibt sich der Verdünnungseffekt durch den Volumenstrom im Deckgebirge, zu 1.0·10⁵. In diesem Reduktionsfaktor ist der Beitrag der transversalen Dispersion eingeschlossen. Der Transport durch das Deckgebirge dauert ca. 1·10⁴ Jahre. Eine merkliche Konzentrationsabnahme durch radioaktiven Zerfall tritt nicht auf, da die Transportzeit von I-129 im Verhältnis

zu seiner Halbwertszeit sehr klein ist. Eine Verdünnung durch longitudinale Dispersion tritt ebenfalls nicht auf, da die Freisetzungsdauer von I-129 groß gegenüber der Transportzeit ist, die Freisetzung also einer konstanten Quelle entspricht. Das Verhältnis von Freisetzungsdauer zu Schadstofftransportzeit für I-129 beträgt ca. 6.

Berücksichtigt man den um fast eine Größenordnung höheren Dosiskonversionsfaktor bei SAM, so ergibt sich bei SAM eine um den Faktor 20 höhere maximale Dosisrate.

15.2 Wirksamkeit der Teilsysteme hinsichtlich Cs-135

Cs-135 verhält sich sehr ähnlich wie I-129. Deswegen sollen an dieser Stelle nur die Unterschiede zum I-129 herausgearbeitet werden. Die am Übergang Nahbereich/Fernfeld auftretenden maximalen Konzentrationen von Cs-135 und die wesentlichen Effekte, die zur Konzentrationsreduktion führen sind in Tabelle 25 zusammengefaßt.

·	Project-90	SAM		
LWR-Inventar	1.3·10 ⁴	3.2·10 ⁴		
Rückhaltu	Rückhaltung im Nahbereich			
nichtisoliertes Inventar [mol]	2.6 mol	590 mol		
Löslichkeitsgrenze c _{max} (Abfallbehälter) [mol/l] c _{max} (Nah-/Fernfeld) [mol/l]	- 2·10 ⁻⁶	- 7·10 ⁻³ 1·10 ⁻⁵		
Konzentrationsvo	Konzentrationsverringerung im Fernfeld			
Reduktion durch - Verdünnung - Dispersion Gesamt-Reduktionsfaktor	7·10 ⁶	2·10 ⁵		
		2.10		
Strahlenexposition in der Biosphäre				
c _{max} (Biosphäre) [mol/l]	2·10 ⁻¹³	5·10 ⁻¹¹		
DKF [(Sv/a):(mol/l)]	5.7·10 ³	2.1·10 ⁴		
Dosis in [Sv/a]	1⋅10 ⁻⁹	1·10 ⁻⁶		
Zeitpunkt [Jahre]	3·10 ⁴	2·10 ⁴		

Tabelle 25: Reduktion der maximalen Konzentrationen während des Ausbreitungswegs und resultierende maximale Dosisrate in der Biosphäre für Cs-135.

Bei Project-90 ist die Cs-135 Konzentration am Übergang Nahbereich/Fernfeld gegenüber der des I-129 mit 2·10⁻⁶ mol/l um einen Faktor 35 erniedrigt. Dieser Effekt wird durch die stärkere Sorption von Cs-135 am Bentonit und an der Granitmatrix im Nahbereich hervorgerufen. Die

Sorption bewirkt eine Verzögerung der Freisetzung aus dem Nahbereich. Die Freisetzungsdauer aus dem Behälter ist in diesem Fall klein gegenüber der Diffusionszeit durch die Bentonit- und Granitmatrix, was dazu führt, daß sich kein stationärer Zustand während des Diffusionsprozesses einstellt und die maximale Konzentration während des Transports durch den Bentonit reduziert wird. Bei der SAM-Studie ist die Cs-135 Konzentration mit 1·10⁻⁵ mol/l gegenüber I-129 aufgrund des etwas höheren Inventars geringfügig erhöht.

Die Konzentrationsreduktion in der Geosphäre entspricht bei beiden Studien der des I-129. Mit einem ca. vier mal höheren Dosiskonversionsfaktor des Cs-135 in der SAM-Studie ergibt sich eine 500mal höhere maximale Dosisrate gegenüber Project-90.

15.3 Wirksamkeit der Teilsysteme hinsichtlich Tc-99

Die am Übergang Nahbereich/Fernfeld auftretenden maximalen Konzentrationen von Tc-99 und die wesentlichen Effekte, die zur Konzentrationsreduktion führen sind in Tabelle 26 zusammengefaßt.

	Project-90	SAM		
LWR-Inventar	6.6·10 ⁴	1.0·10 ⁵		
Nahbereich				
nichtisoliertes Inventar [mol]	13.2	1440		
Löslichkeitsgrenze [mol/l] c _{max} (Abfallbehälter) [mol/l] c _{max} (Nah-/Fernfeld) [mol/l]	2·10 ⁻⁹ 2·10 ⁻⁹ 2·10 ⁻⁹	1·10 ⁻⁴ 1·10 ⁻⁴ 3·10 ⁻⁷		
	Fernfeld			
Reduktion durch - Verdünnung - Dispersion Gesamt-Reduktionsfaktor	7·10 ⁶ 7·10 ⁶	1·10 ⁵ 2.5 2.5·10 ⁵		
Biosphäre				
c _{max} (Biosphäre) [mol/l]	2.5·10 ⁻¹⁶	1.5·10 ⁻¹²		
DKF [(Sv/a):(mol/l)]	1.3·10 ⁴	3.9·10 ⁴		
Dosis in [Sv/a]	3·10 ⁻¹²	6·10 ⁻⁸		
Zeitpunkt [Jahre]	1 10 ⁶	1·10 ⁵		

Tabelle 26: Reduktion der maximalen Konzentrationen während des Ausbreitungswegs und resultierende Dosis in der Biosphäre für Tc-99.

Bei Tc-99 werden in beiden Studien Löslichkeitsgrenzen erreicht. Die Löslichkeitsgrenzen liegen bei der Project-90 Studie um mehr als 4 Größenordnungen niedriger als bei der SAM-Studie. Bei Project 90 entspricht die maximale Konzentration am Übergang Nahbereich/Fernfeld der Löslichkeitsgrenze von 2·10⁻⁹ mol/l. Technetium sorbiert relativ schwach am Bentonit und an der Granitmatrix. Aufgrund der niedrigen Löslichkeitsgrenzen ergibt sich eine sehr lange Freisetzungsdauer, die einer konstanten Quelle entspricht. Der Transport durch Bentonit führt deswegen nicht zu einer Konzentrationsabnahme im Nahfeld.

Bei SAM wird die maximale Konzentration im Einlagerungsort von 1·10⁻⁴ mol/l im Nahbereich des Salzendlagers durch nicht kontaminierte Lauge auf 3·10⁻⁷ mol/l verdünnt. Trotz des hohen Inventars führen die Löslichkeitsgrenzen bei Tc-99 also zu deutlich niedrigeren Konzentrationen als bei I-129 und Cs-135.

Im Fernfeld der Project 90 Studie wird die Tc-99 Konzentration ausschließlich durch Verdünnung mit Grundwasser um den Faktor 7·10⁶ reduziert. Da Tc-99 am Übergang Bentonit/Granit die Löslichkeitsgrenzen erreicht, liegt dort praktisch eine konstante Technetium-Quelle vor. Aufgrund der kurzen Transportzeit hat die Sorption keine Auswirkungen auf die maximale Konzentration. Bei SAM beträgt die Verdünnung durch den Volumenstrom im Deckgebirge 1·10⁵. Zusätzlich tritt aber bei Tc-99 eine Reduktion von 2.5 durch longitudinale Dispersion auf, da bei Tc-99 das Verhältnis von Freisetzungsdauer zu Transportzeit mit ca. 0.5 entsprechend klein ist. Mit dem dreifach höheren Dosiskonversionsfaktor in der SAM-Studie erklärt sich die Differenz von vier Größenordnungen in den maximalen Dosisraten beider Studien.

15.4 Wirksamkeit der Teilsysteme hinsichtlich Np-237

Die am Übergang Nahbereich/Fernfeld auftretenden maximalen Konzentrationen von Np-237 und die wesentlichen Effekte, die zur Konzentrationsreduktion führen, sind in Tabelle 27 zusammengefaßt.

In der Project-90 Studie migriert Np-237 aufgrund des großen Unterschieds der Löslichkeiten im oxidierenden und reduzierenden Milieu durch den Bentonit mit der Redoxfront bis zum Übergang in den Granit. In der Kluft wird zu jedem Zeitpunkt reduzierendes Milieu angenommen, so daß Np-237 am Übergang Bentonit/Granit ausfällt und dort praktisch eine konstante Quelle bildet. Aufgrund des sehr hohen Sorptionswerts im Granit von 5 m³/kg tritt zusätzlich ein Effekt durch Matrixdiffusion und Sorption im Nahbereich des Granits auf. Das führt dazu, daß der stationäre Fluß des Np-237 in der wasserleitenden Kluft nach 1·10⁶ Jahren noch nicht erreicht ist. Da die Rechnungen nur bis zum Zeitpunkt 1·10⁶ Jahre durchgeführt wurden, kann keine Aussage darüber gemacht werden, ob und wann in der Kluft der maximale stationäre Fluß erreicht wird.

Bei der SAM-Studie bestimmen die Löslichkeitsgrenzen von 1·10⁶ mol/l in dem Einlagerungsort benachbarten Bereichen des Grubengebäudes die maximale Np-Konzentration. Bedingt durch Nachbildung von Np-237 aus dem Mutternuklid Am-241 beträgt die Konzentrationsreduktion durch Verdünnung mit unkontaminierter Lauge nur 1/100. Am Übergang Nahbereich/Fernfeld stellt sich eine maximale Konzentration von 8·10⁻⁹ mol/l ein.

	Project-90	SAM		
LWR-Inventar [mol]	2,3·10 ⁴	2,9·10 ⁴		
Rückhaltung im Nahbereich				
nichtisoliertes Inventar [mol]	4.6 mol	415 mol		
Löslichkeitsgrenze [mol/l]	4·10 ⁻⁹	1·10 ⁻⁶		
c _{max} (Abfallbehälter) [mol/l]	4·10 ⁻⁹	1.10 ⁻⁶		
c _{max} (Nah-/Fernfeld) [mol/l]	1.5·10 ⁻¹⁰	8·10 ⁻⁹		
Konzentrationsverringerung im Fernfeld				
Reduktion durch				
- Verdünnung	7·10 ⁶	1·10 ⁵		
- Dispersion und Zerfall	9	6		
Gesamt-Reduktionsfaktor	6·10 ⁷	6⋅10 ⁵		
Strahlenexposition in der Biosphäre				
c _{max} (Biosphäre) [mol/l]	2.5·10 ⁻¹⁸	2·10 ⁻¹⁴		
DKF [(Sv/a):(mol/l)]	4.1·10 ⁶	4.6·10 ⁶		
Dosis in [Sv/a]	1·10 ⁻¹¹	1·10 ⁻⁷		
Zeitpunkt [Jahre]	3 ₁₀ ⁴	2·10 ⁴		

Tabelle 27: Reduktion der maximalen Konzentrationen während des Ausbreitungswegs und resultierende Dosis in der Biosphäre für Np-237.

Im Fernfeld wird bei Project-90 die maximale Konzentration von Np-237 neben der Verdünnung von 7·10⁶ zusätzlich durch Matrixdiffusion und Sorption um einen Faktor 9 reduziert. Auch hier tritt eine Reduktion nur auf, da die betrachtete Zeitspanne auf 1·10⁶ Jahre beschränkt ist. Es ist zu erwarten, daß die Np-Konzentration am Übergang Geosphäre/Biosphäre zu späteren Zeitpunkten die Löslichkeitsgrenzen erreicht. Bei der SAM-Studie ist die Sorption im Deckgebirge schwächer. Es ergibt sich eine Transportzeit von 4·10⁵ Jahren. Gegenüber Tc-99 ist die Transportzeit von Np-237 länger und damit auch der Reduktionseffekt durch longitudinale Dispersion stärker. Mit der Verdünnung durch den Grundwasserstrom des Deckgebirges von 1·10⁵ ergibt sich ein Gesamtreduktionsfaktor von 6·10⁵. Der Barriereeffekt des Deckgebirges ist innerhalb von 1·10⁶ Jahren dadurch bei Project-90 um zwei Größenordnungen stärker als bei der SAM-Studie. Die Dosiskonversionsfaktoren sind in beiden Studien gleich groß.

Die für Np-237 beschriebenen Effekte treten im wesentlichen auch bei den anderen Aktiniden auf. Die anderen Aktiniden mit Ausnahme von Th-232 sind aber deutlich kurzlebiger als Np-237 und haben insbesondere bei der SAM-Studie höhere K_d-Werte. Das bedeutet, daß neben den beschriebenen Effekten, zusätzlich ein wesentlicher Anteil der Nuklide während des Transports zerfällt. Sowohl bei Project-90 als auch bei SAM liegt der Beitrag der Aktiniden zur maximalen Summendosisrate um viele Größenordnungen unter der von I-129.

16 Ergebnisse anderer Szenarien

Die wesentlichen Ergebnisse der übrigen Szenarien in Project-90 sollen hier nur kurz zusammengefaßt werden. Beim Verwerfungsszenario, bei dem angenommen wird, daß eine Schichtenstörung einen erhöhte Nahfeldfluß zur Folge hat, erhält man eine um den Faktor 2 erhöhte maximale Dosisrate von 7·10⁻⁷ Sv/a, die durch Pa-231 bewirkt wird. Ein Ausfall der Bentonitbarriere hat zur Folge, daß das aus dem Gasraum freigesetzte I-129 zu einer deutlich höheren Dosisrate mit Maximum bei 3·10⁻⁵ Sv/a führt. Eine zusätzliche Erhöhung der Grundwasserfließrate hat keinen Einfluß auf die Dosisrate von I-129. Allerdings werden unter diesen Bedingungen das schnell zerfallende Aktinid Pu-240 so schnell in die Biosphäre transportiert, daß es mit 7·10⁻⁴ Sv/a die maximale Dosisrate bestimmt. Die Annahme von oxidierenden Bedingungen hat keinen Einfluß auf das Ausbreitungsverhalten von Pu-240 und damit auch nicht auf die maximale Dosisrate. Alle durchgeführten gebirgsmechanischen Rechnungen deuten darauf hin, daß keine solchen Verwerfungen auftreten. Die Rechnungen zeigen aber, daß man das Risiko der Abfallplazierung in einer aktiven Verwerfung nicht eingehen sollte.

Wenn der Verschluß zu sehr frühen Zeitpunkten ausfällt, ein erhöhter Grundwasserfluß auftritt und das Fernfeld nicht berücksichtigt wird, bewirkt das extrem hohe Dosisraten in der Größenordnung von 1 Sv/a. Dieses Szenario mit sehr groben und pessimistischen Annahmen demonstriert eigentlich nur, wie wesentlich eine sorgfältige Endlagerung radioaktiver Abfälle ist.

Ein sehr früher Kanisterausfall nach wenigen hundert Jahren hat kaum Auswirkungen auf die maximale Dosisrate, da sich das Ausbreitungsverhalten von I-129 nicht wesentlich ändert. Schnell zerfallende Isotope wie Sr-90 und Cs-137 zerfallen auch dann während des Transports soweit, daß ihr Dosisbeitrag weit unter 3·10⁻⁷ Sv/a liegt. Liegt der defekte Kanister in einem Bereich mit erhöhter Grundwasserfließrate, liegt der Beitrag von Sr-90 bei 5.5·10⁻⁵ Sv/a.

Wenn alle Kanister nach 1·10⁶ Jahren ausfallen, resultiert eine maximale Dosis von 1.4·10⁻³ Sv/a, die durch I-129 bewirkt wird und sich aus der Multiplikation der Dosis von 3·10⁻⁷ Sv/a im Referenzfall mit der Zahl der eingelagerten Behälter von 5000 ergibt. Dieses Szenario verdeutlicht die Wirksamkeit des Isolationseffekts durch die dickwandigen Kupferbehälter.

17 Zusammenfassung von Teil 2

Im zweiten Teil dieser Studie wurden die Langzeitsicherheitsanalysen Project-90 und SAM gegenübergestellt. Da die Studie Project-90 ein Endlager für direkt eingelagerte, abgebrannte Brennelemente betrachtet, wurde bei SAM das entsprechende Konzept für die Gegenüberstellung ausgewählt, bei dem die Nuklidfreisetzung ausschließlich aus direkt endgelagerten LWR-Abfällen erfolgt. Die Gegenüberstellung beschränkte sich im wesentlichen auf deterministische Rechnungen. Bei Project-90 wurde der Referenzfall, bei SAM wurde der Fall mit erhöhtem Laugenvolumen betrachtet.

Wie in Teil I des Berichts wurde die Wirksamkeit der einzelnen Barrieren anhand der Konzentrationsreduktion ausgewählter Radionuklide während des Ausbreitungswegs untersucht. Es zeigte sich, daß sowohl Effekte im Nahbereich als auch Effekte im Fernfeld zu einer effektiven Reduktion der Radionuklidkonzentrationen und damit der resultierenden Dosis in der Biosphäre führen. Dabei können zum einen Effekte, die nuklid- bzw. elementunabhängig wirken, unterschieden werden von nuklid- bzw. elementabhängigen Effekten. Hinsichtlich der letztgenannten Effekte kann man die Nuklide grob in drei Gruppen unterteilen:

Gruppe 1 nicht löslichkeitsbegrenzte und schwach sorbierende, wie I-129 und Cs-135,

Gruppe 2 löslichkeitsbegrenzte und schwach sorbierende, wie Tc-99 sowie

Gruppe 3 löslichkeitsbegrenzte und stark sorbierende wie z. B. Np-237 und die Aktiniden.

Die einzelnen Reduktionsfaktoren sind in Abbildung 5 graphisch dargestellt.Im Nahbereich tritt bei beiden Studien ein Isolationseffekt auf, d. h. es wird nur ein Teil des Inventars überhaupt freigesetzt. Bei Project-90 wird angenommen, daß nur einer von 5000 Behältern ausfällt, also nur 1/5000 des Inventars mobilisiert wird. Bei der SAM-Studie ist der Effekt geringer. Es wird nur 1/70 des LWR-Inventars mobilisiert. Als Folge davon sind die nicht isolierten Abfallinventare des Salzendlagers für die meisten Nuklide ca. 100 mal höher als die des Granitendlagers. Bei löslichkeitsbegrenzten Nukliden der Gruppen 2 und 3 ist die Auswirkung des Effekts schwächer.

Für Nuklide der Gruppe 1 werden die maximalen Konzentrationen im Nahbereich durch die zu den Abfällen fließende Wasser- bzw. Laugenmenge und die Auslaugrate bestimmt. Die Auslaugrate ist bei Project-90 eine stärkere Barriere, da die vollständige Auslaugung ca. 20 mal länger dauert als bei SAM. Bei Project-90 haben während der Mobilisierungsdauer ca. 30 m³ Wasser Kontakt mit den Abfällen. Bei SAM sind während der Mobilisierung insgesamt 300 m³ Lauge zugelaufen, wobei aber 200 m³ Lauge zum Endzeitpunkt der Mobilisierung ausgepreßt worden sind. Es resultieren maximale Konzentrationen am Abfallort, die bei SAM zwei Größenordnungen über denen bei Project-90 liegen.

Auch bei diesen beiden Studien stellen die Löslichkeitsgrenzen wirksame Barrieren dar und reduzieren die Konzentrationen der Nuklide der Gruppe 2 und 3 am Abfallort um mehrere Größenordnungen. Die Löslichkeitsgrenzen sind bei Project-90 für alle relevanten Nuklide deutlich niedriger als bei SAM. Die Unterschiede reichen von zwei Größenordnungen bei Neptunium bis zu sieben Größenordnungen bei Zinn. Zusätzlich bewirkt bei Project-90 die Sorption der Nuklide der Gruppe 3 am Bentonit und an der Granitmatrix eine Verzögerung der Freisetzung, so daß de-

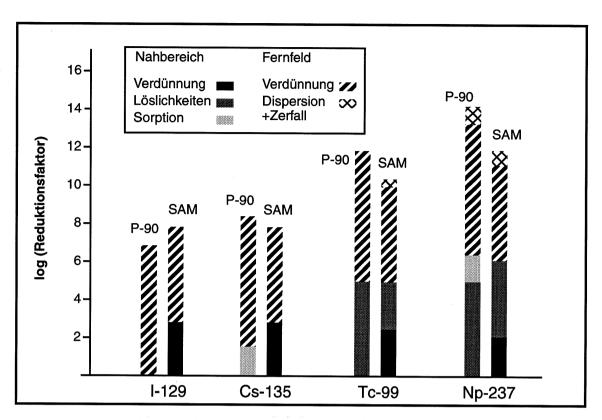


Abbildung 5: Reduktionsfaktoren im Nahbereich und Fernfeld für ausgewählte Nuklide in den Studien Project-90 und SAM

ren Konzentrationen innerhalb der Beobachtungszeit von 10⁶ Jahren noch deutlich unterhalb der Löslichkeitsgrenzen liegen.

Bei SAM tritt im Nahbereich ein zusätzlicher Reduktionsfaktor von ca. 650 durch Verdünnung mit unkontaminierter Lauge aus anderen Endlagerbereichen auf. Als Summe der Nahbereichseffekte ist die maximale Nuklidkonzentration für das nichtlöslichkeitsbegrenzte I-129 in der Granit-Studie am Übergang Nahbereich/Fernfeld ca. 10mal höher als bei der Salz-Studie. Für die löslichkeitsbegrenzten Nuklide der Gruppe 2 und 3 sind die Konzentrationen am Übergang Nahbereich/Fernfeld bei Project-90 zwei bis drei Größenordnungen niedriger.

Im Fernfeld findet bei beiden Studien eine Verdünnung durch den Grundwasserstrom statt. Dieser Verdünnungsfaktor beträgt in der Studie Project-90 7·10⁶ und ist ca. 35 mal höher als der Verdünnungsfaktor 1-2·10⁵ der SAM-Studie. Für die relevanten Nuklide der Gruppe 1 tritt kein weiterer Barriereeffekt auf, so daß die Konzentrationen am Übergang zur Biosphäre bei der SAM-Studie etwas höher liegen als bei Project-90. Auffällig ist, daß die Dosiskonversionsfaktoren bei SAM zum Teil um bis zu eine Größenordnung höher sind als bei Project-90. Unterschiede in der Biosphärenmodellierung wurden nicht eingehender untersucht. Bei Project-90 wurde allerdings vereinfacht nur ein Pfad über das Trinkwasser angenommen, während bei SAM die Belastung des Menschen über verschiedenen Expositionspfade entsprechend der Verzehrgewohnheiten eines Erwachsenen modelliert wurde.

Bei stark sorbierenden Nukliden der Gruppe 3 findet je nach Stärke der Sorption eine weitere Konzentrationsreduktion um bis zu zwei Größenordnungen statt. Wenn zusätzlich radioaktiver

Zerfall auftritt, kann das, wie im Fall der stark sorbierenden Aktiniden, zu einer Konzentrationsabnahme um viele Größenordnungen führen.

Zusammenfassend kann man sagen, daß die Geosphäre in beiden Studien zwar den Transport der meisten Nuklide verzögert, aber neben den Verdünnungseffekten nur eine schwache Barriere darstellt. Effektiv werden nur die Radionuklide reduziert, deren Transportzeit deutlich größer als ihre Halbwertszeit ist, so daß sie während des Transports weitgehend zerfallen. Die Wirkung der Matrixdiffusion mit Sorption ist bei der Granitstudie Project-90 deutlich schwächer als bei der Studie Projekt Gewähr.

18 Schlußfolgerungen für eine Langzeitsicherheitsanalyse eines potentiellen deutschen Endlagers im Hartgestein

In Langzeitsicherheitsanalysen von Endlagern in Granitformationen werden sowohl im Nahbereich als auch im Fernfeld des Endlagers Modelle und Rechenprogramme verwendet, die sich von denen für Endlager in Salzformationen wesentlich unterscheiden. Die in den beiden Formationen durchgeführten Studien werden im folgenden als Granit-, bzw. Salz-Studien bezeichnet.

Bei einem Endlager im Salinar sind Nahbereich und Fernfeld klar voneinander abgegrenzt. Zum Nahbereich gehört das gesamte Grubengebäude im Salzstock mit allen Segmenten. Das Fernfeld entspricht dem über dem Salzstock angrenzenden Deckgebirge. Beide Bereiche werden mit eigenen Rechenmodulen modelliert.

Bei den Endlagerstudien im Granit ist die Trennung von Nahbereich und Fernfeld nicht so scharf. Das Endlager befindet sich in einer Granitformation. Die Behälter sind von einer Bentonitmatrix umgeben, an die sich die Granitmatrix anschließt. Als Nahbereich wird bei Kristallin I und Project-90 eine Zone, die wenige Meter in die Granitmatrix hineinragt, angesehen. Daran schließt sich das Fernfeld an.

Bei den Granit-Studien wird angenommen, daß Grundwasser direkt nach Ende der Betriebsphase an die Abfallbehälter gelangt. Für die Abfälle werden viel beständigere Behältermaterialien, wie z. B. Kupfer verwendet. Durch die hohe Behälterlebensdauer wird die Zeitphase erhöhter Temperaturen überbrückt. Die Mobilisierung aus der Abfallmatrix kann daher bei Projekt Gewähr und Kristallin I im Gegensatz zur Salzstudie temperaturunabhängig modelliert werden. Für das Endlager bei Project-90 wird die Ausbildung einer Redoxfront aufgrund der Radiolyse direkt eingelagerter Brennelemente angenommen. Bei Projekt Gewähr wird im Nahfeld einfach eine Nuklidfreisetzung entsprechend der Auslaugraten bzw. der Löslichkeitsgrenzen in den vorhandenen Grundwasserstrom modelliert. Eine wichtige Größe ist die vom Grundwasser durchströmte Endlagerfläche. Bei den beiden neueren Studien sind die Diffusion durch den Bentonit und durch die ersten Meter der Granitmatrix wichtige Transportprozesse im Nahbereich. Im Bentonit und in der Granitmatrix findet Sorption statt. Zudem findet in den Kluftbereichen des Granits advektiver Transport statt.

Bei den Salz-Studien sind der Zeitpunkt und der Verlauf des Wasserzutritts Einflußgrößen. Bei dem Salzendlager ist die Struktur des Grubengebäudes mit Lage und Abmessungen von Einlagerungsstrecken ein Teil des Modells. Die Menge der zugetretenen Lauge wird entscheidend durch die Konvergenz der unterschiedlichen z. T. mit Salz versetzten Hohlräume im Salz bestimmt. Der Transport kontaminierter Lauge ist ebenfalls durch die Konvergenz der Hohlräume geprägt. Wenn einzelne Segmente vollständig mit Lauge gefüllt sind beginnt ein durch die Konvergenz verursachter Auspreßvorgang der Lauge. Die Behälterlebensdauer ist viel geringer als bei den Granitstudien, weshalb die Mobilisierung aus der Glasmatrix temperaturabhängig modelliert wird.

Für eine potentielle deutsche Endlagerstudie im Granit erscheint eine Verwendung des bisherigen Nahbereichsmoduls und Integration neuer Teilmodelle aufgrund dieser prinzipiellen Unterschiede nicht sinnvoll. Es könnte ein Rechencode für den Nahbereich von der NAGRA bzw. von

SKB übernommen werden. Wesentliche Elemente dieses Nahbereichsmoduls sind Modelle, die die Diffusion durch Bentonit- und Granitmatrix mit gleichzeitiger Sorption sowie advektiven Transport durch Klüfte im Granit beschreiben. Es müßte geklärt werden, ob die Ausbildung einer Redoxfront bei einem deutschen Endlagerkonzept ein relevanter Prozeß sein könnte. Dieser Prozeß ist bisher nur in dem schwedischen Nahbereichsmodul CALIBRE implementiert.

Die Rechenmodule für das Fernfeld weisen größere Gemeinsamkeiten für Granit- und Salzstudien auf. Bei den Granitstudien findet der Fluidtransport in geklüftetem Gestein in diskreten Kanälen statt. Die Geometrie dieser Kanäle hat dabei wesentlichen Einfluß auf das Ausbreitungsverhalten der Radionuklide. Der Transport wird mit eindimensionalen Transportprogrammen modelliert. Matrixdiffusion in verwittertes Granitgestein findet senkrecht zur Transportrichtung statt. In der Matrix findet Sorption an der Sedimentoberfläche statt. Dieser Prozeß kann abhängig von der Struktur der Matrix und den Eigenschaften des Fließsystems eine starke Rückhaltung von Nukliden bewirken.

Im Deckgebirge der Salzstudie wird der Nuklidtransport im porösen Medium berechnet, der durch die den Salzstock überlagerten Sedimente stattfindet. Dafür wird ebenfalls ein eindimensionales Rechenprogramm verwendet. Hier wäre als erster Schritt die Verwendung des eindimensionalen Rechencodes für poröses Medium zur Modellierung des Transports durch eine Kluftröhre denkbar. Dieses Rechenprogramm müßte entsprechend um den Prozeß der Matrixdiffusion erweitert werden.

19 Literatur für Teil 2

- [5] SKI Project-90. Volume I. Statens Kärnkraftinspektion Swedish Nuclear Power Inspectorate Stockholm, SWEDEN, SKI Technical Report 91:23, August 1991.
- [6] SKI Project-90. Volume II. Statens Kärnkraftinspektion Swedish Nuclear Power Inspectorate Stockholm, SWEDEN, SKI Technical Report 91:23, August 1991.
- [7] D. Buhmann, A. Nies, R. Storck: Analyse der Langzeitsicherheit von Endlagerkonzepten für wärmeerzeugende radioaktive Abfälle. GSF-Bericht 27/91. GSF - Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, Braunschweig 1991.

Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) mbH

Schwertnergasse 1 **50667 Köln** Telefon +49 221 2068-0 Telefax +49 221 2068-888

Forschungsinstitute **85748 Garching b. München** Telefon +49 89 32004-0 Telefax +49 89 32004-300

Kurfürstendamm 200 **10719 Berlin** Telefon +49 30 88589-0 Telefax +49 30 88589-111

Theodor-Heuss-Straße 4 **38122 Braunschweig**Telefon +49 531 8012-0
Telefax +49 531 8012-200

www.grs.de