



**Gesellschaft für Anlagen-  
und Reaktorsicherheit  
(GRS) mbH**

**Realistische  
Abschätzung der  
Strahlenschädigung  
von Steinsalz  
bei Einlagerung von  
HAW in Bohr-  
löchern**



**Gesellschaft für Anlagen-  
und Reaktorsicherheit  
(GRS) mbH**

**Realistische  
Abschätzung der  
Strahlenschädigung  
von Steinsalz bei  
Einlagerung von  
HAW in Bohr-  
löchern**

Jörg Mönig

Juni 1997

**GRS - 142  
ISBN 3-923875-99-1**

**Anmerkung:**

Das diesem Bericht zugrundeliegende FE-Vorhaben wurde im Auftrag des Bundesministeriums für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie unter dem Kennzeichen 02 E 8825 durchgeführt. Die Verantwortung für den Inhalt liegt beim Autor.

**Deskriptoren:**

Berechnung, Endlagerung, Gammastrahlung, Hochaktiver Abfall, Salz, Strahlenschaden, Versuchsauswertung

## Kurzfassung

Der Bericht faßt die Fortentwicklung des Kenntnisstandes seit 1993 zur Bildung von Strahlenschäden in Alkalihalogeniden zusammen. Bei hohen  $\gamma$ -Dosen können Strahlenschäden gebildet werden, wobei im Kristallgitter Chlorgas und metallisches Natrium in kolloidaler Form entstehen. Begleitet wird dieser Prozeß durch die Speicherung von Energie. Von potentieller Bedeutung ist dieser Vorgang bei der Endlagerung von wärmeentwickelnden, hochradioaktiven Abfällen im Salinar.

Der Bericht gliedert sich in drei Teile. Nach einer Beschreibung der theoretischen Grundlagen der Strahlenschädenbildung werden neue experimentelle Ergebnisse bewertet, die in den letzten Jahren erzielt wurden bzw. aus dem russischen Sprachraum zugänglich geworden sind. Dies hat die experimentelle Datenbasis zur Überprüfung der theoretischen Modellvorhersagen erweitert, aber nicht zu völlig neuen Erkenntnissen geführt. Im dritten Teil werden erstmals Modellrechnungen zur Strahlenschädenbildung im Steinsalz beschrieben, die mit realistischen Randbedingungen im Bezug auf die Temperaturen und  $\gamma$ -Dosisleistungen, die in einem deutschen Endlager auftreten können, und unter Berücksichtigung ihrer zeitlichen Veränderungen durchgeführt wurden. Zur Abdeckung der Parameterunsicherheiten und -bandbreiten wurden verschiedene Kombinationen analysiert, die den möglichen Bereich ausreichend sicher abdecken.

Da die Strahlenschädenbildung experimentell nicht unter endlagerrelevanten Randbedingungen verfolgt werden kann, sind Modellrechnungen notwendig. Neben den klassischen makroskopischen Ansätzen wie der Jain-Lidiard-Theorie (JL-Theorie) und deren Erweiterungen wie dem Soppe-Modell existieren andere Modelle, die aber noch nicht ausreichend durch Vergleich mit experimentellen Daten abgesichert sind. Das Soppe-Modell kann zur Zeit als am besten abgesichert angesehen werden. Der Einfluß der meisten Parameter wird qualitativ sehr gut wiedergegeben. Da bestimmte Reaktionen, die zur Ausheilung von Defekten führen, nicht berücksichtigt sind, stellen die Ergebnisse konservative Obergrenzen dar.

In einem Endlager im Salinar tritt die maximale Strahlenschädigung von ca. 2 mol-% kolloidalem Natrium (= 165 J/g NaCl gespeicherte Energie) am Rand des Endlagerfeldes auf. Im Zentrum des Feldes sind über eine sehr lange Zeitspanne die Temperaturen so hoch, daß keine nennenswerte Kolloidbildung möglich ist. Insgesamt belegen die Ergebnisse, daß die Integrität des Einlagerungsbereiches durch das Ausmaß der Strahlenschädenbildung nicht gefährdet ist. Einige Möglichkeiten zur Minimierung der Strahlenschädenbildung durch veränderte Endlagerauslegung werden aufgezeigt.

Die ermittelte Strahlenschädigung ist hinsichtlich der Langzeitauswirkungen unbedenklich. Eine spontane Freisetzung der gespeicherten Energie ist nicht zu erwarten, da kein Freisetzungsmechanismus vorstellbar ist. Aber selbst unter der Annahme, daß die gesamte um ein Einlagerungsbohrloch gespeicherte Energie plötzlich freigesetzt wird, wären die mechanischen Auswirkungen gering und auf wenige Meter um das Bohrloch herum begrenzt.

## Abstract

This report summarizes the new information since 1993 regarding the formation of radiation damage in alkali halides. Radiation damage may result at high  $\gamma$  doses thereby producing chlorine gas and colloidal metallic sodium in the crystal lattice. This process is accompanied by the storage of energy. It is of potential significance in the final disposal of heat-producing highly radioactive waste in rock salt formations.

The report is divided into three major parts. After a description of the theoretical background new experimental results are evaluated, that have been obtained in recent years or that are now available from the Russian language area. These results have enlarged the experimental database for the theoretical models but did not lead to new realizations. The third part describes the results of radiation damage model calculations for a German repository employing for the first time realistic boundary conditions with respect to temperatures and  $\gamma$  dose rates taking their temporal changes into account. In order to deal with parameter uncertainties and bandwidths several combinations were analysed which covered the whole possible range.

Model calculations are indispensable owing to the fact that radiation damage formation can not be studied under conditions that fully represent the repository conditions. Apart from the classical macroscopic theories, e.g. the Jain-Lidiard theory and its developments such as the Soppe theory, other theoretical models exist. However, these models are not yet sufficiently supported by comparison with experimental data. The Soppe theory can be regarded as being best supported with experimental data. Qualitatively, the influence of most parameters is reflected very well. Since certain reactions have not been taken into account which anneal defects the results are conservative and represent upper limits

For a repository in rock salt formations the maximum radiation damage level of 2 mol-% colloidal sodium (corresponding to 165 J/g NaCl stored energy) is calculated for the border area of the disposal field. In the center the high temperatures prevent the formation of radiation damage over long periods of time. The results show that the integrity of the disposal area is not jeopardized by the radiation damage formation. Some possibilities to minimize the radiation damage formation via a different repository design are indicated.

With respect to long-term effects the radiation damage is without concern. A spontaneous release of the stored energy is not to be expected, since no release mechanism is conceivable. However, even under the assumption that the total stored energy around an emplacement borehole is suddenly released, the mechanical consequences would be restricted to a few meters around the borehole.

## Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung .....	I
Abstract .....	II
Inhaltsverzeichnis .....	III
Abbildungsverzeichnis .....	V
Tabellenverzeichnis .....	VIII
<b>1 Einleitung .....</b>	<b>1</b>
<b>2 Theoretische Grundlagen .....</b>	<b>4</b>
2.1 Defektstrukturen in Alkalihalogeniden .....	4
2.2 Mechanismus der Strahlenschädenbildung bei Alkalihalogeniden .....	6
2.2.1 Primäre Effekte bei der $\gamma$ -Bestrahlung von Alkalihalogeniden .....	6
2.2.2 Bildung von Defektaggregaten .....	9
2.3 Mathematische Modelle zur Beschreibung der Strahlenschädenbildung .....	10
<b>3 Experimentelle Ergebnisse zur Strahlenschädenbildung in Steinsalz ....</b>	<b>16</b>
3.1 Kriterien zur Verwendbarkeit der experimentellen Daten .....	16
3.2 Bewertung der russischen Daten .....	17
3.3 Neuere Untersuchungen in EU-Ländern seit 1993 .....	20
3.4 Zusammenfassende Bewertung .....	22
<b>4 Modellrechnungen zur Strahlenschädenbildung .....</b>	<b>25</b>
4.1 Ableitung realistischer Randbedingungen .....	25
4.1.1 Geometrische Basisdaten des Einlagerungsfeldes .....	28
4.1.2 Berechnung der Temperaturentwicklung .....	30
4.1.3 Berechnung der $\gamma$ -Dosisleistung .....	32

4.2	Ergebnisse der Modellrechnungen .....	34
4.2.1	Berechnung der Basisfälle .....	34
4.2.2	Betrachtete zusätzliche Fälle .....	40
4.2.3	Effizienz der Energiespeicherung .....	41
4.2.4	Vergleich mit der Jain-Lidiard-Theorie .....	43
4.2.5	Zusammenfassende Bewertung .....	44
<b>5</b>	<b>Zusammenfassung und Schlußfolgerungen .....</b>	<b>50</b>
<b>6</b>	<b>Literatur .....</b>	<b>54</b>

## Abbildungsverzeichnis

Bild 1	Strukturen der wichtigsten Defektzentren in Alkalihalogenidverbindungen..	6
Bild 2	Dissoziation eines Excitons in die Gitterdefekte beim KCl-Kristall.....	8
Bild 3	Schematische Darstellung des Soppe-Modells .....	13
Bild 4	Schematische Darstellung des Endlagerfeldes .....	29
Bild 5	Abhängigkeit der resultierenden Temperaturen beim Szenario 1 von der Anzahl der effektiven Nachbarbohrlöcher.....	47
Bild 6	Bei den Modellrechnungen berücksichtigte Kombinationen der Einflußgrößen Temperatur und $\gamma$ -Dosisleistung .....	47
Bild A-1	Abhängigkeit der Absorptionsbanden der Defektzentren F, F <sub>2</sub> und F <sub>3</sub> von der Gitterkonstanten der Alkalihalogenidverbindungen.....	60
Bild A-2	Prinzipielle Lage der optischen Absorptionsbanden der wichtigsten Defektzentren .....	61
Bild A-3	Beziehung zwischen den relativen Änderungen der Gitterkonstanten a und der Länge L eines KCl-Kristalls, der röntgenbestrahlt oder additiv gefärbt wurde .....	62
Bild A-4	Gespeicherte Energie als Funktion der Dosis bei $\gamma$ -Bestrahlung von NaCl-Proben .....	63
Bild A-5	Vergleich der mit 3 und 4 Exponentialtermen approximierten Wärmeerzeugung von Abfallkokillen mit der genauen Lösung .....	64
Bild A-6	Mit Monte-Carlo-Methoden berechnete horizontale $\gamma$ -Dosisleistungs- abnahme im Steinsalz.....	65
Bild A-7	Mit Monte-Carlo-Methoden berechnetes radiales $\gamma$ -Dosisleistungsprofil im Steinsalz des Bohrloches B3 des HAW-Versuchsfeld .....	66
Bild A-8	Mit Monte-Carlo-Methoden berechnetes vertikales $\gamma$ -Dosisleistungs- profil entlang des Bohrloches B3 im HAW-Versuchsfeld .....	67

Bild A-9	Berechnete und über Näherungsfunktion approximiere radiale $\gamma$ -Dosisleistungverteilung im Salz für ein niederländisches Endlagerszenario .....	68
Bild A-10	Temperaturanstieg bei Szenario 1 für 2 Bohrlochpositionen .....	69
Bild A-11	Temperaturanstieg bei Szenario 2 für 2 Bohrlochpositionen .....	70
Bild A-12	Temperaturanstieg bei Szenario 3 für 2 Bohrlochpositionen .....	71
Bild A-13	Temperaturanstieg bei Szenario 4 für 2 Bohrlochpositionen .....	72
Bild A-14	Temperaturanstieg bei Szenario 5 für 2 Bohrlochpositionen .....	73
Bild A-15	Temperaturanstieg bei Szenario 6 für 2 Bohrlochpositionen .....	74
Bild A-16	Temperaturanstieg bei Szenario 7 für 2 Bohrlochpositionen .....	75
Bild A-17	Temperaturanstieg bei Szenario 8 für 2 Bohrlochpositionen .....	76
Bild A-18	$\gamma$ -Dosisleistung und $\gamma$ -Dosis im Steinsalz direkt an der Kokillensäule für die Szenarien 1-4.....	77
Bild A-19	$\gamma$ -Dosisleistung und $\gamma$ -Dosis im Steinsalz direkt an der Kokillensäule für die Szenarien 5-8.....	78
Bild A-20	Natriumkolloidanteil am Bohrlochrand bei Szenario 1 für 2 Bohrlochpositionen .....	79
Bild A-21	Natriumkolloidanteil am Bohrlochrand bei Szenario 2 für 2 Bohrlochpositionen .....	80
Bild A-22	Natriumkolloidanteil am Bohrlochrand bei Szenario 3 für 2 Bohrlochpositionen .....	81
Bild A-23	Natriumkolloidanteil am Bohrlochrand bei Szenario 4 für 2 Bohrlochpositionen .....	82
Bild A-24	Natriumkolloidanteil am Bohrlochrand bei Szenario 5 für 2 Bohrlochpositionen .....	83
Bild A-25	Natriumkolloidanteil am Bohrlochrand bei Szenario 6 für 2 Bohrlochpositionen .....	84

Bild A-26 Natriumkolloidanteil am Bohrlochrand bei Szenario 7 für 2 Bohrloch-  
positionen .....85

Bild A-27 Natriumkolloidanteil am Bohrlochrand bei Szenario 8 für 2 Bohrloch-  
positionen .....86

Bild A-28 Natriumkolloidanteil als Funktion des radialen Abstandes.....87

Bild A-29 Abhängigkeit der kritischen Dosisleistung von der Temperatur .....88

Bild A-30 Vergleich der kritischen  $\gamma$ -Dosisleistung mit der aktuellen  $\gamma$ -Dosis-  
leistung für zwei Basisfälle .....89

Bild A-31 Temperaturentwicklung für verschiedene intermediäre Bohrloch-  
positionen beim Szenario 1 .....90

Bild A-32 Einfluß des Bohrlochabstandes auf die berechneten Temperatur-  
verläufe beim Szenario 1 .....91

Bild A-33 Zeitliche Veränderung der Effizienz der Energiespeicherung beim  
Szenario 1 .....92

## Tabellenverzeichnis

Tabelle 1	Übersicht über die Defektzentren in Alkalihalogeniden .....	5
Tabelle 2	Experimentelle Daten für die Energiespeicherung .....	24
Tabelle 3	Betrachtete Grundszenarien .....	27
Tabelle 4	Geometrische Daten des Modellendlagers.....	29
Tabelle 5	Koeffizienten zur Temperaturberechnung .....	31
Tabelle 6	Berechnete Maximaltemperatur und maximaler Anteil an Natrium- kolloiden für die Basisfälle.....	36
Tabelle 7	Kolloidmenge als Funktion des radialen Abstandes vom Bohrlochrand.....	39
Tabelle 8	Berechnete Maximaltemperatur und maximaler Anteil an Natrium- kolloiden für die zusätzlich betrachteten Fälle .....	40
Tabelle 9	Spezifische Energiespeicherung, Effizienz und Gesamtenergie- speicherung für verschiedene Basisfälle .....	42
Tabelle 10	Vergleich der Ergebnisse der Jain-Lidiard-Theorie und des Soppe- Modells für ausgewählte Positionen im Endlagerfeld .....	44

# 1 Einleitung

Das Konzept der Bundesrepublik Deutschland zur Endlagerung von hochradioaktiven Abfällen und mittelradioaktiven Abfällen der oberen Aktivitätskategorie aus der Wiederaufarbeitung sieht deren Immobilisierung durch Einschmelzen in Glas und die Endlagerung der Glaskokillen in untertägigen Bohrlöchern in Steinsalzformationen vor.

Dabei ist das Wirtsgestein Salz in der unmittelbaren Umgebung des Bohrloches den von den Abfällen stammenden  $\gamma$ -Quanten ausgesetzt. Die Abfallkokillen selbst heizen sich durch die vollständige Absorption der  $\alpha$ - und  $\beta$ -Strahlung der eingeschlossenen Nuklide auf, so daß das Wirtsgestein zusätzlich einem Temperaturfeld ausgesetzt ist. Die Absorption der von den Glaskokillen emittierten Neutronen führt zu Elementaktivierungen, die letztlich zu mehr als 90 % harte Sekundär- $\gamma$ -Strahlung liefern.

Die Absorption von  $\gamma$ -Strahlung im Steinsalz führt über einen komplexen Mechanismus zur Strahlenschädigung des Kristallgitters, wobei letztlich bei sehr hohen  $\gamma$ -Bestrahlungsdosen ( $> 10^6$  Gy) die Radiolyseprodukte Chlorgas ( $\text{Cl}_2$ ) und metallisches Natrium (kolloidales Natrium) entstehen. Mit diesen Vorgängen ist die Speicherung von Energie verknüpft. Die Bildung von Strahlenschäden stellt in einem Endlager nur ein lokales Phänomen dar und ist in radialer Richtung auf einen maximal 50 cm breiten Bereich um ein Einlagerungsbohrloch begrenzt. Die Bildung chemisch sehr reaktiver Bestrahlungsprodukte kann aber von potentieller Bedeutung für die sichere Endlagerung hochradioaktiver, wärmeentwickelnder Abfälle sein, da bei einer plötzlich ablaufenden spontanen Rekombination der molekularen Bestrahlungsprodukte eine Temperaturerhöhung einherginge mit möglichen thermomechanischen Konsequenzen.

Eine der Voraussetzungen für die Abschätzung der Langzeitsicherheit eines Endlagers für hochradioaktive Abfälle im Salinar bezüglich des Gefährdungspotentials durch die Strahlenschädigung ist eine belastbare Aussage zur Menge und zeitlichen Entwicklung der sich bildenden molekularen Bestrahlungsprodukte sowie der dabei gespeicherten Energie.

Eine experimentelle Bestimmung der Strahlenschädenbildung unter den Randbedingungen der Endlagerung ist jedoch prinzipiell nicht möglich. In experimentell zugänglichen Zeiträumen müssen entweder sehr hohe  $\gamma$ -Dosisleistungen verwendet werden, um eine entsprechende Gesamtdosis zu erreichen, oder es können mit endlagerrelevanten Dosisleistungen nur niedrige  $\gamma$ -Dosen erreicht werden, bei denen noch keine nennenswerte Kolloidbildung zu beobachten ist. Die fehlende Möglichkeit, die Strahlenschädenbildung unter endlagerrelevanten Bedingungen experimentell zu verfolgen, hat zwei wichtige Konsequenzen:

1. Quantitative Aussagen zum Ausmaß der Strahlenschädigung des Steinsalzes bei der Endlagerung von HAW müssen im wesentlichen auf Modellrechnungen basieren. Dabei sind jedoch für jeden Ortspunkt die zeitlichen Veränderungen der Parameter Dosisleistung und Temperatur während der langen Einlagerungszeiträume zu berücksichtigen. Diese für die Strahlenschädenbildung im Steinsalz wichtigen Einflußgrößen sind von verschiedenen Randbedingungen abhängig. Sie umfassen die Daten für die Abfallkokillen selbst (Anfangsnuklidinventar, Zwischenlagerungszeit der Kokillen vor und nach Wiederaufarbeitung) und die Planungsdaten für die geometrische Auslegung des Endlagers (Abstand der Einlagerungsbohrlöcher, Befüllung der Bohrlöcher).
2. Die verwendeten theoretischen Modelle zur Beschreibung der Strahlenschädenbildung müssen hinsichtlich der Richtigkeit ihrer Vorhersagen so vollständig wie möglich überprüft werden. Dies erfolgt auf der Basis experimenteller Daten, die bei verschiedenen hohen Dosisleistungen erhalten wurden. Besonderes Augenmerk ist deshalb darauf zu richten, daß der Einfluß der Dosisleistung auf die Strahlenschädigung durch das Rechenmodell korrekt beschrieben wird.

1993 wurde der Kenntnisstand in einem Statusbericht zusammengefaßt /GIE 93/. Danach sind die grundsätzlichen Vorgänge bei der Entstehung von Strahlenschäden im Steinsalz weitestgehend verstanden. Die, verglichen mit den meisten anderen Festkörpern, bedeutend höhere Rate der Defektbildung in Halogeniden beruht auf der "elektronischen Anregung" des Gitters bei der Wechselwirkung mit ionisierender Strahlung, die bis zu einer um den Faktor 20 000 höheren Zahl radiolytisch entstandener Defekte in Halogeniden führt. Bei der Abhängigkeit der Strahlenschädigung von der Dosis sind drei wesentliche Phasen zu unterscheiden. Zunächst bilden sich bei geringen Bestrahlungsdosen in der sogenannten Induktionsphase hauptsächlich F- und H-Zentren. Nach einem kurzen Übergangsbereich, in dem die Defektbildung exponentiell von der Dosis abhängt, schließt sich bei weiterer Dosiserhöhung der Linearbereich an, in dem zwischen Defektbildung (d.h. der Bildung von Na-Kolloiden und Chlorgas) und Dosis ein mehr oder weniger linearer Zusammenhang besteht. Bei noch höheren Dosen tritt möglicherweise ein Plateaubereich, d.h. Sättigung in der Defektbildung, auf. Die drei Phasen bei der Bildung von Strahlendefekten können unterschiedlich stark von den Parametern Dosisleistung und Temperatur abhängen. Darüber hinaus kann auch der Spannungszustand sowie der Grad an Verunreinigungen einen Einfluß besitzen. Der Einfluß der Temperatur zeigt sich darin, daß die Kolloidbildung in Abhängigkeit von der Dosisleistung jeweils nur in einem bestimmten Temperaturbereich möglich ist. Allerdings schienen 1993 noch Diskrepanzen hinsichtlich der Temperatur zu bestehen, bei der die maximale Energiespeicherung auftritt.

Für die Endlagerung ist letztlich das Ausmaß der Strahlenschädigung des Salzes von Interesse, d.h. im wesentlichen die Rate der Defektbildung (entspricht der Steigung des Linearbereichs) sowie bei Auftreten eines Sättigungseffektes die Höhe des

Plateauwertes. Bei der Auswertung der vorhandenen Untersuchungsergebnisse zeigte sich, daß bis dahin nur in relativ wenigen experimentellen Untersuchungen endlagerrelevante Dosisbereiche von  $>10^8$  Gy erreicht worden waren, so daß nur eine geringe Datenbasis zur Überprüfung der Rechenmodelle zur Verfügung stand. Häufig konnte auf der Basis der Meßdaten nicht festgestellt werden, ob unter den gegebenen Parametern eine Sättigung in der Strahlenschädigung eingetreten war oder nicht.

Die Frage nach der Menge des in einem Endlager gebildeten kolloidalen Natriums bzw. nach dem Ausmaß der Energiespeicherung konnte 1993 noch nicht abschließend beantwortet werden. Auf der Basis verschiedener experimenteller Daten wurde abgeschätzt, daß die maximale Strahlenschädigung im Temperaturbereich um  $100^\circ\text{C}$  auftritt und daß  $\leq 0,04\%$  der eingestrahlten Energie gespeichert werden. Unter der konservativen Annahme eines linearen Zusammenhangs zwischen Dosis und Strahlenschädigung über den gesamten Dosisbereich entspräche dies bei der maximalen  $\gamma$ -Dosis im Endlager von  $10^9$  Gy einer Energiespeicherung von  $\leq 400$  J/g Salz bzw. einer Bildung von höchstens 3 - 4 Mol-% Natriumkolloid. Diese Aussagen basieren allerdings auf Daten, die mit hohen Dosisleistungen von  $\geq 10^5$  Gy/h ermittelt wurden, die im Endlager nicht auftreten.

Eine wesentliche Schlußfolgerung des Statusberichtes von 1993 ist, daß zu diesem Zeitpunkt keine Modellrechnungen vorlagen, bei denen die Randbedingungen in einem deutschen Endlager in realistischer Weise berücksichtigt worden waren. Quantitative Aussagen zur in einem Endlager in der Nähe eines Einlagerungsbohrloches auftretenden Strahlenschädenbildung bzw. Energiespeicherung waren deshalb noch nicht möglich.

In der Zwischenzeit sind einige Ergebnisse russischer Untersuchungen zu diesem Themenkomplex zugänglich geworden /SCH 94/. Zusätzlich wurden speziell im Rahmen des vom BMBF und der EU geförderten HAW-Projektes umfangreiche Laborbestrahlungen durchgeführt /GAR 96/. Somit hat sich die experimentelle Datenbasis in den letzten Jahren erheblich erweitert. Auch die theoretischen Modelle zur quantitativen Beschreibung der Strahlenschädenbildung im Steinsalz wurden in den letzten drei Jahren weiterentwickelt.

Diese Entwicklungen bildeten den Anlaß zur Durchführung der im Bericht vorgestellten Arbeiten. Sie umfassen die Bewertung von neu zugänglichen Ergebnisse experimenteller Untersuchungen und deren Einordnung in den Kontext der bisherigen Erkenntnisse. Zusätzlich wurden mit den verbesserten Modellen erstmals Rechnungen zur Strahlenschädenbildung auf der Basis realistischer Randbedingungen für ein deutsches Endlager für HAW im Salinar durchgeführt und die Bedeutung dieses bereits unter normalen Betriebsbedingungen im Endlager auftretenden Effektes unter sicherheitsbezogenen Gesichtspunkten bewertet.

## 2 Theoretische Grundlagen

### 2.1 Defektstrukturen in Alkalihalogeniden

In Alkalihalogeniden können verschiedene Defektzentren auftreten, die eine Störung der Anordnung der Ionen im Kristallgitter bewirken. Diese Defektzentren werden z.B. durch  $\gamma$ -Bestrahlung, Röntgenbestrahlung, Eindiffundieren von Metaldämpfen des Alkalimetalls oder durch Einbau von Fremdionen derselben oder auch anderer Wertigkeit im Kristallgitter verursacht. Da die meisten Defektzentren charakteristische optische Absorptionsbanden besitzen, wurden sie seit vielen Jahren intensiv untersucht. Allerdings ist in manchen älteren Arbeiten die Zuordnung der beobachteten Absorptionsbanden zu bestimmten Defektstrukturen nach heutigem Kenntnisstand nicht immer richtig. Heutzutage sind die Strukturen der verschiedenen Defektzentren und deren zugehörige Absorptionsbanden allerdings recht gut bekannt. Eine Übersicht ist in Tabelle 1 zu sehen [WOL 93]. In Bild 1 sind die Strukturen der wichtigsten Defektzentren veranschaulicht.

Das F-Zentrum entspricht einer Leerstelle im Chloridionengitter, an der ein Elektron gebunden ist. Aufgrund der elektrostatischen Anziehung hält sich das Elektron allerdings vorwiegend bei den die Leerstelle umgebenden positiven Metallionen auf. Solche Elektronen können eine Reihe von Energiezuständen einnehmen. Durch optische Absorption können sie vom Grundzustand in den ersten angeregten Zustand überführt werden. Die Anregungsenergien für die F-Zentren in Alkalihalogeniden liegen im Bereich zwischen 1,7 eV für RbI und 5,0 eV für LiF, wobei die meisten Werte zwischen 2 und 3 eV liegen. Die Lage der Absorptionsbanden hängt von den Gitterkonstanten der jeweiligen Alkalihalogenidverbindung ab. Dies ist für die Zentren F, F<sub>2</sub> und F<sub>3</sub> in Bild A-1 dargestellt.

Die relativen Positionen der wichtigsten optischen Absorptionsbanden für Defektzentren in Alkalihalogeniden sind in Bild A-2 zu sehen<sup>1</sup>. Perfekte Kristalle zeigen normalerweise keine Absorptionen in einem Spektralbereich zwischen dem mit IR bezeichneten Reststrahl im infraroten Bereich und der Absorptionskante E<sub>g</sub> im UV-Bereich.

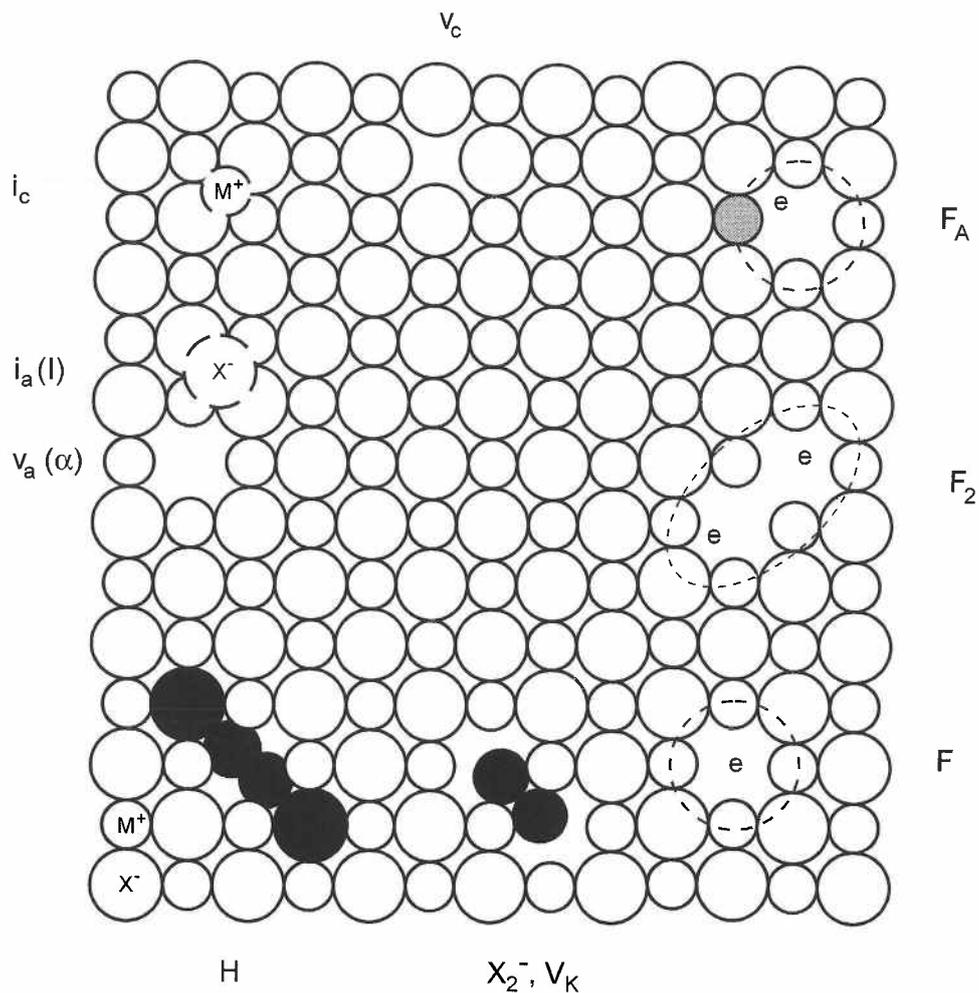
Die Breite der Absorptions- und Lumineszenzbanden sowie die Stokes-Verschiebung können durch Elektron-Gitter-Wechselwirkungen erklärt werden. Die Lebensdauer des angeregten Zustandes liegt bei ca. 10<sup>-6</sup> s und nimmt oberhalb einer bestimmten Temperatur stark ab.

---

<sup>1</sup> Die meisten Bilder sind im Anhang am Ende des Textes aufgeführt. Diese Bilder sind durch ein der Bildnummer vorangestelltes A gekennzeichnet (Beispiel A-1). Im Textteil sind nur wenige Bilder enthalten, die unmittelbar für das Verständnis hilfreich sind.

**Tabelle 1** Übersicht über die Defektzentren in Alkalihalogeniden

Zentrum	Absorptionsbande	Defektstruktur
$F^+$ , $V_a$	$\alpha$	Eine Leerstelle im Halogenionen-Subgitter.
F	$\beta$	Eine Leerstelle im Halogenionengitter, die von einem Elektron besetzt ist. Absorptionen, die durch Übergänge des F-Zentrums in höhere Zustände erzeugt werden, liefern die K-, $L_1$ , $L_2$ - und $L_3$ -Banden.
$F_A$ , $F_B$		F-Zentren, die an eine oder zwei benachbarte Alkali-metall-Verunreinigungen gebunden sind.
$F_Z$		Variante des F-Zentrums mit einem benachbarten divalenten Metallion.
$F^-$	$F'$	Eine Leerstelle im Halogenionen-Subgitter, die von zwei Elektronen besetzt ist.
$F_2$	M	Ein Paar von F-Zentren, die entlang der $\langle 100 \rangle$ -Richtung benachbart sind.
$F_3$	R	Drei miteinander verbundene F-Zentren, die wahrscheinlich als Dreieck in der (111)-Ebene angeordnet sind. Eine lineare Anordnung bzw. eine L-förmige Anordnung in der (100)-Ebene werden für weniger wahrscheinlich gehalten.
$F_4$	N	Vier miteinander verbundene F-Zentren, die entweder als Parallelogramm in der (111)-Ebene oder als Tetraeder angeordnet sind.
$F_2^-$ , $F_3^-$ , $F_4^-$	$M'$ , $R'$ , $N'$	$F_2^-$ , $F_3^-$ und $F_4^-$ -Zentren mit einem zusätzlichen Elektron.
$V_c$		Leerstelle im Kationensubgitter
$V_K$		Elektronisches Loch, das unter Bildung einer kovalenten Bindung zwischen zwei Halogenidionen geteilt wird, $X_2^-$ .
H		Ein Loch, das über vier Halogenionen in drei benachbarten Gitterplätzen entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gebunden ist. Dies ist ein neutrales, auf einem Zwischengitterplatz sitzendes Crowdion.
$H_A$ , $H_B$		Varianten des H-Zentrums, die Fremdkalimetallionen benachbart sind.
I		Halogenion auf Zwischengitterplatz



**Bild 1** Strukturen der wichtigsten Defektzentren in Alkalihalogenidverbindungen

## 2.2 Mechanismus der Strahlenschädenbildung bei Alkalihalogeniden

### 2.2.1 Primäre Effekte bei der $\gamma$ -Bestrahlung von Alkalihalogeniden

Wie bei allen Festkörpern kann auch in Alkalihalogenidkristallen die Absorption von  $\gamma$ -Quanten zur Schädigung des Kristallgitters führen, indem Ionen durch elastischen Stoß der über den Compton-Effekt gebildeten Sekundärelektronen von ihrem normalen Gitterplatz auf einen Zwischengitterplatz versetzt werden. Für die Bildung von Strahlenschäden in Alkalihalogeniden spielt dieser Mechanismus allerdings nur eine sehr geringe Rolle /GIE 93/.

Bei Alkalihalogeniden läuft zusätzlich noch ein anderer Prozeß ab, der zum Entstehen von sog. Ionisationsschäden im Kristallgitter führt. Dieser wird als Radiolyseprozeß bezeichnet, da der zugrundeliegende Mechanismus den Vorgängen bei der  $\gamma$ -Bestrahlung von Flüssigkeiten (z.B. Wasser, organische Lösungsmittel) ähnelt. Der Radiolyseprozeß führt bei Alkalihalogeniden über einen komplexen Mechanismus zu

einer im Vergleich mit den meisten anderen Festkörpern bedeutend höheren Rate der Defektbildung.

Der Radiolysemechanismus ist mittlerweile weitgehend verstanden. Er wird hier detailliert vorgestellt, da auf dieser Basis die Auswertung der neu zugänglich gewordenen Ergebnisse aus dem russischen Sprachraum erfolgte.

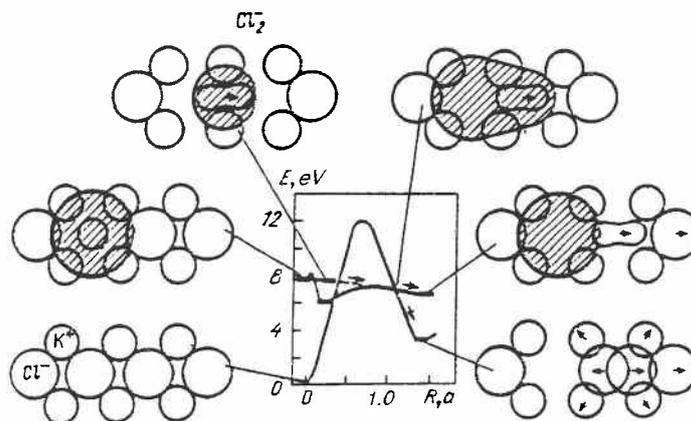
Die Absorption von  $\gamma$ -Quanten führt zunächst zur Ionisation der Elektronenhülle eines Chloridions, wodurch ein Elektron und ein elektronisches Loch, d.h. eine fehlende negative Ladung, entstehen. Bei der Rekombination dieses Elektronen-Loch-Paares entsteht ein Exciton, d.h. ein Elektron, das ähnlich wie bei einem Wasserstoffatom um einen Mittelpunkt kreist, der hier von dem elektronischen Loch beim am Gitterplatz sitzenden Chloratom gebildet wird (Frenkel-Exciton /KIT 96/). Die innere Energie eines freien Excitons beträgt ca. 8 eV. Solch ein Exciton hat die Tendenz sich selbst zu lokalisieren. Seine Lochkomponente wird mit dem nächsten Nachbarn unter Bildung einer lokalen kovalenten Bindung "geteilt", wodurch ein sich über zwei Gitterplätze erstreckendes Quasimolekül,  $(X_2^{2-})^*$ , erzeugt wird. Dieses entspricht einem  $V_K$ -Zentrum bzw.  $X_2^-$  als Lochkomponente mit einem darum kreisenden Elektron. Die beiden Halogenidatome des  $V_K$ -Zentrums sind beträchtlich aus ihrer regulären Gitterposition aufeinander zu verschoben.

Ein selbstlokalisiertes Exciton kann sich in verschiedenen elektronischen Zuständen befinden, die ca. 6-8 eV über der Energie des idealen Kristallgitters liegen. Da die Gleichgewichtsenergie für ein Defektpaar aus F- und H-Zentrum für KCl bei ca. 7 eV liegt, ist ein Zerfall eines Excitons in ein F-H-Paar aus elektronischen Gründen möglich, wenn das Exciton sich in einem nicht-relaxierten Zustand befindet. Beim Zerfall des Excitons wird die durch die Rekombination des Elektronen-Loch-Paares freiwerdende elektrostatische Energie von ca. 7 eV auf das  $V_K$ -Ionenpaar übertragen. Das resultierende Moment weist entlang der Richtung  $\langle 110 \rangle$ , d.h. entlang der dichtest gepackten Richtung. Die Lochkomponente geht dadurch von zwei Gitterpositionen auf einen Gitterplatz über. Dies entspricht der Bildung eines Halogenatoms auf einem Zwischengitterplatz in einem relaxierten Zustand. Dieser wird als H-Zentrum bezeichnet. Das schwach gebundene Elektron des Excitons verbleibt im Feld der resultierenden Anionenvakanz und bildet das F-Zentrum an dem Gitterplatz, an dem das Exciton zerfallen ist. Der gesamte Vorgang der Dissoziation eines Excitons in Gitterdefekte ist in Bild 2 mit den zugehörigen Energieniveaus für KCl dargestellt /ELA 91/. Über Ersetzungsstoßfolgen, die entlang  $\langle 110 \rangle$  mit dem geringsten Verlust an Transversalenergie ablaufen, kann das H-Zentrum von seinem Erzeugungspunkt weiterwandern, wodurch sich das Defektpaar mit gewisser Wahrscheinlichkeit ausreichend weit voneinander entfernen kann (Abstand größer als der Radius des spontanen Rekombinationsvolumens). Der erzielte Abstand hängt vom instantanen Ladungszustand des wandernden Ions ab (neutral wäre optimal) und dem Verhältnis

vom ionischen Abstand zum Ionendurchmesser (Fokussierungsparameter) ab /AGU 88/.

Sobald sich das H-Zentrum von dem F-Zentrum um eine Strecke größer als der Gitterkonstanten  $a$  entfernt hat, ist die Energie dieses F-H-Paares höher als die Energie eines  $v_a$ -I-Paares von geladenen Zentren. In dem Entfernungsbereich, in dem diese Energien ungefähr gleich sind, ist es sehr wahrscheinlich, daß ein Elektron, das hauptsächlich in der Nähe der Anionenvakanz lokalisiert ist, auf das H-Zentrum übertragen wird und so ein  $\alpha$ -I-Zentrenpaar gebildet wird. Das bedeutet, daß bei einem Zerfall des Excitons sowohl F-H- als auch  $\alpha$ -I-Paare gebildet werden.

Der Zerfall eines Excitons und die Rekombination eines Elektrons mit einem selbst-lokalisierten Loch führt in Alkalihalogenidkristallen also in einer kurzen Zeit von  $10^{-11}$ s zu geladenen und neutralen Defektpaaren (F- und H-Zentren sowie  $\alpha$ - und I-Zentren).



**Bild 2** Dissoziation eines Excitons in die Gitterdefekte beim KCl-Kristall. Die schraffierten Bereiche stellen den ungefähren Bereich der Lokalisation eines schwach-gebundenen Elektrons dar (aus /ELA 91/).

Bei den radiolytisch erzeugten Strahlendefekten in Alkalihalogeniden handelt es sich im wesentlichen um Frenkel-Defekte. Bei diesen Gitterdefekten verbleiben die Atome, die ihren angestammten Gitterplatz verlassen haben, im Kristall auf Zwischengitterplätzen. Die daraus folgende Änderung des Kristallvolumens  $\Delta V$  steht in folgender Beziehung zur Änderung der Gitterkonstanten  $\Delta a$ :

$$\frac{\Delta V}{3V} = \frac{\Delta a}{a} \quad (1)$$

Schottky-Defekte entstehen dagegen durch Auswandern von Atomen auf die Kristall-/Kornoberfläche, wo sie eine neue ungestörte Gitterlage aufbauen. Hierbei ergibt sich die relative Änderung im Gesamtvolumen des Kristalls im Relation zur Änderung der Gitterkonstanten zu

$$\frac{\Delta V}{3V} = \left( 1 + \frac{v}{\Delta v_v} \right) \cdot \frac{\Delta a}{a} \quad (2)$$

Durch unabhängige Messungen der Volumenänderung  $\Delta V$  und der Änderung der Gitterkonstanten  $\Delta a$  eines Kristalls ist es daher möglich, eindeutig die Natur von Defekten zu identifizieren. Auf diese Weise wurden nachgewiesen, daß bei Röntgenbestrahlung von Alkalihalogeniden Frenkel-Defekte entstehen /BAL 68/. Die relativen Änderungen in der Probenlänge und in der Gitterkonstanten sind innerhalb der experimentellen Genauigkeit identisch. Diese Ergebnisse schließen die Erzeugung von Schottky-Effekten, die bei thermischer Aktivierung in Metallen auftreten, aus. Die additive Färbung von Alkalihalogenidkristallen durch Eindiffundieren von Alkalimetalldämpfen erzeugt dagegen eindeutig Schottky-Defekte (siehe Bild **A-3**).

### 2.2.2 Bildung von Defektaggregaten

Das weitere Schicksal der über den Radiolyseprozeß entstandenen primären Defekte, d. h. der F- und H-Zentren, ist von einer Reihe von Faktoren abhängig. Aufgrund der Translationssymmetrie des Kristallgitters kann ein Defekt eine große Anzahl gleichwertiger Gitterpositionen einnehmen, die durch Energiebarrieren getrennt sind, die durch thermische Gitterschwingungen überwunden werden können.

Die Beweglichkeiten der beiden primären Defekte sind sehr unterschiedlich. Die Wanderungsenthalpien für Leerstellen im Kationenuntergitter,  $v_o$ , bzw. für Leerstellen im Halogeniduntergitter,  $v_a$ , betragen beim NaCl 0,69 bzw. 0,77 eV, und liegen für F-Zentren in derselben Größenordnung. Sie können daher erst bei Raumtemperatur oder höheren Temperaturen wandern. Zwischengitteratome bzw. -moleküle, in deren Umfeld die elastische Gitterverzerrung wesentlich größer ist, sind dagegen erheblich beweglicher und beginnen bereits bei Temperaturen um 30 K zu wandern.

Bei seiner Wanderung durch das Kristallgitter kann ein Defekt auf einen anderen räumlich getrennten primären Defekt oder auf lokalisierte strahleninduzierte bzw. ursprünglich im Kristall vorhandene Defekte treffen und mit diesen in Wechselwirkung treten. Dies führt zur Verringerung von freien primären Defekten. Diese Prozesse laufen selbst bei moderaten Temperaturen diffusionskontrolliert ab.

Das weitere Schicksal der primären Defekte hängt davon ab, welche Reaktionspartner bei der Diffusion durch den Kristall angetroffen werden. Trifft ein H-Zentrum auf ein F-Zentrum, rekombinieren beide Defekte unter gegenseitiger Auslöschung mit Energiefreisetzung miteinander, wobei wieder das ursprüngliche Kristallgitter ausgebildet wird. Treffen dagegen zwei gleichartige Defekte zusammen, führen Austauschwechselwirkungen zu einer Bindung zwischen den Defekten. So besitzen zwei F-Zentren, die zwei benachbarte Plätze im Anionengitter besetzen, eine Bindungsenergie von ca. 0,5

- 1,0 eV. Durch Anlagerung weiterer Defekte an solche Defektpaare bilden sich größere Defektaggregate. Im Falle der F-Zentren führt dies zur Bildung von Natrium-Kolloiden, die H-Zentren lagern sich zu zunehmend komplexen Polyhalogenen zusammen. Zwei H-Zentren bilden ein neutrales  $\text{Cl}_2$ -Molekül oder ein  $\text{Cl}_3^-$ -Quasimolekül, vier H-Zentren bilden  $\text{X}_5^-$  usw. bis der Defektcluster so groß wird, daß er als Gasblase aus  $(\text{Cl}_2)_n$  betrachtet werden kann. Dieser Vorgang läuft an Versetzungen (Stufenringen) ab, die dadurch vergrößert werden.

### 2.3 Mathematische Modelle zur Beschreibung der Strahlenschädenbildung

Zur mathematischen Beschreibung des Einflusses der Parameter  $\gamma$ -Dosisleistung, Temperatur, Verunreinigungen usw. auf die Bildung von Defektaggregaten sind verschiedene Ansätze entwickelt worden. Die Theorien können in drei allgemeine Kategorien eingeordnet werden:

- Ein makroskopischer Ansatz basiert auf kinetischen Gleichungen, die die Änderungen der makroskopischen Konzentrationen der primären Defekte und ihrer Aggregate als Funktion der Zeit beschreiben. Die Konzentrationen werden über das gesamte Volumen des Kristalls gemittelt und hängen nicht von der Position der Defekte ab. Auf diesem Ansatz basieren die Jain-Lidiard-Theorie (JL-Theorie) /JAI 77, LID 79/ und die von den Hartog und seinen Mitarbeitern /SEI 92/ sowie von Soppe /SOP 93, SOP 94b/ vorgenommenen Erweiterungen. Die prinzipielle Schwäche der makroskopischen Ansätze liegt in der Verwendung phänomenologischer Parameter, besonders Geschwindigkeitskonstanten, die als zeit- und konzentrationsunabhängig angesetzt werden. Ferner werden mehrere Parameter benötigt, deren Werte bisher weder experimentell noch theoretisch genau bestimmt worden sind. Trotz dieser Einschränkungen sind diese Ansätze recht erfolgreich in der Beschreibung vieler wesentlicher Aspekte der Radiolyseprozesse in Alkalihalogeniden und insbesondere im NaCl.
- Beim mesoskopischen Ansatz /KOT 93, KOT 94, SOP 94a/ der Defektakkumulation und der Clusterbildung wird die Verteilung der Punktdefekte durch eine raumabhängige lokale Konzentration der Leerstellen ( $v$ ) und der auf Zwischengitterplätzen sitzenden Atome ( $i$ ) charakterisiert. Die Rekombinationskinetiken werden über eine 'mean field procedure' genannte mathematische Operation behandelt, bei der die räumlichen Korrelationen zwischen den Defekten und ihr Einfluß auf die Reaktionskinetik nicht berücksichtigt werden. Dieser Ansatz sagt voraus, daß eine nicht-homogene Verteilung auftreten kann, wenn elastische Anziehungskräfte zwischen den Punktdefekten betrachtet werden. Diese nicht-homogene Verteilung, die eine Clusterbildung von gleichartigen Defekten bedeutet, erscheint als Bruch der Translationssymmetrie der Defektverteilung, die durch das Auftreten von räumlichen Modulationen der durchschnittlichen Defektkonzentrationen verursacht wird.

- Beim mikroskopischen Ansatz /KUZ 88, KUZ 93, KUZ 95/ wird die Defektverteilung durch die Defekt-Defekt-Korrelationsfunktionen beschrieben. Damit kann die unterschiedliche räumliche Verteilung von ähnlichen ( $i-i$ ) ( $v-v$ ) und unähnlichen ( $v-i$ ) Defekten berücksichtigt werden und so der Einfluß von Defektkorrelationen auf die Rekombinationsgeschwindigkeiten eingeführt werden. Mit diesem Ansatz kann gezeigt werden, daß aufgrund der Natur der Rekombinationsprozesse auf mikroskopischer Skala eine Tendenz zugunsten der Clusterbildung von ähnlichen Defekten besteht.

Allen Ansätzen ist gemeinsam, daß sie in Übereinstimmung mit experimentellen Daten die Existenz einer kritischen Dosisleistung für die Aggregation der Defekte vorhersehen, die sich mit zunehmender Temperatur erhöht. Ferner wird für eine gegebene Dosis und Dosisleistung eine glockenförmige Abhängigkeit der Defektbildung von der Temperatur und entsprechend bei gegebener Dosis und Temperatur von der Dosisleistung vorhergesagt. Allerdings treten zwischen den verschiedenen Modellen noch große quantitative Unterschiede auf. Die mesoskopischen und mikroskopischen Ansätze zeigen, daß die elastische Wechselwirkung zwischen Strahlendefekten eine entscheidende Rolle für die Bildung von Defektaggregaten spielt /KOT 95/. Die auf dem mesoskopischen und mikroskopischen Ansatz beruhenden Modelle sind vielversprechende Ansätze, da sie keine phänomenologischen Parameter enthalten. Allerdings befinden sich diese Theorien noch weitgehend im Entwicklungsstadium und sind noch nicht gegen experimentelle Daten validiert.

Bisher sind die auf dem makroskopischen Ansatz basierenden Theorien hinsichtlich der Richtigkeit der Modellvorhersagen am erfolgreichsten. Diese Modelle sind im Statusbericht von 1993 /GIE 93/ ausführlich beschrieben worden. Hier wird kurz auf das Soppe-Modell eingegangen, da damit die Modellrechnungen mit realistischen Randbedingungen durchgeführt wurden, die im Kap. 4 beschrieben werden.

Das Soppe-Modell stellt eine Weiterentwicklung der ursprünglichen JL-Theorie dar, da die JL-Theorie nicht richtig den Einfluß von größeren Konzentrationen an Verunreinigungen und Versetzungen auf das Kolloidwachstum beschreiben kann. Außerdem wird die Nukleationsphase für das Kolloidwachstum nicht modelliert sondern über einen zu einfachen Ansatz berücksichtigt. Das Soppe-Modell ähnelt dem Modell von Groote und Weerkamp /SEI 92/, unterscheidet sich von diesem aber in einigen wesentlichen Details. Es weist folgende Merkmale auf:

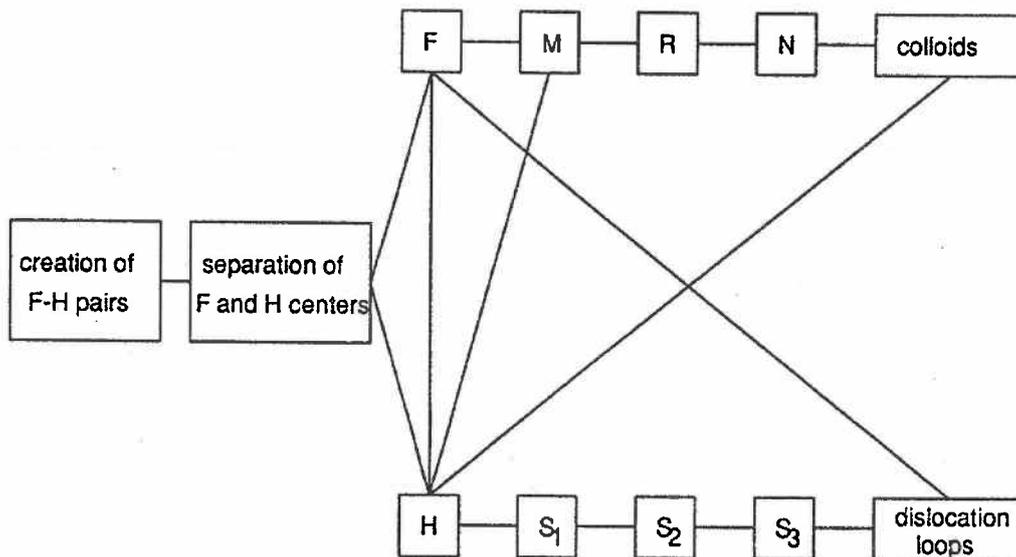
- Einfang der F-Zentren und Kolloidwachstum. F-Zentren lagern sich zusammen, wobei sukzessive  $F_2^-$ ,  $F_3^-$  und  $F_4^-$ -Zentren gebildet werden. Die  $F_4^-$ -Zentren werden als Keim für das Kolloidwachstum durch homogene Nukleation betrachtet. Zusätzlich wird eine bestimmte Anzahl von heterogen erzeugten Keimen durch Anlagerung von F-Zentren an andere Stellen angenommen. Die Aggregation von F-Zentren zu Kolloiden erfolgt über ungerichtete Diffusion (random-walk).

- Einfang von H-Zentren durch Verunreinigungen. Dieser Vorgang führt zur Bildung von  $S_1$ ,  $S_2$  und  $S_3$ -Komplexen, die durch sukzessive Anlagerung von H-Zentren entstehen. Das  $S_3$ -Zentrum wird als Beginn einer neuen Versetzungslinie betrachtet.
- Wachstum der Dislokationsstufen und Bildung von molekularem Chlorgas. Dislokationen reagieren mit F- und H-Zentren, wobei allerdings die Wechselwirkung mit Defekten an Leerstellen geringer ist als mit Defekten, die an Zwischengitterplätze gekoppelt sind. Bei der Bildung eines molekularen  $Cl_2$  durch Reaktion zweier H-Zentren wird ein NaCl-Molekül aus seiner Gitterposition verdrängt und auf Zwischengitter-Stufenringe verdrängt, wodurch perfekte Versetzungsringe entstehen.
- Rekombination. Freie F- und H-Zentren rekombinieren innerhalb eines bestimmten Radius miteinander. Außerdem wird davon ausgegangen, daß F-Zentren mit molekularen  $Cl_2$ -Zentren reagieren und daß H-Zentren mit F-Zentren rekombinieren können, die thermisch aus Kolloiden abgespalten worden sind. Die erste Rekombination führt eine starke Dosisleistungsabhängigkeit auf das Kolloidwachstum ein; die beiden anderen Rekombinationsreaktionen führen dazu, daß keine Kolloidbildung bei hohen Temperaturen auftritt. Wegen der geringen Konzentrationen an S-Zentren kann die Rekombination mit F-Zentren vernachlässigt werden. Die Rekombination von H-Zentren mit  $F_2$ -Zentren wird explizit berücksichtigt, die Rekombination von H-Zentren mit  $F_3$ -Zentren und  $F_4$ -Zentren wird über deren Bildungsgeschwindigkeiten berücksichtigt.

Die Unterschiede des Soppe-Modells zur JL-Theorie liegen in der Akkumulation von F-Zentren in  $F_2$ -,  $F_3$ - und  $F_4$ -Zentren und im Einfang von H-Zentren durch Verunreinigungen, die zu  $S_1$ -,  $S_2$ - und  $S_3$ -Zentren führen. Der Reaktionsmechanismus, der in Bild 3 zu sehen ist, führt zu unterschiedlichen Geschwindigkeitsgleichungen für jede Defektart (siehe /SOP 93/). Einige Modellparameter wurden durch Anpassung an experimentelle Daten ermittelt. Die meisten relevanten Parameter weisen dieselben oder ähnliche Werte wie bei der JL-Theorie auf (siehe Vergleich in /GIE 93/).

Die Gültigkeit des Soppe-Modells wurde durch umfangreiche Vergleiche mit verschiedenen veröffentlichten experimentellen Daten getestet /SOP 93, SOP 95, DON 96c/. Es erklärt recht gut die folgenden experimentellen Befunde zur Strahlenschädigung des NaCl, die z.T. durch die JL-Theorie nicht abgedeckt wurden:

- Die Zunahme der F-Zentrenkonzentration mit der Dosis bei einer Dosisleistung von  $1 \cdot 10^2$  Gy/h zeigte eine zufriedenstellende Übereinstimmung mit experimentellen Daten.



**Bild 3** Schematische Darstellung des Soppo-Modells (aus /SOP 93/)

- Die Abhängigkeit der Sättigungskonzentration der F-Zentren von der Temperatur bei einer Dosisleistung von  $1 \cdot 10^6$  Gy/h wird korrekt wiedergegeben.
- Das Modell sagt den experimentell beobachteten linearen Zusammenhang zwischen dem Quadrat der Konzentration an F-Zentren und der Konzentration an F<sub>2</sub>-Zentren bei Raumtemperatur voraus.
- Das Na-Kolloidwachstum durch Aufheizen von bei tiefen Temperaturen bestrahlten NaCl-Kristallen und das Verhalten von F-Clustern (bis Temperaturen von ca. 150 °C) wird gut beschrieben.
- Die Zunahme der Konzentration an Na-Kolloiden mit der Dosis bei Dosisleistungen im Bereich zwischen  $1 \cdot 10^5$  und  $1 \cdot 10^6$  Gy/h und Temperaturen im Bereich zwischen 95 °C und 144 °C wird gut wiedergegeben.
- Die Temperaturabhängigkeit der Kolloidbildung im Temperaturbereich zwischen 60 und 150 °C bei einer Dosisleistung von  $1,2 \cdot 10^5$  Gy/h zeigt eine gute Übereinstimmung mit experimentellen Daten. Die Kolloidausbeute als Funktion der Temperatur weist einen glockenförmigen Verlauf auf. Das bedeutet, daß für eine gegebene  $\gamma$ -Dosisleistung und Dosis bei einer bestimmten Temperatur die maximale Kolloidbildung auftritt.
- Die Verringerung der Beweglichkeit von H-Zentren durch Einfang (z.B. durch Verunreinigungen wie Fremdatome im Kristallgitter) führt zu einem verstärkten Wachstum

von Na-Kolloiden. Für geringere Dosisleistungen ist der Einfluß von Verunreinigungen geringer.

- Für eine gegebene Temperatur gibt es eine optimale  $\gamma$ -Dosisleistung für die Kolloidbildung, die sich mit abnehmender Temperatur zu kleineren Dosisleistungen verschiebt. Bei ihrer jeweils optimalen  $\gamma$ -Dosisleistung werden bei niedrigeren Temperaturen mehr Strahlenschäden gebildet als bei höheren.
- Nach dem Soppe-Modell besteht eine etwas geringere Dosisleistungsabhängigkeit als bei der JL-Theorie. So erhöht sich die maximale Strahlenschädigung um einen Faktor 1,5 (bei JL-Theorie 4), wenn sich die Dosisleistung um den Faktor 10 verringert.
- Für jede Temperatur gibt es eine kritische minimale Dosisleistung  $K_{\text{krit}}$ . Das Kolloidwachstum ist nur oberhalb dieses Schwellenwertes zu beobachten. Der Schwellenwert sinkt mit abnehmender Dosisleistung.

Kürzlich wurden einige Parameterwerte des Soppe-Modells kritisch bewertet und angepaßt /DON 96c/. Danach ist die Wahrscheinlichkeit für die Rückreaktion zwischen F-Zentren und den Chloransammlungen anders als ursprünglich angenommen. Die Wahrscheinlichkeit diese Reaktion folgt einem Arrheniusansatz der Form

$$\gamma = \gamma_0 \exp\left(\frac{-E_\gamma}{kT}\right) \quad (3)$$

Auf der Basis neuer Erkenntnisse schlossen die Autoren, daß der ursprüngliche Wert für den Vorfaktor von  $10^{18} \text{ cm}^{-2}$  zwei Größenordnungen zu groß ist. Der Vorfaktor sollte im Bereich von  $10^{16} \text{ cm}^{-2}$  liegen, was ein normaler Wert für Reaktionen zwischen Punktdefekten ist. Aus entsprechenden Meßdaten wurde der Wert der Aktivierungsenergie zu  $E_\gamma = 0,4 \text{ eV}$  ermittelt.

Ein weiteres Problem beim Vergleich der theoretischen Modelle mit den experimentellen Daten stellt der Umrechnungsfaktor zwischen Defektkonzentration und gespeicherter Energie dar, für den sehr unterschiedliche Werte angegeben werden. Durch eine kritische Würdigung der Randbedingungen und Annahmen bei den verschiedenen Ableitungen des Umrechnungsfaktors konnte gezeigt werden, daß ein Wert von  $82,5 \text{ J/g}$  pro  $1 \text{ mol-\%}$  Na-Kolloid verwendet werden sollte. Dieser Wert entspricht einer Energie zur Erzeugung eines F-H-Defektpaares von  $5 \text{ eV}$ .

Es wurde gezeigt, daß die Sättigungskonzentration für die Na-Kolloide im wesentlichen von den folgenden Parametern der Soppe-Theorie abhängt: der maximalen Versetzungslinienlänge  $\rho_m$ , der Wahrscheinlichkeit für die Rückreaktion zwischen F-Zentren und  $\text{Cl}_2$ -Molekülen ( $\gamma$ ) und dem Unterschied der Koeffizienten für die Reaktion

zwischen F-Zentren und H-Zentren mit Versetzungen ( $z_H - z_F$ ) abhängt. Obwohl die jeweiligen Parameterwerte nicht sehr genau bekannt sind, ergibt sich eine gute Übereinstimmung der Modellergebnisse mit den verfügbaren experimentellen Daten. Dabei zeigt sich, daß die Modellvorhersagen konservativ sind, also das Ausmaß der Schädigung jeweils überschätzt wird.

Auf dieser Basis wurde von den Autoren die Schlußfolgerung gezogen, daß eine abschließende Bewertung der Zuverlässigkeit der Modellvorhersagen unter Endlagerbedingungen noch nicht möglich ist. Sie hielten es aber für äußerst unwahrscheinlich, daß das Soppe-Modell eine Unterschätzung der Strahlenschädenbildung liefert.

Einige Parameter des Soppe-Modells, wie z.B. die Dissoziationsgeschwindigkeiten von Clustern mit mehr als zwei F-Zentren, benötigen weitere Verbesserungen /SOP 95/. Außerdem sind weitere experimentelle Untersuchungen zur Natur der Rückreaktion und zur Bestimmung der maximalen Versetzungslinienlänge notwendig.

### **3 Experimentelle Ergebnisse zur Strahlenschädenbildung in Steinsalz**

#### **3.1 Kriterien zur Verwendbarkeit der experimentellen Daten**

Wie in Kap. 1 dargelegt ist es ein Ziel der wissenschaftlichen Arbeiten, die Vorhersagen der theoretischen Modelle zur Strahlenschädenbildung durch einen Vergleich mit experimentellen Daten zu überprüfen. Um zu bewerten, ob experimentelle Untersuchungsergebnisse für solch einen Vergleich herangezogen werden können, sollten gewisse Anforderungen erfüllt sein:

- Die Zuordnung der experimentellen Daten zu bestimmten physikalischen Vorgängen sollte nachprüfbar richtig sein oder aber aufgrund der Originaldaten nach dem heutigem Stand der Wissenschaft korrigiert werden können. Dies gilt besonders für Aussagen, die auf optischen Daten von Defektstrukturen basieren.
- Die experimentellen Randbedingungen, wie z.B. die Temperaturen und die  $\gamma$ -Dosisleistung, sollten während der Bestrahlung möglichst konstant gewesen sein. Dies erleichtert häufig einen direkten Vergleich mit Modellrechnungen.
- Bei der experimentellen Untersuchung der Induktionsphase, in der die Nukleation der Defektaggregate erfolgt, sollten die Konzentrationen der verschiedenen Elektronenzentren ( $F$ ,  $F_2$ ,  $F_3$  und Kolloid) in Abhängigkeit von der Dosis bestimmbar sein. Der Dosisbereich sollte sich nach Möglichkeit bis zu  $10^6$  Gy erstrecken.
- Um Aussagen zur Abhängigkeit der Bildung molekularer Defektaggregate von der  $\gamma$ -Dosis treffen zu können, sollte diese größer als  $5 \cdot 10^7$  Gy sein, da Strahlenschäden – wenn überhaupt – erst bei  $\gamma$ -Dosen von  $>10^6$  Gy gebildet werden. Erst in diesem Dosisbereich ist sichergestellt, daß die Induktionsphase abgeschlossen und eine genügend große Anzahl von Nukleationszentren für Defektaggregate entstanden sind.
- Die Strahlenschädenbildung sollte nach Möglichkeit für eine gegebene Kombination von Randbedingungen über einen gewissen Dosisbereich gemessen worden sein, um Trendaussagen machen zu können.
- Die Untersuchungen sollten in einem Temperaturbereich zwischen 0 und 250 °C durchgeführt werden, da die den Modellrechnungen zugrundeliegenden makroskopischen Theorien verschiedene phänomenologische Parameter enthalten.

An die Meßmethoden zur Bestimmung der Strahlenschädigung, die bei den experimentellen Untersuchungen verwendet werden, sind ebenfalls gewisse Anforderungen zu stellen /GIE 93/:

- Vor der eigentlichen Messung sollte keine bzw. nur eine geringe Vorbehandlung der Proben erforderlich sein.
- Die Nachweismethode darf nicht durch Matrixeinflüsse beeinträchtigt werden. Die Messung muß an natürlichen Salzproben möglich sein, d.h. an Proben, die polykristallin sind und neben Halit weitere Mineralphasen enthalten.
- Die Bestimmung der Strahlenschäden sollte auch in einem Volumenelement möglich sein, um mögliche Einflüsse durch die Probenoberfläche zu verhindern.
- Die Meßmethode muß kalibrierbar sein.

### **3.2 Bewertung der russischen Daten**

Im Auftrag des BMBF wurde eine Literaturrecherche erstellt /SCH 94/, in der die erstmals zugänglich gewordenen Literaturdaten des russischen Sprachraumes auf dem Gebiet der Wechselwirkung energiereicher, ionisierender Strahlung mit Steinsalz übersetzt und zusammengefaßt wurden. Insgesamt wurden 121 veröffentlichte und unveröffentlichte Literaturstellen zu dem Problemkreis ausgewertet, von denen 53 bezüglich der Daten, Versuchsbedingungen oder Modellannahmen konkrete Anhaltspunkte gaben.

Eine Interpretation der Ergebnisse auf der Basis der heute akzeptierten Modellvorstellungen zum Radiolysemechanismus und eine Umrechnung der verschiedenen physikalischen Einheiten auf SI-Einheiten wurde im Rahmen der Literaturrecherche nicht durchgeführt. Da gerade in den älteren Arbeiten die dortigen Schlußfolgerungen aus heutiger Sicht nicht immer korrekt sind, wurden die Ergebnisse im einzelnen bewertet, um sie mit den übrigen Daten zur Strahlenschädenbildung zusammenzuführen. Die Auswertung erfolgte auf der Basis der im Kap. 3.1 genannten Anforderungen. Die einzelnen Literaturstellen sind ausführlich in /SCH 94/ beschrieben. Hier werden nur die Literaturstellen noch einmal aufgeführt, die verwendbare Daten im Bezug auf die Strahlenschädenbildung bei endlager-relevanten Randbedingungen oder für die Ableitung von Modellparametern liefern.

Die 53 genauer betrachteten Literaturstellen können in verschiedene Gruppen aufgeteilt werden:

- Arbeiten, in denen die Defektstrukturen und ihre optischen Absorptionen identifiziert und der Mechanismus der Strahlenschädenbildung untersucht wurden.
- Arbeiten, in denen die Konzentrationen von primären Defekten (hauptsächlich F-Zentren) in Abhängigkeit von Dosis und Temperatur untersucht wurden.
- Arbeiten, in denen die Strahlenschädenbildung für den endlager-relevanten Dosis- und Temperaturbereich untersucht wurde.
- Arbeiten mit additiv gefärbten Kristallen.

In ungefähr der Hälfte der Arbeiten wurde die Entstehung von primären Strahlendefekten und die Bildung der molekularen Bestrahlungsprodukte bei unterschiedlichen Randbedingungen und mit verschiedenen physikalischen und chemischen Methoden untersucht. Im allgemeinen stehen die erzielten Ergebnisse in Übereinstimmung mit den in Kap. 2 beschriebenen, heute gültigen Modellvorstellungen zur Bildung von Defektaggregaten. Neue Erkenntnisse traten bei der Überprüfung und Auswertung dieser Arbeiten nicht auf.

Ein weiterer Teil der Arbeiten befaßt sich mit den Strukturen der Farbzentren und deren Entwicklung von Primärdefekten zu Defektaggregaten. Dabei wurden die Kristalle in vielen Fällen nach der Bestrahlung, die bei niedrigen Temperaturen erfolgte, bei hohen Temperaturen getempert und es wurde die Ausheilung der Defekte, hauptsächlich der F-Zentren, über optische Absorptionmessungen verfolgt. Die Aktivierungsenergien für diese thermische Ausheilung der F-Zentren, die über Diffusionsvorgänge abläuft, werden mit 0,9 eV /GEO 80/ bzw. 0,78 eV /ARA 91/ angegeben. Sie sind damit in Übereinstimmung mit dem in den Modellen verwendeten Wert von 0,8 eV für den Diffusionskoeffizienten der F-Zentren.

Durch Nachrechnungen der Aufheizversuche mit den theoretischen Modellen können diese Daten zur Überprüfung der kinetischen Modellparameter herangezogen werden. Voraussetzung ist, daß die Verringerung der F-Zentrenkonzentrationen über die Zeit bei konstanter Temperatur oder bei konstanter Aufheizrate über die Temperatur verfolgt werden. Ähnliche Versuche wurden kürzlich beschrieben /INA 94/ und wurden mit dem Soppe-Modell nachgerechnet /SOP 95/. Von /LUT 64/, /GEO 80/ und /ARA 91/ wurde die Kinetik des Verschwindens von F-Zentren bei der Aufheizung von Kristallen, die bei ca. 295 K bestrahlt worden sind, optisch verfolgt. Da die Temperung in diesen Versuchen jeweils auf unterschiedliche Weise durchgeführt wurde, ermöglichen diese Ergebnisse eine unabhängige Überprüfung der Modellparameter des Soppe-Modells.

Eine Reihe von Ergebnissen können verwendet werden, um die Parameter in den theoretischen Modellen zu überprüfen bzw. besser anzupassen. An dieser Stelle kann

nur auf diese Möglichkeit hingewiesen werden, da dem Autor die Rechenprogramme nicht zur Verfügung stehen:

*Versetzungsliniendichte pro Volumeneinheit:* Dieser Wert nimmt linear mit der Dosis im Bereich zwischen  $10^6$  und  $10^8$  Gy zu /GEK 84/.

*Anzahl der Na-Kolloidteilchen pro  $cm^3$ :* Im Temperaturbereich oberhalb von  $200\text{ °C}$  wurde dieser Wert für Kristalle, die im Elektronenbeschleuniger (Dosisleistung wahrscheinlich  $>10^6$  Gy/h) mit  $1\cdot 10^8$  Gy bestrahlt wurden, ermittelt /RAB 80/. Er liegt bei ca.  $10^{14}$  und damit mindestens eine Größenordnung unterhalb des Anfangswertes, der beim Soppe-Modell verwendet wird. In der jetzigen Form des Soppe-Modells kann aber die Anzahl der Kolloidteilchen nicht unter den Ausgangswert sinken.

Nur in sechs Arbeiten wurde die Strahlenschädenbildung bei relativ hohen Dosen ( $>10^7$  Gy) und endlager-relevanten Temperaturen untersucht. Allerdings sind nur sehr wenige quantitative Daten zu den erzeugten Mengen an Na-Kolloiden angegeben. Eine Umrechnung der veröffentlichten Absorptionsspektren für die Na-Kolloidbande in Defektkonzentrationen mit Hilfe der Smakula-Formel wurde wegen der meist unklaren Randbedingungen und der in /SCH 94/ ausführlich beschriebenen Gründe nicht vorgenommen. Die Bildung von Na-Kolloiden ist generell erst ab einer  $\gamma$ -Dosis oberhalb von  $1\cdot 10^6$  Gy zu beobachten. Die maximale Kolloidbildung erfolgte bei einer sehr hohen Dosisleistung von  $3,6\cdot 10^7$  Gy/h und einer Dosis von  $1\cdot 10^8$  Gy bei ca.  $150\text{ °C}$  /OZE 79/. Das Maximum der Kolloidbildung ist zu höheren Temperaturen verschoben als bei geringeren Dosisleistungen. Qualitativ stimmt dieser Befund mit dem Soppe-Modell überein, nach dem bei einer Dosisleistung von  $10^6$  Gy/h die maximale Kolloidbildung bei ca.  $120\text{ °C}$  auftritt und die Erhöhung der Dosisleistung um eine Größenordnung die Temperatur sich um ca.  $25 - 30\text{ °C}$  erhöht.

Die Arbeiten mit additiv gefärbten Kristallen wurden nicht weiter ausgewertet, obwohl in diesen Arbeiten u.a. kinetische Untersuchungen zur Reaktion zwischen Defekten sowie zur thermischen Abspaltung von F-Zentren aus Natriumkolloiden durchgeführt wurden. Da aber beim Eindiffundieren des Metaldampfes Schottky-Defekte erzeugt werden, während durch Bestrahlung mit Röntgen- oder  $\gamma$ -Quanten Frenkel-Defekte entstehen (siehe Kap. 2.2.1) und additiv gefärbte Kristalle weder H-Zentren noch die daraus entstehenden molekularen Aggregate enthalten, sind Aussagen zur Kinetik der thermischen Ausheilung von Defekten nicht zu verwenden.

Die Anzahl der verwertbaren Daten der vor kurzem zugänglich gewordenen Ergebnisse aus dem russischen Sprachraum ist insgesamt leider relativ gering. Bei den meisten Untersuchungen standen ganz offensichtlich Fragen des Bildungsmechanismus und der optischen Eigenschaften von primären Defekten und Defektaggregaten unter bestimmten Randbedingungen im Vordergrund. Darüber hinaus fehlen bei einigen Literaturstellen genaue Angaben der experimentellen

Randbedingungen. Somit gibt es nur wenige neue quantitative Daten. Diese jedoch ergänzen die bisherigen Daten bzw. füllen vorhandene Lücken aus.

### 3.3 Neuere Untersuchungen in EU-Ländern seit 1993

In den letzten drei Jahren wurden speziell nach der vorzeitigen Beendigung des HAW-Projektes Ende 1992 in den Niederlanden, Spanien und Deutschland umfangreiche Laborbestrahlungsprogramme durchgeführt, um weitere Daten zu gewinnen. Die Ergebnisse sind in einem Berichtsband ausführlich dokumentiert /GAR 96/. Die Arbeitsgruppe von Prof. den Hartog an der Universität Groningen hat in den letzten Jahren mit einem Elektronenbeschleuniger ebenfalls weitere Bestrahlungsuntersuchungen an dünnen Spaltplättchen durchgeführt. Diese Ergebnisse sind in einer Reihe von Veröffentlichungen wiedergegeben /GRO 94, SEI 94a, SEI 94b, WEE 94/. Aus der Fülle der Daten soll hier nur auf wenige relevante Punkte eingegangen werden.

Ein Hauptaugenmerk der Untersuchungen lag auf der Fragestellung, ob und wenn ja auf welchem Niveau eine Sättigung in der Strahlenschädigung bei hohen  $\gamma$ -Dosen auftritt. Zusätzlich sollte die Frage beantwortet werden, bei welcher Temperatur das Maximum der Strahlenschädigung zu beobachten ist. Außerdem wurde der Einfluß der Dosisleistung, der Spannung und des Einbaus von Verunreinigungen auf die Kolloidbildung genauer untersucht.

Die meisten Bestrahlungen erfolgten durch abgebrannte Brennelemente im Abklingbecken des High Flux Reactor (HFR) in Petten, Niederlande. Zur Erreichung hoher Dosen wurden alle 28 Tage neue Brennelemente aus dem Reaktorkern entnommen. Bei Verwendung dieser frisch bestrahlten Brennelemente lag die Dosisleistung bei ca.  $2 \cdot 10^5$  Gy/h. Sie nahm anschließend über einen Zeitraum von 28 Tagen auf  $2 \cdot 10^4$  Gy/h ab und lag im Mittel bei  $5 \cdot 10^4$  Gy/h /GAR 96/. Bei den Bestrahlungen mit dem Elektronenbeschleuniger wurden dünne Spaltplättchen bei einer Temperatur zwischen 20 und 150 °C und Dosisleistungen zwischen  $4 \cdot 10^4$  und  $2,5 \cdot 10^6$  Gy/h mit einer Dosis zwischen  $5 \cdot 10^7$  und  $1,5 \cdot 10^9$  Gy bestrahlt.

Die Dosisabhängigkeit der Energiespeicherung wurde bei 100 °C für verschiedene, natürliche und künstliche NaCl-Proben bis zu einer maximalen  $\gamma$ -Dosis von  $1,2 \cdot 10^9$  Gy bestimmt /DON 96b/. Die Ergebnisse sind im Bild A-4 dargestellt. Bis zu einer Dosis von  $4 \cdot 10^8$  Gy ist ein linearer Zusammenhang zwischen Dosis und gespeicherter Energie zu beobachten. Bei noch höheren Dosen wird Sättigung bei einer gespeicherten Energie von ca. 150 J/g erreicht. Zum Vergleich sind andere experimentelle Daten ebenfalls im Bild A-4 eingezeichnet. Eine gute Übereinstimmung ist mit den Daten von Jenks und Bopp /JEN 74, JEN 77/ für reine NaCl-Proben zu beobachten. Die Daten von den Hartog et al. /HAR 93/ liegen dagegen deutlich höher

und zeigten keine Sättigung bei hohen Dosen. In diesen Untersuchungen wurden K-dotierte NaCl-Proben verwendet, die nicht repräsentativ für natürliche NaCl-Proben sind. Die Gründe sind in /GIE 93/ bereits ausführlich diskutiert.

Ferner wurden natürliche Salzproben aus dem ehemaligen Salzbergwerk Asse im Temperaturbereich zwischen 100 °C und 250 °C  $\gamma$ -bestrahlt /MÖN 96/. Die Dosis wurde zwischen  $10^6$  und  $10^8$  Gy variiert. Die Bestrahlungen erfolgten ebenfalls durch abgebrannte Brennelemente im Abklingbecken des High Flux Reactor (HFR) in Petten, Niederlande. Die Dosisleistung lag im Mittel bei  $5 \cdot 10^4$  Gy/h. In diesen Untersuchungen wurde sowohl die Menge an Na-Kolloid, die Menge des gebildeten Chlorgases als auch die gespeicherte Energie gemessen. Die Bestimmung der molekularen Bestrahlungsprodukte erfolgte über die Detektion der spezifischen Produkte ( $H_2$  und Hypochlorid), die bei der chemischen Umsetzung des bestrahlten Salzes mit Wasser entstehen. Die Ergebnisse belegen zweifelsfrei die Äquivalenz der strahleninduzierten Bildung von verschiedenen Radiolyseprodukten. Über den gesamten Dosis- und Temperaturbereich entstand pro Mol Na in den Na-Kolloiden ein Mol Cl in Form von  $Cl_2$ -Gas.

Aus den experimentellen Daten wurde ein Umrechnungsfaktor für die gespeicherte Energie von ca. 65 J/g pro mol-% Na-Kolloid bestimmt. Dieser Wert liegt nahe bei dem experimentell von Jenks und Bopp bestimmten Wert von 70 J/g. Auf der Basis von optischen Absorptionmessungen ergibt sich eine gespeicherte Energie pro Elektronenzentrum ( $F$ ,  $F_2$ ,  $F_3$  und Na-Kolloide) von  $102 \pm 17$  J/g und Messungen der latenten Wärme lieferten einen Wert von 87,5 J/g für 1 mol-% Na /SEI 94a/. In der Literatur sind weitere z.T. sehr unterschiedliche Werte für diesen Umrechnungsfaktor genannt (siehe dazu auch /GIE 93/). Vor kurzem wurden die experimentellen Randbedingungen und die Annahmen und Fehlermöglichkeiten bei der Auswertung der Ergebnisse sorgfältig analysiert /DON 96c/. Die Autoren zeigten, daß der Wert für den Umrechnungsfaktor beim theoretischen Wert von 82,5 J/g liegen sollte. Im Rahmen der experimentellen Ungenauigkeit, die speziell bei DSC-Messungen an natürlichen Salzproben durch bei der Aufheizung ablaufende endotherme Prozesse zu einer Unterbestimmung führen kann, sind die Werte in recht guter Übereinstimmung.

Im Temperaturbereich zwischen 100 und 150 °C nahm die Strahlenschädigung mit der  $\gamma$ -Dosis linear zu und es trat noch keine Sättigung der Strahlenschädenbildung auf. Bei 100 °C und einer Dosis von  $10^8$  Gy wurden ca. 0,8 mol-% Na detektiert. Dieser Wert liegt im gleichen Bereich wie die Ergebnisse von Jenks und Bopp /JEN 74, JEN 77/. Von /CUE 96/ wurde dagegen berichtet, daß bei der Bestrahlung von gemahlener Salzproben aus dem Bergwerk Asse unter ähnlichen Temperatur- und Dosisleistungsbedingungen um eine Größenordnung geringere Strahlenschädenbildung festgestellt wurden. Bei der Bestrahlung von Bohrkernen bei 100 °C lag die Strahlenschädigung aber um ca. einen Faktor 5 höher und damit im Bereich der Ergebnisse von /MÖN 96/. Bei den Bestrahlungen am Elektronenbeschleuniger /WEE 94, SEI 94a, SEI 94b/ trat

die maximale Strahlenschädigung ebenfalls im Temperaturbereich zwischen 100 und 120 °C auf.

Bei Temperaturen um 200 °C beginnt die Sättigung der Kolloidbildung bereits in dem Dosisbereich unterhalb von  $10^8$  Gy auf einem erheblich geringeren Niveau als bei den niedrigeren Temperaturen. Bei Temperaturen über 200 °C ist die Strahlenschädenbildung vernachlässigbar /MÖN 96/.

Der Einfluß der Dosisleistung wurde im Dosisbereich zwischen  $2 \cdot 10^5$  und  $5 \cdot 10^5$  Gy bei drei verschiedenen Dosisleistungen zwischen  $4 \cdot 10^3$  und  $5 \cdot 10^4$  Gy/h untersucht /CUE 96, DON 96b/. Dabei ergab sich eine Erhöhung der Strahlenschädenbildung bei kleineren Dosisleistungen um ca. einen Faktor 4 bis 5. Dieses Ergebnis ist möglicherweise nicht besonders aussagekräftig, da Daten von Bestrahlungen gemahlener Salzproben (hohe Dosisleistung) und von Bohrkernen miteinander verglichen wurden. Bei den Bohrkernen gab es zwischen gleichbestrahlten Proben bereits Unterschiede von bis zu einem Faktor 5. Auch war der untersuchte Dosisbereich relativ gering.

/CUE 96/ bestimmten durch mathematische Entfaltung der optischen Absorptionen die Größenverteilung der Kolloidteilchen im Dosisbereich zwischen  $2 \cdot 10^6$  und  $4 \cdot 10^7$  Gy und fanden, daß bei polykristallinem Steinsalz die Kolloidteilchen mit zunehmender Dosis wachsen. Die Größe der Teilchen liegt im Bereich zwischen 2 und 150 nm bei einer Dosis von  $1 \cdot 10^8$  Gy. /SEI 94b/ bestimmten für K-dotierte Kristalle, die bei einer Dosisleistung von  $1 \cdot 10^6$  Gy/h und einer Temperatur zwischen 20 und 150 °C mit einer Dosis von  $5 \cdot 10^7$  und  $1,5 \cdot 10^9$  Gy bestrahlt wurden, die Schmelztemperatur der Kolloidteilchen und schlossen auf die Existenz von mindestens drei Arten von Kolloidteilchen unterschiedlicher Größe zwischen 100 und 400 nm.

Der Einfluß der Spannung bzw. des Verformungsgrades und von Verunreinigungen auf die Strahlenschädenbildung wurde ebenfalls genauer untersucht. So verdoppelte sich bei Proben, die bei einem Druck von 200 bar bestrahlt wurden, unterhalb einer Dosis von  $5 \cdot 10^6$  Gy die Kolloidbildung, während die F-Zentrenkonzentration nicht beeinflußt wird. Bei Dosen oberhalb von  $5 \cdot 10^6$  Gy konnte kein Einfluß auf die Kolloidbildung festgestellt werden /CUE 96, DON 96b/. Der Einfluß von Verunreinigungen im Kristall ist generell relativ gering /DON 96a, DON 96b/.

### **3.4 Zusammenfassende Bewertung**

Die Bildung von Strahlenschäden und die Energiespeicherung wurden für verschiedene Temperatur- und Dosisleistungsbedingungen experimentell untersucht. Die verfügbare Datenbasis hat sich in den letzten Jahren weiter vergrößert. Folgende allgemeine Aussagen können als experimentell belegt gelten:

- Die Dosisabhängigkeit bei gegebener Temperatur und Dosisleistung durchläuft im allgemeinen drei Phasen. In der Nukleationsphase (Dosis  $< 3 \cdot 10^6$  Gy) werden keine molekularen Bestrahlungsprodukte gebildet und die Energiespeicherung ist sehr gering und hauptsächlich auf die Bildung von Versetzungslinien zurückzuführen. Im zweiten Dosisbereich besteht ein praktisch linearer Zusammenhang zwischen der Dosis und der Bildung von kolloidalem Natrium und molekularem Chlorgas bzw. der Energiespeicherung. Unter bestimmten Bedingungen tritt bei sehr hohen Dosen eine Sättigung in der Energiespeicherung auf.
- Bei den üblichen experimentellen  $\gamma$ -Dosisleistungen im Bereich zwischen  $10^4$  und  $10^5$  Gy/h tritt die größte Strahlenschädigung bei einer Temperatur im Bereich um ca.  $100^\circ\text{C}$  auf. Bei größeren Dosisleistungen tritt die maximale Strahlenschädigung bei höheren Temperaturen auf.
- Generell scheint kein großer Unterschied zwischen der Strahlenschädigung im natürlichen Salz und synthetischen NaCl-Kristallen aufzutreten. Nur bei Bestrahlungsdosen  $< 10^7$  Gy tritt bei Kristallen mit Verunreinigungen im allgemeinen eine höhere Strahlenschädigung auf. Im endlager-relevanten Dosisbereich  $> 10^7$  Gy wurde kein Einfluß des äußeren Druckes auf die Proben während der Bestrahlung festgestellt.
- Der Einfluß der Dosisleistung auf die Menge an Bestrahlungsprodukten ist eher gering. Allerdings ist die Anzahl der systematischen Untersuchungen zu diesem Thema noch relativ begrenzt. Mit abnehmender Dosisleistung tritt bei gegebener Dosis die maximale Strahlenschädigung bei tieferen Temperaturen auf.
- Der Umrechnungsfaktor zwischen gespeicherter Energie und der Strahlenschädigung wurde auf unterschiedliche Weise experimentell bestimmt. Die Ergebnisse liegen im Bereich zwischen 65 und 100 J/g pro mol-% Na. Der theoretische Wert von 82,5 J/g wird zur Umrechnung empfohlen.

Die Ergebnisse der verschiedenen Bestrahlungsuntersuchungen sind in Tab. 2 in Bezug auf die Effizienz der Energiespeicherung,  $\eta_{\text{SE}}$ , zusammengefaßt. Solche Auswertungen weisen immer einen gewissen willkürlichen Charakter auf, da zwischen der gespeicherten Energie und der Dosis kein linearer Zusammenhang besteht, bei der Berechnung der Effizienz aber eine lineare Beziehung unterstellt wird. Trotzdem liefert eine solche Auswertung einen guten Überblick über die bei verschiedenen Dosisleistungs- und Temperaturbedingungen möglichen Werte. In der Tabelle wurde jeweils  $\eta_{\text{SE}}$  für eine Dosis von  $5 \cdot 10^8$  Gy berechnet, da dies der maximalen  $\gamma$ -Dosis im Endlager entsprechen sollte. Wurden die Untersuchungen nicht bis in diesen Dosisbereich ausgedehnt, wurde jeweils der Wert für die höchste experimentelle  $\gamma$ -Dosis berechnet, bevor Sättigung in der Strahlenschädigung auftrat. Diese Dosis ist in der vierten Spalte der Tabelle angegeben. Eine ähnliche Tabelle mit weiteren Literaturstellen findet sich

auch in /SOP 94c/. Die dort angegebenen Werte differieren aufgrund der unterschiedlichen Vorgehensweise bei der Berechnung von  $\eta_{SE}$  etwas, sie liegen aber in derselben Größenordnung.

In allen in Tab. 2 aufgeführten Untersuchungen wurde jeweils ein gewisser Dosisbereich experimentell abgedeckt. Es wurden aber nicht in allen Fällen so hohe  $\gamma$ -Dosen erreicht, daß bereits eine Sättigung der Strahlenschädenbildung bzw. der gespeicherten Energie beobachtet worden ist. Es ist jedoch deutlich zu sehen, daß alle experimentell ermittelten Werte für  $\eta_{SE}$  unterhalb von 0,1 % liegen.

**Tabelle 2** Experimentelle Daten für die Energiespeicherung

	Temperatur [°C]	Dosisleistung [Gy/h]	$\gamma$ -Dosis [Gy]	$\eta_{SE}$ [%]	Bemerkung
/JEN 74/ /JEN 77/	126	$1 \cdot 10^5$	$1 \cdot 10^8$ Gy	0,050	Beginn der Sättigung bei 70 J/g
/SPI 80/	25		$1,6 \cdot 10^7$	0,005	$\gamma$ -Dosisleistung nicht angegeben
/KAB 80/	25	$1,2 \cdot 10^3$ - $1,8 \cdot 10^5$	$2,5 \cdot 10^7$	0,005	
/DON 96b/	100	$2 \cdot 10^5$ - $2 \cdot 10^4$ *	$4 \cdot 10^8$	0,021	Sättigung bei Dosis von $1,2 \cdot 10^9$ Gy bei ca. 150 J/g
/MÖN 96/	100, 150	$2 \cdot 10^5$ - $2 \cdot 10^4$ *	$1 \cdot 10^8$	0,066	noch keine Sättigung erreicht
	200		$1 \cdot 10^8$	0,012	beginnende Sättigung
/CUE 96/	100	$1,5 \cdot 10^4$	$4,4 \cdot 10^7$	0,010	große Schwankung zwischen identischen Proben
		$4 \cdot 10^3$	$4,4 \cdot 10^7$	0,015	
/SEI 94b/	100-110 °C	$1 \cdot 10^6$	$5 \cdot 10^8$	0,040**	mit 0,1% K dotierte NaCl-Spaltplättchen, keine Sättigung in der Strahlenschädigung bis $1,5 \cdot 10^9$ Gy

$\eta_{SE}$  Effizienz der Energiespeicherung

\* über 28 Tage abnehmend, im Mittel bei  $5 \cdot 10^4$  Gy/h

\*\* berechnet aus den Meßwerten für die latente Wärme und dem von den Autoren angegebenen Umrechnungsfaktor in gespeicherte Energie

## 4 Modellrechnungen zur Strahlenschädenbildung

### 4.1 Ableitung realistischer Randbedingungen

Wie in Kapitel 2 dargestellt, hängt die Bildung von Strahlenschäden in Steinsalz sehr stark von der  $\gamma$ -Dosis,  $\gamma$ -Dosisleistung und Temperatur an der jeweiligen Stelle ab. Da sich diese Parameterwerte zeitabhängig verändern, ist zur Durchführung von Modellrechnungen zur Strahlenschädenbildung eine genaue Kenntnis dieser Änderungen notwendig. Die Einflußgrößen sind von verschiedenen Randbedingungen abhängig. Sie umfassen die Daten für die Abfallkokillen selbst (Anfangsnuklidinventar, Zwischenlagerungszeit der Kokillen vor und nach Wiederaufarbeitung) und die Planungsdaten für die geometrische Auslegung des Endlagers (Abstand der Einlagerungsbohrlöcher, Befüllung der Bohrlöcher).

Das Nuklidinventar der Abfallkokillen bestimmt deren  $\gamma$ -Dosis- und Wärmeleistungen. Es wird durch folgende Parameter beeinflusst:

- die spezifischen Merkmale des Reaktors und des eingesetzten Kernbrennstoffes und
- die spezifischen Merkmale der Abfallbehandlung.

In einem Endlager weisen die  $\gamma$ -Dosis- und Wärmeleistungen der Abfallkokillen eine gewisse Bandbreite auf. Für das Anfangsnuklidinventar sind lediglich Maximalmengen garantiert aber keine Mindestmengen definiert, so daß beträchtliche Unterschiede zwischen zwei Kokillen möglich sind.

Andere Parameter beeinflussen nur die resultierende Temperatur im Wirtsgestein. Es sind dies

- Position der Abfallkokille im Bohrloch
- Lage des Bohrloches im Endlagerfeld
- Abstand zwischen den einzelnen Lagerungsbohrlöchern im Einlagerungsfeld
- horizontale Ausdehnung des Endlagers

Da es für Deutschland zur Zeit kein endgültiges Endlagerkonzept gibt, wurden für die verschiedenen Einflußfaktoren auf der Basis früherer Studien, z.B. PSE /PSE 85/, bestimmte Annahmen getroffen, die nachfolgend begründet werden. Dabei wurden für die verschiedenen Parameter nicht nur einzelne Werte gewählt, sondern es wurden

verschiedene mögliche Werte betrachtet. Aus der Vielzahl der genannten Einflußgrößen ergibt sich somit eine große Anzahl von denkbaren Parameterkombinationen, die aber wegen des großen Aufwandes nicht alle detailliert durchgerechnet werden konnten. Um eine realistische Abschätzung des möglichen Ausmaßes der Strahlenschädigung in einem Endlager im Salinar zu erhalten, wurde daher eine begrenzte Anzahl von möglichen Parameterkombinationen ausgewählt. Dabei wurde darauf geachtet, daß nach Möglichkeit abdeckende Kombinationen betrachtet wurden.

### **Reaktor- und Brennstoffcharakteristika**

Zu dieser Gruppe von Parametern gehören der Reaktortyp, die spezifische Leistung, die thermische Effizienz, der Abbrand, die ursprüngliche Anreicherung, die Verweilzeit des Brennstoffs im Reaktor und der Beladungsfaktor.

Ausgehend von einer ursprünglichen Anreicherung an  $^{235}\text{U}$  von 3,2 % wurden für die Abbrandrechnungen zwei Abbrandwerte zugrundegelegt. Der Wert von 33 GWd/t U stellt einen unteren Grenzwert dar, während ein Abbrand von 40 GWd/t U heute als realistischer angesehen werden kann. Für die übrigen Reaktordaten wurde von einem Druckwasserreaktor ausgegangen, da die meisten in Deutschland installierten Reaktoren diese Bauweise besitzen. Diese Parameterwerte dienten als Eingangsgrößen für Abbrandrechnungen, die mit geeigneten Rechencodes wie z.B. ORIGEN /FIS 83/ durchgeführt wurden.

### **Abfallbehandlung**

Die beiden wichtigsten Einflußgrößen sind hier die Abklingzeit nach der Entnahme der Brennelemente aus dem Reaktorkern und die Dauer der Zwischenlagerung der Abfallkokille mit dem hochradioaktiven Abfall nach der Wiederaufarbeitung. Längere Abklingzeiten vor und längere Zwischenlagerzeiten nach der Wiederaufarbeitung verringern erheblich die Wärmeleistung der Abfallkokillen und die  $\gamma$ -Dosisleistung. Für beide Zeitspannen wurden mit 3 und 10 bzw. 10 und 50 Jahren jeweils zwei Extremwerte betrachtet.

Ferner wird davon ausgegangen, daß nach der chemischen Wiederaufarbeitung der abgebrannten Brennelemente der hochradioaktive Abfall keine gasförmigen Spaltprodukte mehr enthält und nur noch 0,5 % des U und Pu, die nach der Entnahme aus dem Reaktorkern vorhanden waren.

Aus den möglichen Kombinationen der Einflußgrößen Abbrand, Abklingzeit und Zwischenlagerzeit ergeben sich die acht Grundscenarien, die in Tabelle 3 aufgelistet sind.

**Tabelle 3** Betrachtete Grundszenarien

Szenario	Abbrand [GWd/t U]	Abklingzeit nach Reaktorentnahme [a]	Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung [a]
1	33	3	10
2	33	10	10
3	33	3	50
4	33	10	50
5	40	3	10
6	40	10	10
7	40	3	50
8	40	10	50

### Lage der Abfallkokillen im Endlager

Das Temperaturfeld im Einlagerungsbereich entsteht durch die Überlagerung der von den einzelnen Kokillen in einem Bohrloch ausgehenden Wärmefronten. Bei der geometrischen Auslegung des Endlagers wird dabei üblicherweise von einem rechteckigen Einlagerungsfeld ausgegangen, das aus einer Reihe von parallelen Einlagerungsstrecken besteht.

Solch ein rechteckiges Einlagerungsfeld weist nur eine einfache Symmetrie auf. Für die Betrachtung der verschiedenen Grundszenarien kann deshalb nicht von einheitlichen Temperaturbedingungen für die verschiedenen Bohrlöcher ausgegangen werden. Vielmehr müßte die unterschiedliche Anzahl der benachbarten Bohrlöcher, deren Wärmefronten einen Einfluß auf das Temperaturprofil haben, explizit berücksichtigt werden. In vertikaler Richtung bildet sich darüber hinaus ebenfalls ein Temperaturprofil mit dem Maximum in der Bohrlochmitte aus.

Detaillierte Modellrechnungen für alle möglichen Positionen der Abfallkokillen in einem Bohrloch sowie für alle Bohrlöcher in einem Einlagerungsfeld sind aber zu aufwendig. Außerdem ist abzusehen, daß sich hinsichtlich der Dosis- und Temperaturverläufe viele nahezu gleichartige Parameterkombinationen ergäben. Eine solche aufwendige Analyse brächte also nur begrenzten Erkenntnisgewinn. Aus diesem Grund wurden wenige Bohrlochpositionen ausgewählt, die entweder typisch für eine verhältnismäßig große Zahl von Positionen sind oder bei denen wegen ihrer geometrischen Randlage besondere Temperaturminima auftreten.

Betrachtet wurde ein Bohrloch im Zentrum des Einlagerungsfeldes, wo durch die Überlagerung der einzelnen Temperaturfelder die Temperaturen am höchsten sind, und ein

Bohrloch in einer Ecke des Einlagerungsfeldes, wo die Temperaturen am niedrigsten liegen, da dieses Bohrloch die geringste Anzahl von Bohrlöchern in der Nachbarschaft besitzt. Die Modellrechnungen wurden dabei jeweils für die Mittelebene und den obersten Punkt des Bohrloches durchgeführt, da an diesen Stellen in vertikaler Richtung die maximale und minimale Temperatur auftreten.

Für diese vier Bohrlochpositionen wurden detaillierte Modellrechnungen durchgeführt. Zusammen mit den acht in Tabelle 3 definierten Grundszenarien ergeben sich damit 32 Basisfälle. Zusätzlich wurden für einige ausgewählte Grundszenarien weitere Modellrechnungen durchgeführt, bei denen die horizontale Bohrlochposition im Endlagerfeld oder die vertikale Position in einem Bohrloch variiert wurde. Dadurch soll sichergestellt werden, daß durch die betrachteten Basisfälle tatsächlich praktisch alle relevanten Parameterkombinationen berücksichtigt wurden.

Zur eindeutigen Unterscheidung werden die betrachteten Fälle durch eine Kennzeichnung identifiziert, aus der das betrachtete Grundszenario, die Lage des Bohrloches im Endlagerfeld und die Position der Kokille im Bohrloch hervorgeht:

xx-yy-zz-Rss-mmm

mit:

xx	Abbrand in GWd/t U (33 oder 40)
yy	Abklingzeit in a (3 oder 10)
zz	Zwischenlagerzeit in a (10 oder 50)
Rss	Position des Bohrlochs im Endlagerfeld, das rechteckig mit 11 Reihen (Kennzeichnung A-K) mit 24 Spalten ist
mmm	Teufe der Kokille in m (z.B. 800 oder 955)

So wird beispielsweise über 33-03-10-F12-800 die oberste Kokille in einem zentralen Bohrloch und das Grundszenario 1 gekennzeichnet. Falls eine allgemeine Aussage für eine bestimmte Lage im Endlagerfeld unabhängig von den Szenarien getroffen werden soll, werden die obigen Kleinbuchstaben als Platzhalter bei den Szenariangaben verwendet.

#### **4.1.1 Geometrische Basisdaten des Einlagerungsfeldes**

Für die Auslegung des Endlagerfeldes wurde von einer Menge an wärmeerzeugenden radioaktiven Abfällen ausgegangen, die von einer Kernkraftwerksleistung von 2500 GWa stammt. Diese Menge wurde auch bei der PSE-Studie /PSE 85/ zugrundegelegt. Die allgemeinen Auslegungsdaten sind in Tabelle 4 aufgeführt. Die räumliche Anordnung für das rechteckige Endlagerfeld ist schematisch in Bild 4 dargestellt.



#### 4.1.2 Berechnung der Temperaturentwicklung

Die Wärmeleistung der Abfallkokillen wird durch die Konzentration an  $\alpha$ - und  $\beta$ -Strahlung emittierenden Nukliden bestimmt, da diese Strahlung praktisch vollständig im Glaskörper absorbiert wird. In den ersten 100 Jahren wird dabei die Wärmeleistung zum großen Teil durch die Konzentration von  $^{90}\text{Sr}$  mit einer Halbwertszeit von 28,5 a bestimmt.

In einem Bohrloch stehen viele Abfallkokillen übereinander gestapelt. Die Abfallkokillen sind nicht vollständig mit Glas gefüllt und weisen in ihrem oberen Bereich einen luftgefüllten Hohlraum auf. Für die Berechnung des Temperaturfeldes wird von der vereinfachenden Annahme ausgegangen, daß jede einzelne der Abfallkokillen eine punktförmige Wärmequelle darstellt. Für eine solche Wärmequelle in einem unendlichen Volumen homogenen Materials, die pro Zeitintervall  $0 \leq \tau \leq t$  Wärme in einer Rate  $\varphi(\tau)$  abgibt, errechnet sich die Temperaturerhöhung  $T$  zum Zeitpunkt  $t$  in einem Abstand  $r$  von dieser Wärmequelle mit nachstehender Formel /PRI 91/:

$$T(r,t) = \frac{1}{8\rho c(\pi\kappa)^{3/2}} \int_0^t \frac{\varphi(\tau) \exp\left(\frac{-r^2}{4\kappa(t-\tau)}\right)}{(t-\tau)^{3/2}} d\tau \quad (4)$$

mit  $\rho$  = Dichte  
 $c$  = spezifische Wärme  
 $\kappa$  = Wärmeverteilung  $\lambda/\rho c$   
 $\lambda$  = Wärmeleitkoeffizient

Dieser Gleichung liegt die vereinfachende Annahme von konstanten Materialeigenschaften zugrunde /FIS 83/. Aufgrund des radioaktiven Zerfalls nimmt die Wärmeerzeugung bei hochradioaktivem Abfall mit der Zeit exponentiell ab:

$$\varphi(\tau) = \sum_{i=1}^m A_i \exp(-\alpha_i \tau) \quad (5)$$

mit  $A_i$  = anfängliche Wärmeerzeugung der Quelle  $i$   
 $\alpha_i$  = Zerfallskoeffizient der Quelle  $i$   
 $m$  = Anzahl der Quellen

Durch Einsetzen der Gleichung 5 in 4 erhält man einen Ausdruck, mit dem die durch eine punktförmige Wärmequelle verursachte Temperaturerhöhung an einem beliebigen Raumpunkt zum Zeitpunkt  $t$  berechnet werden kann. Da die Materialeigenschaften als temperaturunabhängig angenommen werden, kann die Temperaturzunahme an einem Punkt  $P(x_p, y_p, z_p)$  zu einem Zeitpunkt  $t_0$  durch Überlagerung einer beliebigen

Anzahl von n punktförmigen Wärmequellen an beliebigen Positionen  $(x_j, y_j, z_j)$ , die Wärme in einem beliebigen Zeitintervall  $(t_0 - t_j$  bis  $t_0)$  erzeugen, wie folgt berechnet werden:

$$T(x_p, y_p, z_p, t_0) = \sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^n T_i(r_j, t_j) \quad (6)$$

mit

$$r_j = \sqrt{(x_p - x_j)^2 + (y_p - y_j)^2 + (z_p - z_j)^2} \quad (7)$$

Auf dieser Basis kann die Temperaturerhöhung an einem Punkt in der Nähe des Einlagerungsbereiches beliebiger geometrischer Abmessungen berechnet werden. Die in einem Bohrloch eingelagerten Abfallbehälter werden dabei als eine Reihe übereinandergestellter Punktquellen auf der Mittelachse des Bohrloches modelliert.

Für die Modellrechnungen in diesem Bericht wurde die Rate der Wärmeerzeugung  $\varphi(\tau)$  mittels Formel 5 als Summe von drei Exponentialtermen ausgedrückt. Die zugehörigen Parameter  $A_i$  und  $a_i$  sind in Tabelle 5 wiedergegeben. Sie wurden so ermittelt, daß die Wärmeerzeugung in den ersten 1000 a nach Einlagerung der Abfälle gut beschrieben wird. Die Übereinstimmung zwischen der so berechneten Wärmeerzeugungsrate und dem genauen Wert ist in Bild A-5 dargestellt. Die exakte Lösung wurde /HEI 89/ entnommen. Zur genauen Berechnung der Wärmeentwicklung für einen längeren Zeitraum als 1000 Jahre ist eine Gleichung mit drei Exponentialtermen nicht mehr ausreichend und es wird ein vierter Term benötigt.

**Tabelle 5** Koeffizienten zur Temperaturberechnung für Zeitspanne 0 bis 1000 a

Abkühlzeit vor Wiederaufarbeitung [a]	Abbrand [GWd/10 <sup>6</sup> g U]	anfängliche Wärmeleistung [W / 10 <sup>6</sup> g U]	Koeffizient $\alpha_i$ [1/a]
3	33	2000,45	0,42125
		1023,98	0,02408
		24,48	0,00151
3	40	2349,49	0,40132
		1259,62	0,02427
		28,89	0,00148
10	33	123,89	0,13781
		846,97	0,02382
		58,14	0,00156
10	40	171,21	0,13268
		1033,63	0,02392
		67,16	0,00154

### 4.1.3 Berechnung der $\gamma$ -Dosisleistung

Für die Berechnung der  $\gamma$ -Quellstärke der Abfallkokillen wurde von folgendem Szenario ausgegangen. Nach der Entladung aus dem Reaktorkern und einer Abkühlzeit von 3 oder 10 Jahren wird der Brennstoff chemisch aufgearbeitet. Nach der Wiederaufarbeitung enthält der hochradioaktive Abfall keine gasförmigen Spaltprodukte und weniger als 0,5 % des Urans und Plutoniums, die im Brennstoff nach der Entnahme aus dem Reaktor enthalten waren. Nach der Verglasung wird der HAW in Edelstahlbehältern einer Länge von 135 cm, einem Durchmesser von 43 cm und einer Wandstärke von 5 mm eingeschlossen. Jede Kokille enthält den Abfall aus 1,33 t abgebrannten Brennstoff. Die Abfallkokillen werden anschließend oberirdisch für 10 oder 50 Jahre zwischengelagert.

Die Rate der Energiedeposition im Steinsalz bzw. der Ortsdosisleistung aufgrund der von den Abfallkokillen emittierten  $\gamma$ -Strahlung wurde als Funktion der Zeit und des radialen Abstandes von der Kokillenwandung berechnet. Dabei wurde das Programm KORIGEN, die Karlsruher Version des Programms ORIGEN, verwendet /FIS 83/. Eine detaillierte Beschreibung der Vorgehensweise findet sich bei /BER 85/.

Während der ersten 100 Jahre wird die  $\gamma$ -Strahlungsintensität im wesentlichen durch die Konzentration von  $^{137}\text{Cs}$  im HAW mit einer Halbwertszeit von 30,17 a bestimmt. Nach dem Zerfall dieses Isotops sinkt die  $\gamma$ -Dosisleistung um über vier Größenordnungen innerhalb von 300 a. In dieser Zeit werden 90 % der gesamten  $\gamma$ -Strahlungsenergie deponiert. Nach diesen 300 Jahren sind im wesentlichen langlebige Tochterisotope aus der Zerfallsreihe des  $^{238}\text{U}$  für die  $\gamma$ -Strahlenintensität verantwortlich.

Mit zunehmendem radialen Abstand von der Kokillenoberfläche verringert sich sehr schnell die Ortsdosisleistung  $K$  im Salz. Der genaue Verlauf hängt von vielen Faktoren ab, vornehmlich von der Nuklidzusammensetzung im Abfall sowie vom Energiespektrum der  $\gamma$ -Quanten nach Verlassen der Abfallkokille. Die Nuklidzusammensetzung wird durch das betrachtete Endlagerungsszenario (anfängliche Anreicherung, Abbrand, Abklingzeit nach Reaktorentnahme, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufarbeitung) bestimmt, während das Energiespektrum auch durch die geometrischen Abmessungen der Kokille beeinflusst wird. Eine genaue rechnerische Ermittlung für die einzelnen im Rahmen dieses Berichtes betrachteten Grundszenarien ist allerdings viel zu aufwendig. Es gibt jedoch verschiedene Berechnungen, aus denen sich belastbare Annahmen für die radiale Abnahme der Ortsdosisleistung im Salz ableiten lassen.

Erste Monte-Carlo-Rechnungen zur Dissipation von  $\gamma$ -Strahlenenergie im Steinsalz bei der Endlagerung von hochradioaktiven Abfällen wurden 1981 durchgeführt /RAM 81/. Unter Verwendung von 30 Energiegruppen wurde für einen Abbrand von 35,5 GWd/t U die radiale Ortsdosisleistung im Salz berechnet, wobei allerdings eine relativ grobe räumliche Diskretisierung verwendet wurde (Bild A-6). Bei halblogarithmischer Auftra-

gung der Ergebnisse ergibt sich praktisch eine lineare Abhängigkeit vom Abstand. Daraus kann eine integrale Halbwertsdicke, bei der die  $\gamma$ -Dosisleistung im Steinsalz um die Hälfte herabgesetzt wird und die bei halblogarithmischer Darstellung eine Gerade ergibt, von ca.  $4 \pm 1$  cm abgeschätzt werden.

Im Rahmen des HAW-Projektes /ROT 95/, bei dem hochradioaktive Strahlenquellen zu Versuchszwecken in Bohrlöchern im Forschungsbergwerk Asse eingebracht werden sollten, wurden vor kurzem detaillierte Monte-Carlo-Rechnungen durchgeführt /TIL 94/. In diesen Rechnungen wurde für die verschiedenen Bohrlöcher auf der Basis der tatsächlichen  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten der Strahlenquellen die Abnahme der  $\gamma$ -Dosisleistung in radialer Richtung im Steinsalz berechnet. Bild A-7 zeigt die entsprechenden Daten für das Versuchsbohrloch (B3), bei dem die vorgesehenen Strahlenquellen untereinander die geringsten Unterschiede hinsichtlich ihrer Aktivität aufwiesen. Dargestellt sind die Daten für die Mittelebene sowie das obere und untere Ende der fünf übereinanderstehenden Strahlenquellen. Zu erkennen ist eine exponentielle Abnahme der Dosisleistung (integrale Halbwertsdicke  $\approx 4,3$  cm), mit einer leichten Abweichung in unmittelbarer Bohrlochnähe. Aufgrund der vielfältigen Streuung der  $\gamma$ -Quanten im Glaskörper, im Stahlmantel der Strahlenquelle und in der Stahlwandung des Bohrlochliners besitzt die ins Salz gelangende Strahlung ein kontinuierliches Energiespektrum, in dem die ursprünglichen 662 keV-Quanten nicht mehr den Hauptanteil darstellen /GIE 93/. Die Abweichung im bohrlochnächsten Bereich wird durch die verstärkte Absorption von niedrigerenergetischen  $\gamma$ -Quanten verursacht, d.h. es findet eine gewisse Aufhärtung des Energiespektrums statt.

Das berechnete  $\gamma$ -Dosisprofil in vertikaler Richtung ist in Bild A-8 dargestellt. Deutlich ist hier zu erkennen, daß die einzelnen Kokillen unterschiedlichen Aktivitäten enthalten und daß sie nicht vollständig mit Glas gefüllt sind und einen Hohlraum von ca. 15 cm aufweisen. Da sich das ausgeprägte Dosisprofil mit zunehmendem Abstand zur Bohrlochwand abschwächt, wird die Füllhöhe der Abfallkokillen zur Vereinfachung bei den Modellrechnungen nicht berücksichtigt. Dadurch resultiert eine leichte Überbestimmung der für ein Bohrloch berechneten Menge an Strahlenschäden.

Für das niederländische Endlagerkonzept haben Soppe und Prij Modellrechnungen durchgeführt /SOP 94d/. Aus der dabei berechneten Abnahme der Ortsdosisleistung in radialer Richtung, die durch Datenpunkte im Bild A-9 dargestellt ist, ergibt sich für ein ähnliches Szenario wie hier betrachtet eine integrale Halbwertsdicke von ca. 4,4 cm. Auch in diesem Fall ist bei der halblogarithmischen Auftragung in unmittelbarer Bohrlochnähe eine Abweichung vom ansonsten annähernd geraden Verlauf zu beobachten. Die Abnahme der Ortsdosisleistung mit zunehmendem radialem Abstand von der Kokillenoberfläche kann vereinfachend durch die Funktion

$$K(r) = K_0 \exp(-r/\lambda) \quad (8)$$

mit einer Abschwächungslänge  $\lambda \approx 6,5$  cm beschrieben werden (siehe durchgezogene Linie in Bild A-9). Diese Funktion besitzt einen leicht gekrümmten Kurvenverlauf und liefert deshalb eine bessere Anpassung.

Im vorliegenden Bericht wurde die Strahlenschädenbildung für folgende radiale Positionen im Steinsalz um ein Einlagerungsbohrloch berechnet: 0 cm, 4 cm, 8 cm, 12 cm, 16 cm und 20 cm, wobei die Ortsdosisleistung im Salz über die Formel 8 mit einer Abschwächungslänge  $\lambda \approx 6,5$  cm approximiert wird. Die gewählte Diskretisierung wird als ausreichend fein angesehen, um die radiale Verteilung der Strahlenschädigung zu berechnen.

## **4.2 Ergebnisse der Modellrechnungen**

### **4.2.1 Berechnung der Basisfälle**

Die *Temperaturentwicklungen* für die ausgewählten 32 Basisfälle über die ersten 1000 a nach Einlagerung der Abfälle sind in den Bildern A-10 bis A-17 graphisch dargestellt. Die Bilder zeigen die Temperaturprofile jeweils für mehrere Punkte im Bereich zwischen der Bohrlochwand und 20 cm Entfernung von dieser. Zur besseren Vergleichbarkeit sind bei allen Bildern die Temperaturskalen für das Zentralbohrloch (obere Graphik) und das Bohrloch in der Ecke des Endlagerfeldes (untere Graphik) jeweils gleich.

Zu Beginn der Einlagerung tritt in radialer Richtung über die betrachteten ersten 20 cm um das Einlagerungsbohrloch ein Temperaturgefälle auf, das sich sehr schnell ausgleicht. Die maximalen Temperaturunterschiede, die nach ca. 1 a auftreten, liegen bei 19 K. Zunächst sind die Temperaturerhöhungen nur auf den lokalen Einfluß der Abfallkokillen im Bohrloch zurückzuführen. Erst nach ca. 10 a macht sich der Einfluß von benachbarten Bohrlöchern bemerkbar.

Die zeitlichen Temperaturentwicklungen ergeben sich unmittelbar aus der jeweiligen räumlichen Position im Endlager, der Wärmeleistung der Abfallkokillen und dem Abbrand des Kernbrennstoffes. Dieser hat einen großen Einfluß auf die resultierende Temperatur, da beim gleichen Endlagervolumen eine größere Anzahl von Spalt nukliden verteilt werden muß, so daß die Temperaturen bei einem Abbrand von 40 GWd/t U erheblich höher liegen. Die Abklingzeiten und Zwischenlagerzeiten haben Auswirkungen auf die Wärmeleistung der Abfallkokillen. Je länger die Zeiträume vor Einbringung der Abfälle sind, desto niedriger sind die Wärmeleistungen und desto geringer sind die resultierenden Temperaturerhöhungen.

In der Mitte des Endlagerfeldes (xx-yy-zz-F12-955) treten die Maximaltemperaturen nach ca. 80 - 150 a auf, wobei das Maximum um so später auftritt je niedriger die

Wärmeleistung der Abfälle ist. Am oberen Rand des zentralen Bohrloches (xx-yy-zz-F12-800) treten die Maxima jeweils etwas später als in der Mittelebene auf.

In der Ecke des Endlagerfeldes (xx-yy-zz-K24-mmm) treten die Maxima dagegen bereits nach ca. 15 a auf, da mehr Wärme in das das Endlagerfeld umgebende Wirtsgestein abgeführt wird als von den Nachbarbohrlöchern zugeführt wird. Dies gilt sowohl für die Mittelebene als auch für den oberen Bohrlochpunkt. Davon ausgenommen sind nur die Szenarien 4 und 8, bei denen die Abfälle die geringste Wärmeleistung besitzen. Hier sind die Temperaturerhöhungen so gering, daß sich die Ausbreitung der Wärmefront aus der Mitte des Feldes nach ca. 400 a durch ein kleines Temperaturmaximum bemerkbar macht.

Die *zeitliche Veränderung der  $\gamma$ -Dosisleistung* der Abfallkokillen sowie der  $\gamma$ -Dosis im Salz an der Bohrlochwandung ist für die acht Grundsznarien in den Bildern A-18 und A-19 wiedergegeben. In den ersten 100 a wird die  $\gamma$ -Dosisleistung im wesentlichen durch das  $^{137}\text{Cs}$  bestimmt. Nachdem dieses Nuklid weitgehend zerfallen ist, sinken die Dosisleistungen um ca. 4 Größenordnungen. Zu Beginn der Einlagerung sind die Dosisleistungen für beide Abbrandwerte fast identisch und liegen für 40 GWd/t U etwas höher. In sehr langen Zeiten liegen die Dosisleistungen bei einem Abbrand von 33 GWd/t U etwas höher, so daß für diese Szenarien insgesamt eine etwas höhere  $\gamma$ -Dosis resultiert. Der Einfluß des Abbrandes auf die resultierende Dosisleistung ist generell sehr gering.

In den ersten 200 Jahren nach der Einlagerung der Abfälle werden ca. 85 - 90 % der gesamten  $\gamma$ -Strahlungsenergie im Salz deponiert. In diesem Zeitraum liegen die Temperaturen jeweils noch in der Nähe des Maximalwertes für das betrachtete Szenario und ändern sich nicht stark. Die im Zeitraum zwischen 200 und 500 000 a zusätzlich deponierte  $\gamma$ -Dosis wird durch Nuklide in der Zerfallsreihe der Transurane verursacht und liegt bei ca. 35 MGy, unabhängig vom betrachteten Szenario. Je nach betrachtetem Fall herrschen in diesem Zeitbereich aber sehr unterschiedliche Temperaturen.

Die *zeitliche Entwicklung der Strahlenschädenbildung* ist für die 32 betrachteten Basisfälle in den Bildern A-20 bis A-27 dargestellt. Die Ergebnisse der Modellrechnungen sind in Tabelle 6 zusammengefaßt, in der die maximalen Temperaturen, der Zeitpunkt, an dem diese Temperaturen auftraten, die maximale Na-Kolloidmenge und der Zeitpunkt für das Maximum aufgeführt sind.

In fast allen Fällen ergab sich in den ersten 10 - 100 a nach der Einlagerung eine stetige Zunahme der Menge an Na-Kolloiden. In dieser Zeit ist die Dosisleistung relativ hoch und konstant. Nach dieser Zeit fand entweder eine Stabilisierung auf dem erreichten Niveau oder ein Rückgang der Strahlenschädigung statt. In einigen Fällen ist ein zweiter Zeitbereich für die Bildung von Na-Kolloiden bei sehr langen Zeiten (> 20 000 a) zu beobachten.

**Tabelle 6** Berechnete Maximaltemperatur und maximaler Anteil an Natriumkolloiden für die Basisfälle

Basisfall	$T_{\max}$ [K]	Zeit t für $T_{\max}$ [a]	$C_{\max}$ [mol-% Na]	Zeit t für $C_{\max}$ [a]
33-03-10-F12-955	198,92	78,73	0,030	1,45
33-03-10-F12-800	113,62	130,67	0,881	28
33-03-10-K24-955	120,94	12,84	0,171	340000
33-03-10-K24-800	60,47	12,84	2,050	180000
33-10-10-F12-955	189,66	93,93	0,061	3,25
33-10-10-F12-800	113,20	172,43	0,835	37
33-10-10-K24-955	108,70	13,80	0,247	500000
33-10-10-K24-800	54,35	13,80	1,674	235
33-03-50-F12-955	83,85	90,56	0,446	46
33-03-50-F12-800	49,61	160,86	0,539	145
33-03-50-K24-955	48,56	15,31	0,970	260000
33-03-50-K24-800	24,28	15,31	0,506	180000
33-10-50-F12-955	95,66	149,22	0,353	41,5
33-10-50-F12-800	63,85	344,45	0,434	145
33-10-50-K24-955	47,86	23,44	0,826	380000
33-10-50-K24-800	25,43	438,04	0,468	260000
40-03-10-F12-955	242,32	78,73	0,005	0,37
40-03-10-F12-800	138,18	126,93	0,596	19
40-03-10-K24-955	148,10	12,17	0,206	420000
40-03-10-K24-800	74,05	12,17	2,070	220000
40-10-10-F12-955	228,60	91,24	0,268	500000
40-10-10-F12-800	135,83	163,47	0,636	23,5
40-10-10-K24-955	132,13	13,00	0,007	0,6
40-10-10-K24-800	66,07	13,00	1,786	190
40-03-50-F12-955	101,13	90,56	0,317	28
40-03-50-F12-800	59,69	160,86	0,566	100
40-03-50-K24-955	58,89	14,09	1,082	300000
40-03-50-K24-800	29,45	14,09	0,614	220000
40-10-50-F12-955	113,38	142,90	0,265	28
40-10-50-F12-800	74,58	306,66	0,456	95,5
40-10-50-K24-955	57,37	23,53	0,828	420000
40-10-50-K24-800	29,92	432,89	0,537	260000

Das beschriebene Verhalten kann auf der Basis der kritischen Dosisleistung,  $K_{\text{krit}}$ , verstanden werden. Diese stellt die minimale Dosisleistung dar, bei der nach der JL-Theorie und den daraus abgeleiteten Modellen noch Kolloidwachstum auftreten kann. Liegt die Dosisleistung unterhalb des kritischen Wertes, tritt keine Kolloidbildung auf und bereits bestehende Kolloide verschwinden. Zwar kann für das Soppe-Modell kein analytischer Ausdruck abgeleitet werden, allerdings ist dies für die JL-Theorie möglich /SOP 94c/.

Die Konzentration an F-Zentren nimmt anfänglich mit der Bestrahlungszeit zu und erreicht eine Sättigung. Diese Sättigungskonzentration,  $c_{\text{F}}^{\text{sat}}$ , hängt von der Erzeugungsrate  $K$  und der Temperatur ab, die einen Einfluß auf die Diffusionskoeffizienten der F- und H-Zentren,  $D_{\text{F}}$  und  $D_{\text{H}}$ , sowie die Geschwindigkeitskonstante für die Rückreaktion zwischen F- und H-Zentrum,  $K_2$ , besitzt.

$$c_{\text{F}}^{\text{sat}} = \sqrt{\frac{K \cdot D_{\text{H}}}{K_2 \cdot D_{\text{F}}}} \quad (9)$$

Für die Berechnung der Erzeugungsrate für primäre F-H-Zentrenpaare,  $K$ , wird von einem Energiebedarf von 100 eV pro F-H-Paar ausgegangen. In Übereinstimmung mit experimentellen Befunden liegt die sich ergebende Sättigungskonzentration bei Raumtemperatur und einer Dosisleistung von  $10^4$  Gy/h bei ca. 0,01 mol-%. Die Kolloidmenge erreicht nach einer bestimmten Zeit einen Sättigungswert ( $c_{\text{A}}^{\text{sat}}$ ). Die Zeit zum Erreichen der Sättigung hängt von der Dosisleistung (über  $c_{\text{F}}^{(\text{e})}$ ) und der Temperatur ab. Bei hohen Temperaturen erhöht sich die Konzentration der mit den Na-Kolloiden im Gleichgewicht stehenden F-Zentren, bis  $c_{\text{A}}^{\text{sat}}$  Null wird. Die Temperatur, bei der die Kolloidmenge im Sättigungsbereich Null wird, wird bestimmt durch:

$$(z_{\text{H}} - z_{\text{F}}) - z_{\text{H}} \frac{c_{\text{F}}^{(\text{e})}}{c_{\text{F}}^{\text{sat}}} = 0 \quad (10)$$

Durch Einsetzen von Formel 9 in 10 und Umformen erhält man den Ausdruck für die kritische Dosisleistung:

$$K_{\text{krit}} = \left( \frac{z_{\text{H}} \cdot c_{\text{F}}^{(\text{e})}}{z_{\text{H}} - z_{\text{F}}} \right)^2 \frac{K_2 \cdot D_{\text{F}}}{D_{\text{H}}} \quad (11)$$

Im Bild A-29 ist die so berechnete kritische Dosisleistung für den Temperaturbereich von 0 bis 250 °C dargestellt.

Im Bild A-30 wird  $K_{\text{krit}}$  für zwei Basisfälle mit der jeweils tatsächlichen Dosisleistung verglichen. Im Fall 33-03-10-F12-800 liegt die tatsächliche Dosisleistung am Bohrloch-

rand nur in den ersten 50 a nach der Einlagerung über dem kritischen Wert. Danach ist die Dosisleistung erst wieder nach ca. 1000 a hoch genug, um Kolloide zu bilden. In diesem Zeitbereich ist aber die Dosisleistung schon so gering, daß die  $\gamma$ -Dosis in der Zeitspanne zwischen 1000 und 1 000 000 a nur 35 MGy beträgt und ist damit insgesamt so niedrig, daß nur eine geringe Kolloidmenge gebildet wird. Beim Basisfall 33-03-10-K24-800 ist die tatsächliche Dosisleistung dagegen während der gesamten Zeit größer als  $K_{krit}$ , so daß die Sättigung an Na-Kolloiden erst viel später erreicht wird.

Der Vergleich der Basisfälle zeigt, daß nur am äußeren Rand des Einlagerungsfeldes, wo die Temperaturen vergleichsweise niedrig liegen, eine nennenswerte Kolloidbildung auftritt. In den meisten Fällen ist die Kolloidbildung im Zentrum des Einlagerungsfeldes vernachlässigbar. Der ermittelte Maximalwert der Strahlenschädigung von ca. 2 mol-% Na entspricht einer Energiespeicherung von ca. 165 J/g. Der Maximalwert tritt an der Spitze der Kokillensäule in einem Bohrloch in einer Ecke des Einlagerungsfeldes auf. Wie zu erwarten ist eine Strahlenschädigung besonders bei den Fällen zu beobachten, in denen die Abklingzeit und die Zwischenlagerzeit nach der Wiederaufarbeitung kurz sind.

Wie in Kap. 4.1.2 beschrieben, werden die Temperaturen standardmäßig im Zeitraum über 1000 a näherungsweise über eine Exponentialfunktion mit drei Termen berechnet. Um zu überprüfen, welchen Einfluß die Art der Approximation auf die ermittelte Strahlenschädenbildung hat, wurden für das Szenario 1 Rechnungen durchgeführt, bei denen die Temperaturen im Zeitraum unter 10 000 a mit einer Gleichung mit vier Exponentialtermen berechnet wurden, die den Temperaturverlauf in diesem Zeitraum besser wiedergibt. Für darüber hinaus gehende Zeiten wurde von einer weiteren exponentiellen Abnahme ausgegangen.

Mit einer Ausnahme ergaben sich keine Unterschiede zwischen den Ergebnissen. Nur beim Basisfall 33-03-10-F12-955 lieferte die genauere Temperaturberechnung bei langen Zeiten ein etwas höhere Strahlenschädenbildung mit einem Maximalwert von 0,21 % nach 46 000 a. In diesem besonderen Fall ist die tatsächliche Dosisleistung bei langen Zeiten nur etwas größer als die kritische Dosisleistung. Das bedeutet aber nach dem Soppe-Modell nicht, daß das Kolloidwachstum sofort nach Überschreiten der kritischen Dosisleistung einsetzt. Wenn der gesamte Strahlenschaden ausgeheilt ist (dies ist hier der Fall für  $t > 10$  a), muß zunächst die Nukleationsphase durchlaufen werden. Nach der Standardmethode zur Temperaturberechnung wird diese Nukleationsphase nicht verlassen, während bei der genauen Berechnung die Temperatur für ein Kolloidwachstum ausreicht.

Im Gegensatz zum Temperaturverlauf, der in radialer Richtung auf den ersten 20 cm nur eine sehr geringe Abnahme zeigt ( $\Delta T \approx 2$  °C bei  $T_{max}$ ), nimmt die Dosisleistung mit zunehmendem radialen Abstand vom Bohrlochrand exponentiell schnell ab. In Bild A-28 sind die Ergebnisse von Modellrechnungen für die beiden Basisfälle 33-03-10-F12-

800 und 33-03-10-K24-800 dargestellt, für die am Bohrlochrand jeweils die maximale Strahlenschädigung in der Mitte und am Rand des Einlagerungsfeldes errechnet wurde.

Auch diese Ergebnisse zeigen eine exponentielle Abnahme der Na-Kolloidmenge in radialer Richtung, wobei die Abschwächungslänge bei 5,5 cm liegt und damit etwas geringer als die Abschwächungslänge für die Dosisleistung ist. Ähnliche Ergebnisse von Modellrechnungen liegen bereits für das niederländische Endlagerkonzept /SOP 94d/ vor. Das radiale Temperaturgefälle auf den ersten 20 cm ist zu Beginn der Einlagerung am größten und beträgt  $\Delta T \approx 15 \text{ }^\circ\text{C}$  nach ca. 0,5 bis 1 a. Die Effizienz der Kolloidbildung pro absorbierter Energiemenge ist in beiden Fällen in 4 cm Abstand etwas größer als am Bohrlochrand (siehe Tabelle 7). Dieser Effekt ist in der Ecke des Endlagerfeldes, wo die niedrigsten Temperaturen auftreten, besonders deutlich. Insgesamt überwiegt aber die schnelle Abnahme der Dosisleistung, so daß am Bohrlochrand die größte Strahlenschädigung auftritt.

**Tabelle 7** Kolloidmenge als Funktion des radialen Abstandes vom Bohrlochrand

Abstand	$C_{\max}$ [mol-% Na]	$t_{\max}$ [a]	D [MGy]	Effizienz [%]
Fall 33-03-10-F12-800				
0	0,88	28	273	0,0272
4	0,48	28	146	0,0276
8	0,22	28	76	0,0245
12	0,11	28	40	0,0232
16	0,04	28	20	0,0169
20	0,02	24	11	0,0154
Fall 33-03-10-K24-800				
0	2,04	180000	273	0,0631
4	1,26	235	146	0,0729
8	0,67	235	76	0,0745
12	0,32	235	40	0,0676
16	0,15	190	20	0,0634
20	0,07	190	11	0,0538

#### 4.2.2 Betrachtete zusätzliche Fälle

Für das Grundszenario 1, d.h. das Szenario mit der höchsten Strahlenschädigung bei den betrachteten 32 Basisfällen, wurden einige zusätzliche Modellrechnungen für Positionen durchgeführt, die in horizontaler und vertikaler Richtung zwischen den in den Basisfällen betrachteten Extrempositionen liegen. Dadurch soll überprüft werden, ob bei diesen Zwischenpositionen Parameterkombinationen existieren, die zu einer größeren Strahlenschädigung führen als für die Basisfälle berechnet.

Zunächst wurden für zwei weitere Bohrlöcher (I22 und J23) die Mittelebene und die oberste Bohrlochposition modelliert. Die Temperaturverläufe sind im Bild A-31 zu sehen. Anschließend wurden für das Eckbohrloch (K24) verschiedene vertikale Positionen in der Nähe des oberen Randes betrachtet. Die berechnete Strahlenschädigung für diese Fälle ist in Tabelle 8 aufgelistet.

Die Ergebnisse zeigen deutlich, daß keine signifikant höheren Strahlenschädigungen im Zwischenbereich auftreten. Die betrachteten Basisfälle stellen somit abdeckende Parameterkombinationen dar. Lediglich beim Bohrloch in der Ecke des Einlagerungsfeldes wurde für eine vertikale Position ca. 1 m unterhalb der Oberkante der Kokillensäule ein etwas höherer Wert der Kolloidbildung als beim Basisfall festgestellt. Das bedeutet, daß erst bei etwas höheren Temperaturen als an der Oberkante die optimalen Bedingungen für die Strahlenschädigung herrschen.

**Tabelle 8** Berechnete Maximaltemperatur und maximaler Anteil an Natriumkolloiden für die zusätzlich betrachteten Fälle

Zusätzliche Fälle	$T_{\max}$ [K]	Zeit t für $T_{\max}$ [a]	$C_{\max}$ [mol-% Na]	Zeit t für $C_{\max}$ [a]
33-03-10-K24-800*	60,5	12,84	2,05	180000
33-03-10-J23-800	79,6	44,04	1,08	505
33-03-10-I22-800	94,0	69,54	0,89	28
33-03-10-F12-800*	113,6	130,67	0,88	28
33-03-10-K24-955*	120,9	12,84	0,17	340000
33-03-10-J23-955	157,1	38,33	0,17	340000
33-03-10-I22-955	179,8	53,83	0,10	300000
33-03-10-F12-955*	198,9	78,73	0,03	1,45
33-03-10-K24-801			2,34	260000
33-03-10-K24-805			1,66	300000
33-03-10-K24-810			1,31	340000

- Daten aus Tabelle 6, die hier zum Vergleich nochmals aufgeführt sind

Ferner wurde der Einfluß des Bohrlochabstandes untersucht und es wurden Modellrechnungen für einen Bohrlochabstand von 60 sowie von 75 m durchgeführt. Die resultierenden Temperaturverläufe sind im Bild A-32 dargestellt. Erwartungsgemäß führt ein größerer Abstand zwischen den Einlagerungsbohrlöchern hauptsächlich zu einer Verringerung der Maximaltemperaturen, da sich die Temperaturfelder der einzelnen Bohrlöcher weniger überlagern. Folglich ist der Einfluß eines größeren Bohrlochabstandes in der Mitte des Einlagerungsfeldes auch stärker ausgeprägt als an dessen Rand.

Bei einem größeren Bohrlochabstand tritt in den Randbereichen eine geringere Strahlenschädigung auf, da dort bereits bei einem Abstand von 50 m die Temperaturen unterhalb des optimalen Bereiches lagen. In den wärmeren, d.h. mittleren Bereichen des Einlagerungsfeldes ergeben sich durch einen vergrößerten Bohrlochabstand niedrigere Temperaturen. Dadurch wird die Bildung von Strahlenschäden begünstigt, da die Temperatur näher am optimalen Bereich liegt. Allerdings treten hierbei keine höheren Strahlenschäden auf als bereits für die Randpositionen des Einlagerungsfeldes berechnet.

#### **4.2.3 Effizienz der Energiespeicherung**

Mit der Bildung von Strahlenschäden geht eine Energiespeicherung einher. Der Umrechnungsfaktor zwischen Defektkonzentration und gespeicherter Energie wurde kürzlich theoretisch zu 82,5 J/g für 1 mol-% kolloidales Na abgeleitet /DON 96c/. Er liegt damit in der Nähe experimentell ermittelter Werte.

Mit dem Umrechnungsfaktor kann aus den ermittelten Kolloidmengen die Effizienz der Energiespeicherung als Verhältnis der radiolytisch gespeicherten Energie und der eingestrahlten  $\gamma$ -Dosis ( $1 \text{ MGy} = 10^3 \text{ J/g}$ ) berechnet werden. Die Kolloidbildung hängt üblicherweise nicht linear von der  $\gamma$ -Dosis ab, sondern durchläuft drei Stadien (Induktionsphase, Linearbereich und Sättigungsbereich) /GIE 93/. Somit ist auch die Effizienz der Energiespeicherung für ein bestimmtes Szenario nicht konstant, sondern kann nur durch Festlegung eines bestimmten Schadensniveaus (z.B. 1 mol-% Na) oder einer Gesamtdosis berechnet werden. Bei den betrachteten Basisfällen ist die Effizienz der Energiespeicherung üblicherweise kurz vor Erreichen des Sättigungsbereiches, d.h. am Ende des Linearbereiches im Zeitbereich zwischen 1 und 100 a, am größten (siehe Bild A-33). Für einige ausgewählte Fälle sind die Ergebnisse in Tabelle 9 zusammengefaßt.

Der Maximalwert aller untersuchten Fälle liegt bei 0,075% und wird nach ca. 20 a erreicht. Nach sehr langen Zeiträumen liegen die maximalen Werte im Bereich um 0,06 % oder niedriger. Die berechneten Werte für die Energiespeicherung liegen unter

denen für das niederländische Endlagerkonzept /SOP 94d/. Der Hauptgrund sind die höheren Temperaturen beim deutschen Konzept.

In der letzten Spalte in Tabelle 9 sind die Gesamtenergien aufgeführt, die im Salz um eine Abfallkokille gespeichert werden. Entsprechende Berechnungen wurden auch für das niederländische Endlagerkonzept angestellt /PRI 96/. In dieser Veröffentlichung ist auch die Berechnungsmethode beschrieben.

**Tabelle 9** Spezifische Energiespeicherung, Effizienz und Gesamtenergiespeicherung für verschiedene Basisfälle

Basisfall	$SE_{\max}$ [J/G]	Effizienz [%]	Q [MJ]
33-03-10-F12-800	72,2	0,027	19,64
33-03-10-F12-955	2,5	0,001	0,68
33-03-10-K24-800	167,3	0,062	45,51
40-03-10-K24-800	169,7	0,063	46,16
40-10-10-K24-800	146,8	0,063	39,93
40-03-50-K24-800	50,0	0,042	13,60
40-03-50-K24-955	88,6	0,075	24,10
40-10-50-K24-955	68,1	0,063	18,52

$SE_{\max}$  ist die spezifische Energiespeicherung, berechnet auf der Basis der maximalen Kolloidmenge  $c_{\max}$  (siehe Tabelle 6), Q ist die gesamte gespeicherte Energie um eine Abfallkokille

In der Veröffentlichung von Prij /PRI 96/ wurden bereits die möglichen Auswirkungen dieser Energiespeicherung, die für die Sicherheit eines Endlagers von Bedeutung sind, genauer betrachtet. Da die maximalen Energiemengen, die nach dem niederländischen Endlagerkonzept im Salz um eine Abfallkokille gespeichert werden, um ca. 50 % höher liegen als die Werte in Tabelle 9, können die Aussagen und Schlußfolgerungen direkt übernommen werden.

Die gespeicherte Energie wird durch Reaktion der molekularen Bestrahlungsprodukte metallisches Natrium und Chlorgas freigesetzt. Bei der Abschätzung der möglichen thermo-mechanischen Konsequenzen wurde vom ungünstigsten Fall einer plötzlichen adiabatischen Freisetzung der gesamten gespeicherten Energiemenge Q ausgegangen. Zwei Mechanismen wurden identifiziert, durch die die gespeicherte Energie in sehr kurzer Zeit freigesetzt werden kann:

- Ein Freisetzungsmechanismus basiert auf einem *thermisch aktivierten* Prozeß, durch den die Defekte schnell aufeinander zu diffundieren. Dieser Prozeß läuft beispielsweise bei den DSC-Experimenten ab, mit deren Hilfe die Menge der durch Radiolyse im Salz gespeicherten Energie gemessen wird. Zur Initiierung dieses Vor-

gangs werden aber sehr hohe Temperaturen von weit über 200 °C benötigt. Nach dem Start des Prozesses beschleunigt die freiwerdende Energie durch Temperaturerhöhung den Vorgang. Nach den vorliegenden Modellrechnungen erfolgt die Strahlenschädenbildung unter endlagerrelevanten Bedingungen aber nur bei Temperaturen deutlich unter 150 °C, d.h. es besteht ein ausreichend hoher Sicherheitsabstand, da eine externe Wärmequelle notwendig wäre, durch die das Salz schnell auf mehr als 200 °C aufgeheizt wird. Eine solche Wärmequelle ist nicht vorstellbar.

- Der andere Mechanismus ist die *spontane Rückreaktion*, die bei Erreichen der sogenannten Perkolationsgrenze abläuft. Dann ist die Strahlenschädigung des Kristallgitters so groß, daß die Defektaggregate sich in unmittelbarer Nachbarschaft befinden und nicht mehr durch intakte Kristallebenen voneinander getrennt sind. Als Perkolationsgrenze wurde eine Strahlenschädigung des Steinsalzes von ca. 12 mol-% berechnet /SOP 94c/. Da für das deutsche Endlagerkonzept eine maximale Strahlenschädenbildung von ca. 2 mol-% ermittelt wurde, besteht auch für diesen Freisetzungsmechanismus ein ausreichender Sicherheitsabstand.

Obwohl nach den Ergebnissen der Modellrechnungen die Voraussetzungen für die beiden Prozesse in einem Endlager nicht gegeben sind und eine große Sicherheitsspanne besteht, wurde zur Bewertung der thermo-mechanischen Konsequenzen eine explosive Freisetzung der gesamten gespeicherten Energie unterstellt. Die Auswertung ergab, daß im Salzbereich um die Abfallkokillen Risse mit einer Länge von wenigen Metern entstehen können. Außerhalb dieser Zone bleibt das Salz intakt. Folglich wird der Einschluß der Radionuklide im Endlagerbereich durch das unterstellte Szenario einer plötzlichen Freisetzung der gespeicherten Energie nicht beeinträchtigt. Eine Freisetzung von Radionukliden auf der Basis dieses Szenarios kann somit ausgeschlossen werden.

#### 4.2.4 Vergleich mit der Jain-Lidiard-Theorie

Für einen Vergleich der Ergebnisse, die mit der Soppe-Theorie erhalten wurden, mit der JL-Theorie wurden für das Grundscenario 1 (Abbrand 33 GWd/t U, Abklingzeit 3 a, Zwischenlagerzeit 10 a) für einige ausgewählte Kokillenpositionen Modellrechnungen mit der JL-Theorie durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 10 gegenübergestellt.

Im allgemeinen wird mit der JL-Theorie ein größerer Anteil an Strahlenschäden berechnet. Dies ist vor allem darauf zurückzuführen, daß bei der JL-Theorie die Nukleationsphase im Modell nicht berücksichtigt wird.

**Tabelle 10** Vergleich der Ergebnisse der Jain-Lidiard-Theorie und des Soppe-Modells für ausgewählte Positionen im Endlagerfeld

Bohrlochlage im Endlagerfeld	Teufe [m]	Kolloidanteil JL-Theorie [mol-% Na]	Kolloidanteil Soppe -Theorie [mol-% Na]
Mitte	955,25	0,04	0,03
Mitte	800	0,94	0,88
Ecke	955,25	0,31	0,17
Ecke	800	2,15	2,05

#### 4.2.5 Zusammenfassende Bewertung

Die Ergebnisse der Modellrechnungen ermöglichen Aussagen zum Einfluß der verschiedenen Einflußgrößen wie Brennstoffabbrand, Abklingzeit nach Entnahme der Brennelemente aus dem Reaktorkern, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung, Position im Endlager, radialer Entfernung vom Bohrloch, Temperatur und  $\gamma$ -Dosisleistung auf die Bildung von Natriumkolloiden. Die wichtigsten Ergebnisse sind:

- In einem deutschen Endlager im Salinar entsteht im ungünstigsten Fall eine Strahlenschädigung von ca. 2,4 mol-% Na. Dies entspricht einer Energiespeicherung von ca. 190 J/g. Die maximale Strahlenschädigung tritt nach ca. 100 a am Rande des Einlagerungsfeldes 1 m unterhalb des oberen Randes des Kokillenstapels auf, wenn eine Abklingzeit nach Entnahme der Brennelemente aus dem Reaktorkern von 3 a und eine kurze Zwischenlagerzeit nach der Wiederaufarbeitung von 10 a angenommen wird. Nach dem heutigem Diskussionsstand ist aber zu erwarten, daß in einem deutschen Endlager Abfälle mit erheblich längeren Zwischenlagerzeiten nach der Wiederaufarbeitung eingelagert werden.
- Bei sonst gleichem Szenario ist die Strahlenschädenbildung jeweils am Außenrand des Einlagerungsfeldes, d.h. am oberen und unteren Ende eines Bohrloches und in der Ecke des Feldes, am größten.
- Es sind generell zwei Zeitbereiche zu erkennen, in denen sich die Menge an kolloidalem Natrium im Steinsalz erhöhen kann. Die erste Phase liegt im Zeitbereich zwischen 10 und 200 a. In diesem Zeitbereich werden bereits ca. 85 % der gesamten  $\gamma$ -Dosis im Salz deponiert. Unter bestimmten Randbedingungen kommt es zu einem weiteren Aufbau von Strahlenschäden in langen Zeiten nach ca. 10 000 a.
- Im Laufe der Zeit verringern sich die Temperaturen und Dosisleistungen. In vielen Fällen verschwinden bereits gebildete Kolloide wieder nach einiger Zeit, d.h. es kommt zur Ausheilung der Strahlenschädigung. In diesen Zeitbereichen ist die

kritische Dosisleistung unterschritten, so daß es zu keiner Neubildung von Strahlenschäden kommen kann, während die Rekombinationsprozesse der Defekten weiter ablaufen.

- Die höchste im Endlager auftretende  $\gamma$ -Dosis beträgt bei Berücksichtigung realistischer Eingangsdaten am Bohrlochrand ca.  $3 \cdot 10^8$  Gy. Sie liegt damit etwas niedriger, als bisher allgemein angenommen /GIE 93, ROT 95/. Der Einfluß des Abbrandes auf die resultierende  $\gamma$ -Dosis im Salz ist relativ gering.
- In radialer Richtung nimmt die Menge an Natriumkolloiden schnell exponentiell ab. Bei allen betrachteten Fällen liegt die Strahlenschädigung am Bohrlochrand am höchsten und kann in einer radialen Entfernung von  $>20$  cm vernachlässigt werden, da die Gesamtdosis dort unterhalb von 10 MGy liegt.
- Ein höherer Abbrand des Brennstoffes führt in der Nähe des Sättigungsbereiches zu einer Erhöhung der Strahlenschädigung. Liegt das Ausmaß der Strahlenschädigung unterhalb dieses Bereiches führt ein höherer Abbrand zu einer Verringerung der Menge an Na-Kolloiden.
- Eine längere Abkling- und Zwischenlagerzeit führt im Sättigungsbereich zu einer gewissen Verringerung der Kolloidbildung. Bei geringen Strahlenschädigungen führt eine längere Abklingzeit je nach betrachtetem Fall zu einer kleinen Erhöhung oder Verringerung der Strahlenschädigung.
- Die vereinfachten Annahmen für die Temperaturberechnung im Zeitraum nach 1000 a haben nur einen geringen Einfluß auf das berechnete Ausmaß der Strahlenschädenbildung.
- Mit dem Original-JL-Modell werden im Sättigungsbereich jeweils leicht höhere Strahlenschädigungen errechnet als mit dem Soppe-Modell. Im Bereich geringer Strahlenschädigung ergibt das JL-Modell erheblich höhere Na-Kolloidmengen. Mit der JL-Theorie können somit konservative Obergrenzen abgeschätzt werden.

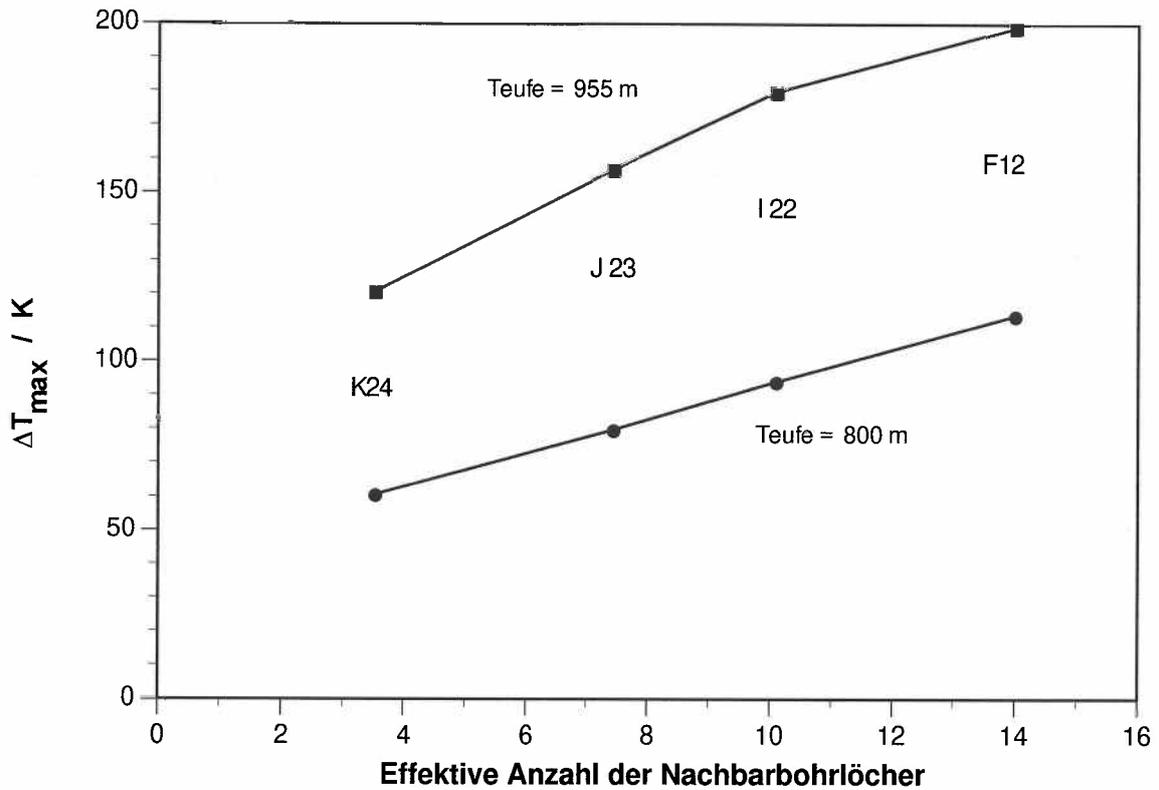
Für die Bewertung der Frage, inwieweit diese Ergebnisse belastbar für ein reales Endlager im Salinar sind, müssen im wesentlichen zwei Fragestellungen beantwortet werden:

1. Sind tatsächlich abdeckende Parameterkombinationen gewählt worden?
2. Ist das verwendete theoretische Modell korrekt bzw. konservativ im Bezug auf den Einfluß der verschiedenen Parameter und speziell der Dosisleistung auf die Strahlenschädenbildung?

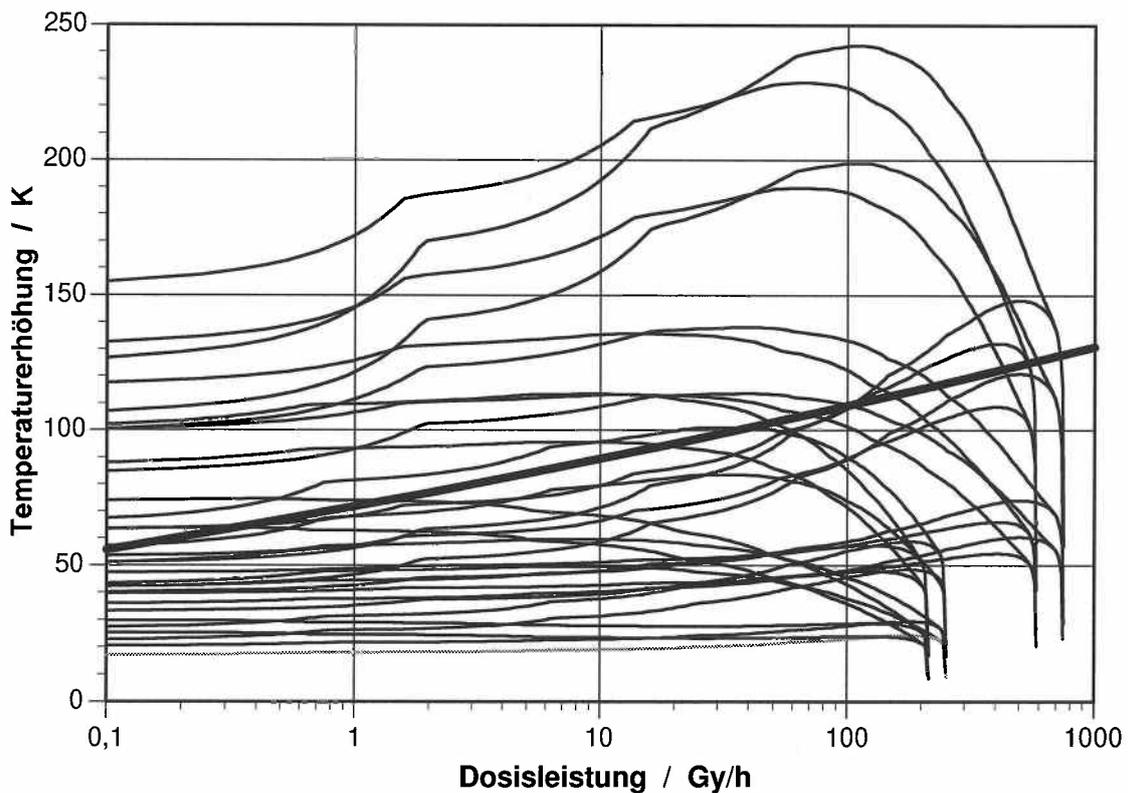
Die Wärme- und  $\gamma$ -Dosisleistung einer Abfallkokille hängen vom Nuklidinventar ab und sind nicht vollständig unabhängig voneinander. Vielmehr weisen Kokillen mit einer hohen  $\gamma$ -Dosisleistung immer auch eine relativ hohe Wärmeleistung auf. Trotzdem variieren die Temperaturen in einem realen Endlagerfeld ganz erheblich. Wegen der endlichen Geometrie haben die Bohrlöcher z.T. eine sehr unterschiedliche Anzahl von Nachbarbohrlöcher, deren Wärmefelder die lokale Temperatur beeinflussen. In Bild 5 sind die resultierenden Temperaturen in der Bohrlochmitte und am oberen Bohrlochrand in Abhängigkeit von der effektiven Anzahl der Nachbarbohrlöcher für das Szenario 1 dargestellt. Die effektive Anzahl der Bohrlöcher wurde durch Summation der Quadrate der radialen Entfernung der benachbarten Bohrlöcher ermittelt, die in einem Gebiet mit einem Radius liegen, der der kürzesten Entfernung zum Erreichen des Feldrandes entspricht. Lediglich für die beiden Bohrlöcher direkt in der Ecke des Feldes (K24 und J23) wurde eine zusätzliche Reihe von Bohrlöchern berücksichtigt. In einem realen Endlagerfeld werden die meisten Bohrlöcher mindestens 10 effektive Nachbarbohrlöcher besitzen. Sie weisen somit nur relativ geringe Temperaturunterschiede zum zentralen Bohrloch auf.

Folglich tritt in einem realen Endlager für jede Dosisleistung, die durch das betrachtete Szenario bestimmt wird, ein relativ breites Band von möglichen Temperaturen auf. Dies ist deutlich in Bild 6 zu erkennen, in dem für alle 32 betrachteten Basisfälle der jeweilige Zusammenhang zwischen Dosisleistung an der Bohrlochwand und der aktuellen Temperatur für die ersten 1000 a nach der Einlagerung dargestellt ist. Deutlich ist zu erkennen, daß praktisch der gesamte Parameterbereich abgedeckt wird. Die dicke Linie gibt die nach der Jain-Lidiard-Theorie abgeleitete kritische Dosisleistung wieder. Nur im unter der Linie befindlichen Bereich ist für eine gegebene Temperatur die Dosisleistung ausreichend hoch, um zur Kolloidbildung zu führen.

Der Einfluß des vertikalen Temperaturprofils, das sich bei einem Bohrloch einstellt, auf die Strahlenschädenbildung wurde nicht detailliert sondern nur stichprobenartig untersucht. Effekte sind auch nur direkt am oberen bzw. unteren Ende zu erwarten, wo die Temperaturen etwas höher als beim berechneten Basisfall aber noch deutlich unter der für die Mittelposition liegen. In der Tat wurde für eine Position 1 m unterhalb des oberen Bohrlochendes die höchste Strahlenschädigung gefunden, die jedoch nur geringfügig über dem für das obere Bohrlochende berechneten Wert lag. Ein sorgfältiger Vergleich zeigt, daß die im vertikalen Temperaturprofil auftretenden Zwischentemperaturen häufig durch die Parameterkombination bei anderen Basisfällen abgedeckt werden.



**Bild 5** Abhängigkeit der resultierenden Temperaturen beim Szenario 1 von der Anzahl der effektiven Nachbarbohrlöcher



**Bild 6** Bei den Modellrechnungen berücksichtigte Kombinationen der Einflußgrößen Temperatur und  $\gamma$ -Dosisleistung

Somit ist die Schlußfolgerung zulässig, daß im Rahmen der durchgeführten Modellrechnungen tatsächlich abdeckende Parameterkombinationen hinsichtlich der beiden wichtigsten Einflußgrößen Temperatur und  $\gamma$ -Dosisleistung betrachtet worden sind. Es kann davon ausgegangen werden, daß in keinem Bereich des realen Endlagers eine Parameterkombination auftritt, die zu einer Strahlenschädigung führt, welche über das hier berichtete Maß hinausgeht.

Die Frage, ob das Soppe-Modell den Einfluß der Dosisleistung auf die Strahlenschädenbildung korrekt wiedergibt, ist schwieriger zu beantworten. Wie in Kap. 2.3 ausgeführt, wurde das Soppe-Modell punktuell mit verschiedenen Versuchsergebnissen überprüft, wobei die experimentellen Dosisleistungen im Bereich zwischen  $1 \cdot 10^2$  und  $1 \cdot 10^6$  Gy/h lagen. Im allgemeinen ergab sich eine gute Übereinstimmung der Modellvorhersagen mit den experimentellen Daten. Im Bezug auf die Kolloidbildung sind die Ergebnisse konservativ, das Ausmaß der Schädigung wird also jeweils überschätzt.

Da nach den Modellrechnungen das Wachstum der Na-Kolloide unter endlagerrelevanten Bedingungen in zwei Zeiträumen auftritt, werden diese getrennt betrachtet. In der ersten Phase zwischen 1 und ca. 150 a nach der Einlagerung liegt die Dosisleistung zwischen 700 und 50 Gy/h. Für diesen Dosisleistungsbereich gibt es zwar keine experimentellen Daten zum Kolloidwachstum, aber für die Konzentration an F-Zentren unter verschiedenen Randbedingungen zeigen Modellrechnungen und Daten eine gute Übereinstimmung. Auf dieser Basis kann davon ausgegangen werden, daß die Ergebnisse der Modellrechnungen eine ausreichende Belastbarkeit besitzen.

Die Strahlenschädenbildung, die in langen Zeiten nach der Einlagerung auftritt, ist im Bezug auf die Integrität des Wirtsgesteins völlig unkritisch. In der Zeitspanne zwischen 200 und 500 000 a wird eine maximale  $\gamma$ -Dosis an der Bohrlochwandung von ca. 35 MGy und in 20 cm Entfernung von ca. 1 MGy akkumuliert. Die Dosen sind aber viel zu niedrig, um signifikante Strahlenschädigungen erzeugen zu können. Obwohl keine experimentellen Daten zum Einfluß der niedrigen Dosisleistungen, die in diesem Zeitbereich herrschen, vorliegen und die Modellaussagen damit zwangsläufig eine große Unsicherheit aufweisen können, ist diese Schlußfolgerung auf der Basis folgender Betrachtungen zulässig.

Experimentell und durch Modellrechnungen wurde für eine Reihe von Parameterkombinationen die Effizienz der Energiespeicherung bestimmt. Sie lag in allen Fällen unterhalb von 0,1 % und z.T. sogar deutlich darunter. Selbst unter der Annahme eines um den Faktor 5 höheren Wertes von 0,5 % für die Effizienz der Energiespeicherung ergäbe sich in dem langen Zeitbereich eine maximale Energiespeicherung von 175 J/g NaCl.

Darüber hinaus ist zu berücksichtigen, daß die Modellrechnungen im allgemeinen höhere Strahlenschädigungen vorhersagen als experimentell beobachtet wird. Dies ist auf Ausheilprozesse zurückzuführen, wie z.B. eine lange Nukleationsphase und verschiedene Kriechprozesse /GAR 94/, die im Experiment zu einer Verringerung der Strahlenschädigung führen und bei den Modellrechnungen nicht berücksichtigt werden. Da diese Ausheilprozesse langsam ablaufen, ist zu erwarten, daß ihre Bedeutung gerade bei sehr kleinen  $\gamma$ -Dosisleistungen groß ist und sich im Zeitbereich  $>1000$  a verstärkt.

## 5 Zusammenfassung und Schlußfolgerungen

Die radiolytische Bildung von Strahlenschäden in Alkalihalogeniden ist ein Vorgang, der bei der Endlagerung von wärmeentwickelnden, hochradioaktiven Abfällen im Salinar bei normalen Betriebsbedingungen abläuft. Über einen komplexen Mechanismus entstehen aus den primär gebildeten Defektpaaren aus F- und H-Zentren bei hohen  $\gamma$ -Dosen letztlich die molekularen Radiolyseprodukte Chlorgas und metallisches Natrium in kolloidaler Form, die getrennt im Kristallgitter vorliegen. Begleitet wird dieser Prozeß durch die Speicherung von Energie. Die Bildung chemisch sehr reaktiver Bestrahlungsprodukte stellt potentiell ein Sicherheitsproblem dar und wurde deshalb intensiv experimentell und theoretisch untersucht.

Das Ausmaß der Strahlenschädigung hängt in erster Linie von den Parametern  $\gamma$ -Dosisleistung und Temperatur ab. 1993 wurde der damalige Kenntnisstand in einem Statusbericht zusammengefaßt /GIE 93/. Der vorliegende Bericht stellt eine Fortschreibung des Kenntnisstandes dar. In der Zwischenzeit sind einige Ergebnisse aus dem russischen Sprachraum zu diesem Themenkomplex zugänglich geworden. Ferner wurden die neuen experimentellen Untersuchungen aufgenommen, die in den letzten drei Jahren hauptsächlich im Rahmen von EG-Projekten erhalten wurden. Damit hat sich die experimentelle Datenbasis erweitert, auf deren Grundlage die theoretischen Modellvorhersagen überprüft werden können. Dieser Punkt ist besonders wichtig. Strahlenschäden treten erst bei sehr hohen  $\gamma$ -Dosen auf. Sie können experimentell nicht unter endlagerrelevanten Randbedingungen verfolgt werden, da sehr hohe Dosisleistungen verwendet werden müssen, um die notwendige Dosis in experimentell zugänglichen Zeiträumen zu erreichen. Alle Aussagen zum Ausmaß der Strahlenschädenbildung bei der Endlagerung von hochradioaktivem Abfall im Salinar basieren deshalb auf Modellrechnungen.

Die Auswertung der neuen bzw. nunmehr zugänglich gewordenen Daten hat die verfügbare Datenbasis zur Überprüfung der theoretischen Modelle erweitert, aber nicht zu völlig neuen Erkenntnissen geführt. Die Defektstrukturen und der Mechanismus, der zur radiolytischen Strahlenschädigung in Alkalihalogeniden mit Bildung von molekularen Defektclustern führt, sind heute gut verstanden.

Der Umrechnungsfaktor zwischen der gespeicherten Energie und der Strahlenschädigung wurde theoretisch zu 82,5 J/g für 1 mol-% kolloidales Na bestimmt. Dieser Wert entspricht einer Energie für die Erzeugung eines F-H-Paares von 5 eV. Der theoretische Wert stimmt recht gut mit experimentellen Daten überein, die etwas niedriger liegen.

Eindeutig belegt ist durch eine Vielzahl von experimentellen Ergebnissen mehrerer Autoren, daß bei bestimmten Temperaturen und Dosisleistungen bei hohen  $\gamma$ -Dosen

eine Sättigung in der gespeicherten Energie bzw. der Na-Kolloidbildung auftritt. Bei Temperaturen um 100 °C und Dosisleistungen um ca.  $10^4 - 10^5$  Gy/h beträgt die maximale Energiespeicherung ca. 150 J/g, was einer Sättigungskonzentration von ca. 1,7 mol-% Na entspricht. In diesem Temperaturbereich tritt auch das Maximum der Kolloidbildung auf. Weitere experimentelle Untersuchungen zum Einfluß verschiedener Parameter auf die Sättigungskonzentration an Na-Kolloiden bei hoher  $\gamma$ -Dosis und Dosisleistungen über  $10^4$  Gy/h scheinen zur Zeit nicht notwendig zu sein. Auch von der Auswertung von in-situ-Versuchen mit Strahlenquellen ist keine Erweiterung des Kenntnisstandes zu erwarten.

Eine gewisse Unsicherheit betrifft weiterhin den Einfluß der  $\gamma$ -Dosisleistung auf die Strahlenschädigung, da nur sehr wenige experimentelle Daten zu diesem Aspekt vorhanden sind. Nach dem Soppe-Modell ist der Einfluß relativ gering. So erhöht sich die Strahlenschädenbildung bei einer Verringerung der Dosisleistung um eine Größenordnung um den Faktor 1,5. Obwohl das Soppe-Modell als gut abgesichert gelten kann, wären weitere experimentelle Untersuchungen sinnvoll, in denen gezielt der Einfluß der Dosisleistung untersucht wird.

Der Entwicklungsstand der theoretischen Modelle wurden in den letzten Jahren ebenfalls verbessert. So sind neben den klassischen makroskopischen Ansätzen wie der Jain-Lidiard-Theorie (JL-Theorie) und deren Erweiterungen wie dem Soppe-Modell auch neue Modelle, die auf mesoskopischen und mikroskopischen Ansätzen basieren, vorgestellt worden. Diese befinden sich aber zur Zeit noch im Entwicklungsstadium und sind noch nicht ausreichend durch Vergleich mit experimentellen Daten abgesichert.

Von den auf dem makroskopischen Ansatz basierenden Modellen kann das Soppe-Modell als am besten abgesichert angesehen werden. Einige Parameter des Soppe-Modells wurden durch Anpassung an experimentelle Daten zum Teil verbessert. Ein Vergleich mit experimentellen Daten zeigt, daß der Einfluß der meisten Parameter qualitativ sehr gut wiedergegeben wird. Trotzdem könnten noch einige Modellparameter genauer bestimmt werden, so z.B. die Kinetik der Rückreaktion zwischen F-Zentren und den Chloransammlungen und die maximale Versetzungsliniendichte. Zur Festlegung der Randbedingungen für solche gezielten Experimente ist in jedem Fall eine vorherige Abstimmung mit den Entwicklern der theoretischen Modelle angezeigt.

In quantitativer Hinsicht führen die Rechnungen mit dem Soppe-Modell im experimentell zugänglichen Dosisleistungsbereich generell zu einer Überschätzung der Strahlenschädenbildung, da bestimmte Reaktionen, die zur Ausheilung von Defekten führen, in den Modellen nicht berücksichtigt sind. Die berechneten Strahlenschädigungen können somit als konservative Obergrenze betrachtet werden. Nach heutigem Kenntnisstand ist nicht zu erwarten, daß die Modellrechnungen nach dem Soppe-Modell

unter endlagerrelevanten Bedingungen eine Unterschätzung der Strahlenschädenbildung ergeben.

Mit dem Soppe-Modell wurden erstmals Modellrechnungen zur radiolytischen Strahlenschädenbildung im Steinsalz mit realistischen Randbedingungen im Bezug auf die Temperaturen und  $\gamma$ -Dosisleistungen, die in einem deutschen Endlager auftreten können, und unter Berücksichtigung ihrer zeitlichen Veränderungen durchgeführt. Für die einzelnen Einflußfaktoren wurden auf der Basis früherer Studien begründete Annahmen getroffen. Nicht alle Auslegungsgrößen für das Endlager sind bereits jetzt festgelegt. Darüber hinaus werden manche, wie z.B. das Nuklidinventar der Abfallkokillen, immer eine gewisse Streuung aufweisen, da nur Maximalgehalte aber keine Minimalgehalte garantiert werden. Dies ergibt eine gewisse Unsicherheit im Bezug auf die in den Modellrechnungen zu untersuchenden Parameterkombinationen. Zur Abdeckung der Unsicherheiten wurden verschiedene Parameterkombinationen analysiert. Es konnte gezeigt werden, daß die Ergebnisse der Modellrechnungen belastbar sind und den möglichen Parameterbereich ausreichend sicher abdecken.

Auf der Basis der hier vorgestellten Modellrechnungen kann die maximal in einem Endlager im Salinar auftretende Strahlenschädigung mit 2 mol-% Na abgeschätzt werden. Die gespeicherte Energie liegt dann bei ca. 165 J/g. Die maximale Strahlenschädigung tritt am Rand des Endlagerfeldes auf. Im Zentrum des Feldes sind über eine sehr lange Zeitspanne die Temperaturen so hoch, daß die Dosisleistungen unterhalb der kritischen Dosisleistung liegen und keine nennenswerte Kolloidbildung möglich ist.

Falls ein Auslegungskriterium für ein Endlager die Minimierung der möglichen Strahlenschädenbildung wird, liefern die Ergebnisse der Modellrechnungen einige Hinweise zu dessen Optimierung. Die geometrische Auslegung des Endlagerfeldes sollte möglichst quadratisch sein, damit eine relativ geringe Anzahl von Bohrlöchern im Randbereich liegt. Innerhalb des zulässigen Temperaturbereiches für das Endlager sollten möglichst hohe Temperaturen für einen langen Zeitraum herrschen. Dies könnte durch eine Optimierung der Abstände zwischen den Einlagerungsbohrlöchern erreicht werden. Bei höheren Temperaturen sind zur Bildung von Strahlenschäden höhere Dosisleistungen notwendig. Eine Verlängerung der Zwischenlagerzeit ist sinnvoll, da sie im allgemeinen zu einer Verringerung der Strahlenschädigung im Steinsalz um den Faktor 2 führt. Nur in den Randbereichen des Endlagerfeldes treten in langen Zeiträumen etwas höhere Strahlenschädigungen auf.

Im realen Endlager kann die Bildung von Strahlenschäden im Wirtsgestein durch technische Maßnahmen einfach verhindert werden, indem die Abfallkokillen in einem zusätzlichen Abschirmbehälter, einem sogenannten Overpack, untergebracht werden. Diese Maßnahme erhöht aber die Kosten für die Endlagerung beträchtlich. Wie die Modellrechnungen gezeigt haben, sind Strahlenschädigungen im wesentlichen nur an

den Rändern des Einlagerungsfeldes zu erwarten. Die Ergebnisse liegen in einem Bereich, in dem noch keine negativen Folgen, wie z.B. eine spontane Energiefreisetzung mit erheblicher Aufheizung des Wirtsgesteins und potentieller Ribbildung, zu befürchten sind. Die Integrität des Einlagerungsbereiches ist durch das Ausmaß der Strahlenschädenbildung nicht gefährdet. Trotzdem könnte daran gedacht werden, die vorhandenen Sicherheitsreserven durch Verwendung zusätzlicher Overpacks weiter zu erhöhen, die zur Optimierung von Kosten und Nutzen nur in den Randbereichen des Einlagerungsfeldes verwendet werden. Andere Alternativen bestehen in einer Verringerung des Bohrlochabstandes zum Rand des Endlagerfeldes hin sowie in einer Einlagerungsstrategie, bei der die heißen Kokillen außen und die "kalten" Kokillen in der Mitte des Feldes eingesetzt werden.

Die ermittelte Strahlenschädigung ist hinsichtlich der Langzeitauswirkungen unbedenklich. Eine spontane Freisetzung der gespeicherten Energie ist nicht zu erwarten, da kein Freisetzungsmechanismus vorstellbar ist. Aber selbst unter der Annahme, daß die gesamte um ein Einlagerungsbohrloch gespeicherte Energie plötzlich freigesetzt wird, wären die mechanischen Auswirkungen gering und auf wenige Meter um das Bohrloch herum begrenzt.

## 6 Literatur

- /AGU 88/ Agullo-López, F., Catlow, C.R.A., Townsend, P.D.  
Point Defects in Materials  
Academic Press, London, (1988)
- /ARA 91/ Arapov, B.A., Oskonbaev, M.Ch. und Kamalov, S.M.  
Lumineszenz und Ionen-Loch-Prozesse in NaCl-Kristallen  
Fizika Tverdogo Tela  
Akademija Nauk SSSR 11 (1991), 3158 - 3162
- /BAL 68/ Balzer, R., Peisl, H. und Waidelich, W.  
Evidence for Frenkel Defect Formation in Low-Temperature X-Irradiated  
KCl and KBr  
Phys. Letters **27A** (1968), 31 - 32
- /BER 85/ Bergsma, R.J., Helmholdt, R.B. und Heijboer, R.J.  
Radiation Dose Deposition and Colloid Formation in a Rock Salt  
Repository  
Nucl. Technol. **71** (1985), 597 - 607
- /CUE 96/ de las Cuevas, C. und Miralles, L.  
Colour Centres Development by Gamma-Irradiation of Natural and  
Synthetic Rock Salt Samples  
in „The Effects of Gamma Radiation in Salt“, Ed. García Celma, A. und  
Donker, H., EUR Report 16743 EN, (1996), 259 - 287
- /DON 96a/ Donker, H. und Garcia Celma, A.  
Stored Energy in Irradiated Natural Rock Salt as Compared to Synthetic  
Halite of Different Characteristics  
in „The Effects of Gamma Radiation in Salt“, Ed. García Celma, A. und  
Donker, H., EUR Report 16743 EN, (1996), 299 - 334
- /DON 96b/ Donker, H. und Garcia Celma, A.  
On the Saturation of Radiation Damage in Irradiated Natural Rock Salt  
in „The Effects of Gamma Radiation in Salt“, Ed. García Celma, A. und  
Donker, H., EUR Report 16743 EN, (1996), 335 - 348
- /DON 96c/ Donker, H., Soppe, W.J. und Garcia Celma, A.  
On the Relationship between Stored Energy and Colloidal Sodium  
Production in Irradiated Rock Salt  
in „The Effects of Gamma Radiation in Salt“, Ed. García Celma, A. und  
Donker, H., EUR Report 16743 EN, (1996), 349 - 363
- /ELA 91/ Elango, M.A.  
Elementary Inelastic Radiation-Induced Processes  
American Institute of Physics, New York, (1991)

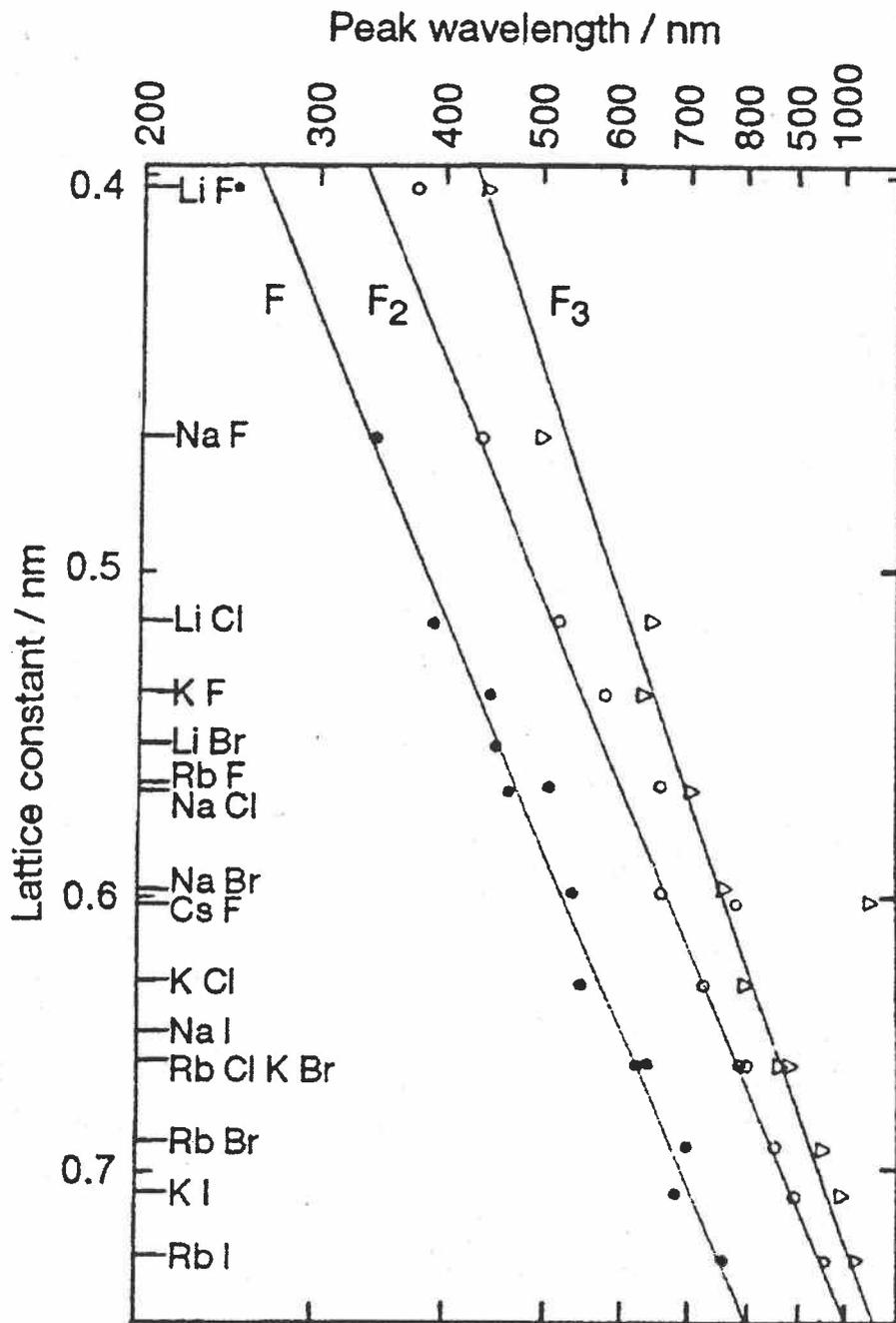
- /FIS 83/ Fischer, U. und Wiese, H.W.  
Verbesserte konsistente Berechnung des nuklearen Inventars  
abgebrannter DWR-Brennstoffe auf der Basis von Zell-Abbrand-  
Verfahren mit KORIGEN  
KfK 3014, Forschungszentrum Karlsruhe, (1983)
- /GAR 94/ García Celma, A. und Donker, H.  
Radiation-induced creep of confined NaCl  
Rad. Eff. Def. in Sol. **132** (1994), 223 - 247
- /GAR 96/ García Celma, A. und Donker, H. (Editors)  
The Effects of Gamma Radiation in Salt  
EUR Report 16743 EN, (1996), 458 S.
- /GEK 84/ Gektin, A.V., Ptizuin, G.W., Rosenberg, G.Ch. und Shiran, N.V.  
Zwischengitterstufenringe in  $\gamma$ -bestrahlten NaCl-Kristallen  
Ukrainskij Fizicheskij Zhurnal **8** (1984), 1208 - 1212
- /GEO 80/ Georgiev, G.P. und Sirap, V.E.  
Die Ausheilung von Strahlungsdefekten und die Übertragung von  
Ladungen im NaCl oberhalb der Zimmertemperatur  
Elektronen- und Ionenprozesse in Ionenkristallen  
Nauchno-Issledovatel'skij Institut Fiziki Tverdogo Tela  
Latvyskij Gosudarstvennij Universitet Riga (1980), 30 - 57
- /GIE 93/ Gies, H., Hild, W., Kühle, Th. und Mönig, J.  
Strahleneffekte im Steinsalz - Statusbericht  
GSF-Bericht 9/93, GSF Neuherberg, (1993)
- /GRO 94/ Groote, J.C., Weerkamp, J.R.W., Seinen, J. und den Hartog, H.W.  
Radiation Damage in NaCl. IV. Raman Scattering  
Physical Review **B 50** (1994), 9798 - 9802
- /HAR 93/ den Hartog, H.W., Groote, J.C., Weerkamp, J.R.W., Seinen, J. und  
Datema, H.  
Storage of Nuclear Waste in Salt Mines: Radiation Damage in NaCl  
in "Defects in Insulating Materials", Eds. Kanert, O. und Spaeth, J.M.,  
World Scientific Singapore (1993), 410 - 423
- /HEI 89/ Heijboer, R.J., de Haas, J.B.M., van Dalen, A. und Benneker, P.B.J.M.  
Nuclide-inventaris, warmtebelasting, gammastrahling van kernsplijtings-  
afval  
VEOS eindrapport deel 11, ECN, (1989)

- /INA 94/ Inabe, K., Takeuchi, N. und Owaki, S.  
Initial stage of sodium cluster formation in NaCl after intense electron pulse irradiation  
Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. **B 91** (1994), 201 - 204
- /JAI 77/ Jain, U. und Lidiard, A.B.  
The Growth of Colloid Centers in Irradiated Alkali Halides  
Phil. Mag. **35** (1977), 245 -259
- /JEN 74/ Jenks, G.H. und Bopp, C.D.  
Storage and Release of Radiation Energy in Salt in Radioactive-Waste Repositories  
Oak Ridge Nat. Lab. Rep. ORNL-TM-4449 (1974)
- /JEN 77/ Jenks, G.H. und Bopp, C.D.  
Storage and Release of Radiation Energy in Salt in Radioactive-Waste Repositories  
Oak Ridge Nat. Lab. Rep. ORNL-5058 (1977)
- /KAB 80/ Kabakchi, S.A., Lebedeva, I. und Orlova, V.D.  
Die Einwirkung ionisierender Strahlung verfestigter Abfälle auf die Wände von Lagerstätten, geschaffen in Salzformationen,  
Vortrag (5 Seiten), Institut für physikalische Chemie der Akademie der Wissenschaften der UdSSR, Moskau, 1980
- /KIT 96/ Kittel, Ch.  
Introduction to Solid State Physics, 7. Edition,  
Wiley&Sons, New York (1996)
- /KOT 93/ Kotomin, E.A, und Zaiser, M.  
A Mesoscopic Approach to Point-Defect Clustering in Solids during Irradiation  
Appl. Phys. **A57** (1993), 117 - 121
- /KOT 94/ Kotomin, E.A, Zaiser, M. und Soppe, W.  
A Mesoscopic Approach to Radiation-Induced Defect Aggregation in Alkali Halides Stimulated by the Elastic Interaction of Mobile Frenkel Defects  
Phil. Mag. **A70** (1994), 313 - 327
- /KOT 95/ Kotomin, E.A, Kuzovkov, V.N., Zaiser, M. und Soppe, W.  
Theory of Diffusion-Controlled Defect Aggregation under Irradiation: A Comparative Study of Three Basic Approaches  
Rad. Eff. Def. Solids **136** (1995), 209 - 215

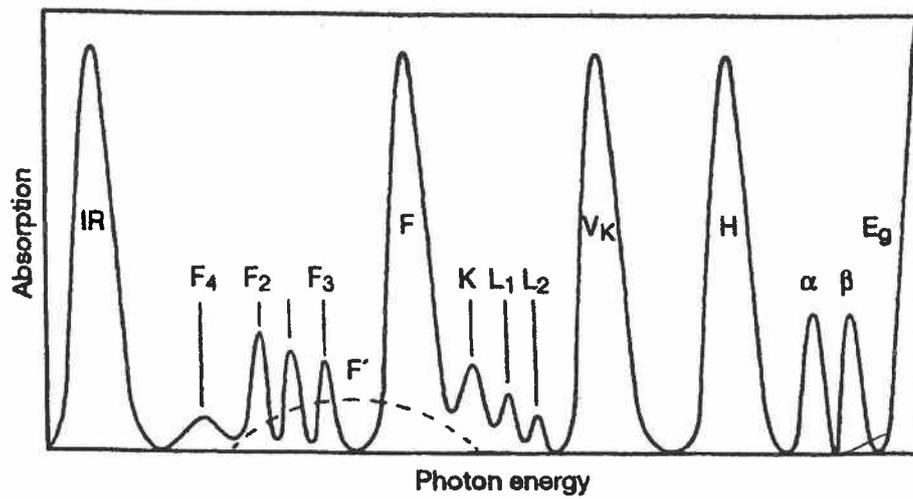
- /KUZ 88/ Kuzovkov, V.N. und Kotomin, E.A.  
Kinetics of Bimolecular Reactions in Condensed Media: Critical Phenomena and Microscopic Self-Organisation  
Rep. Prog. Phys. **51** (1988), 1479 - 1523
- /KUZ 93/ Kuzovkov, V.N. und Kotomin, E.A.  
The Kinetics of Defect Accumulation Under Irradiation: Many-Particle Effects  
Physica Scripta **47** (1993), 585 - 595
- /KUZ 95/ Kuzovkov, V.N. und Kotomin, E.A.  
The Kinetics of F-Center Aggregation Under Irradiation: Many-Particle Effects in Ionic Solids  
Physica Scripta **50** (1995), 720 - 725
- /LID 79/ Lidiard, A.B.  
Energy Stored in Irradiated NaCl  
Phil. Mag. **A39** (1979), 647 - 659
- /LUT 64/ Lutschik, T.B., Vitov, I.K. und Elango, M.A.  
Elektronen-Defektelektronen-Mechanismus der Bildung von Farbzentren in Ionenkristallen  
Fizika Tverdogo Tela  
Akademija Nauk SSSR, Moskau-Leningrad **8** (1964), 2256 - 2262
- /MÖN 96/ Mönig, J., Jockwer, N. und Gies, H.  
Colloid Formation and Stored Energy Deposition in Irradiated Natural Rock Salt Samples  
in „The Effects of Gamma Radiation in Salt“, Eds. García Celma, A. und Donker, H., EUR Report 16743 EN, (1996), 287 - 298
- /OZE 79/ Ozerskij, V.Ja.  
Die Akkumulation von V- und X-Zentren in Alkalihalogenid-Kristallen bei hohen Strahlendosen  
Fizikas un Tehinsko ZINATNU Serija  
Akademija Nauk Latvijas SSR Riga **6** (1979), 29 - 37
- /PRI 91/ Prij, J.  
On the design of a Radioactive Waste Repository  
Thesis, Universität Twente, (1991)
- /PRI 96/ Prij, J.  
Evaluation of the Safety Consequences of Radiation Induced Stored Energy in a Repository in Rock Salt  
in „The Effects of Gamma Radiation in Salt“, Eds. García Celma, A. und Donker, H., EUR Report 16743 EN, (1996), 425 - 444

- /PSE 85/ Projekt Sicherheitsstudien Entsorgung (PSE)  
Abschlußbericht, Berlin (1985)
- /RAB 80/ Rabsha, S.Ja. und Ekmanis, Ju.A.  
Kinetik der Radiolyseprozesse in NaCl-Kristallen bei  
Hochtemperaturbestrahlung  
Fizikas un Tehinsko ZINATNU Serija  
Akademija Nauk Latvijas SSR Riga 4 (1980), 21 - 24
- /RAM 81/ Ramthun, H.  
Dissipation der Strahlungsenergie bei der Endlagerung von  
hochradioaktivem Abfall im Steinsalz  
PTB-Bericht, PTB-FMRB-88, (1981)
- /ROT 95/ Rothfuchs, T., de las Cuevas, C., Donker, H., Feddersen, H.-K., Garcia-  
Celma, A., Gies, H., Goreychi, M., Graefe, V., Heijdra, J., Hente, B.,  
Jockwer, N., LeMeur, R., Mönig, J., Müller, K., Prij, J., Regulla, D.,  
Smailos, E., Staupendahl, G., Till, E. und Zankl, M.  
The HAW-Project: Final Report  
GSF-Bericht 6/95, GSF, Neuherberg, (1995)
- /SCH 94/ Schneider, L., Herzog, C., Krause, H. Liebscher, B.  
Literaturrecherche zu Strahleneffekten im Steinsalz - Auswertung der  
russischen Literatur  
Stoller Ingenieurstechnik GmbH Dresden, SIG-01/94, FuE-Vorhaben des  
BMBF mit dem Förderkennzeichen 02 E 86035.
- /SEI 92/ Seinen, J., Groote, J.C., Weerkamp, J.R.W. und den Hartog, H.W.  
Radiation Damage in NaCl: General Model of Nucleation and Aggregation  
Processes in Doped NaCl  
Rad. Eff. Def. Solids **124** (1992), 325 - 339
- /SEI 94a/ Seinen, J., Groote, J.C., Weerkamp, J.R.W. und den Hartog, H.W.  
Radiation Damage in NaCl. II. The early stage of *F*-center aggregation  
Physical Review **B 50** (1994), 9787 - 9792
- /SEI 94b/ Seinen, J., Weerkamp, J.R.W., Groote, J.C. und den Hartog, H.W.  
Radiation Damage in NaCl. III. Melting phenomena of sodium colloid  
Physical Review **B 50** (1994), 9793 - 9797
- /SOP 93/ Soppe, W.J.  
Computer simulation of radiation damage in NaCl using a kinetic rate  
reaction model  
J. Phys.: Condens. Matter **5** (1993), 3519 - 3540

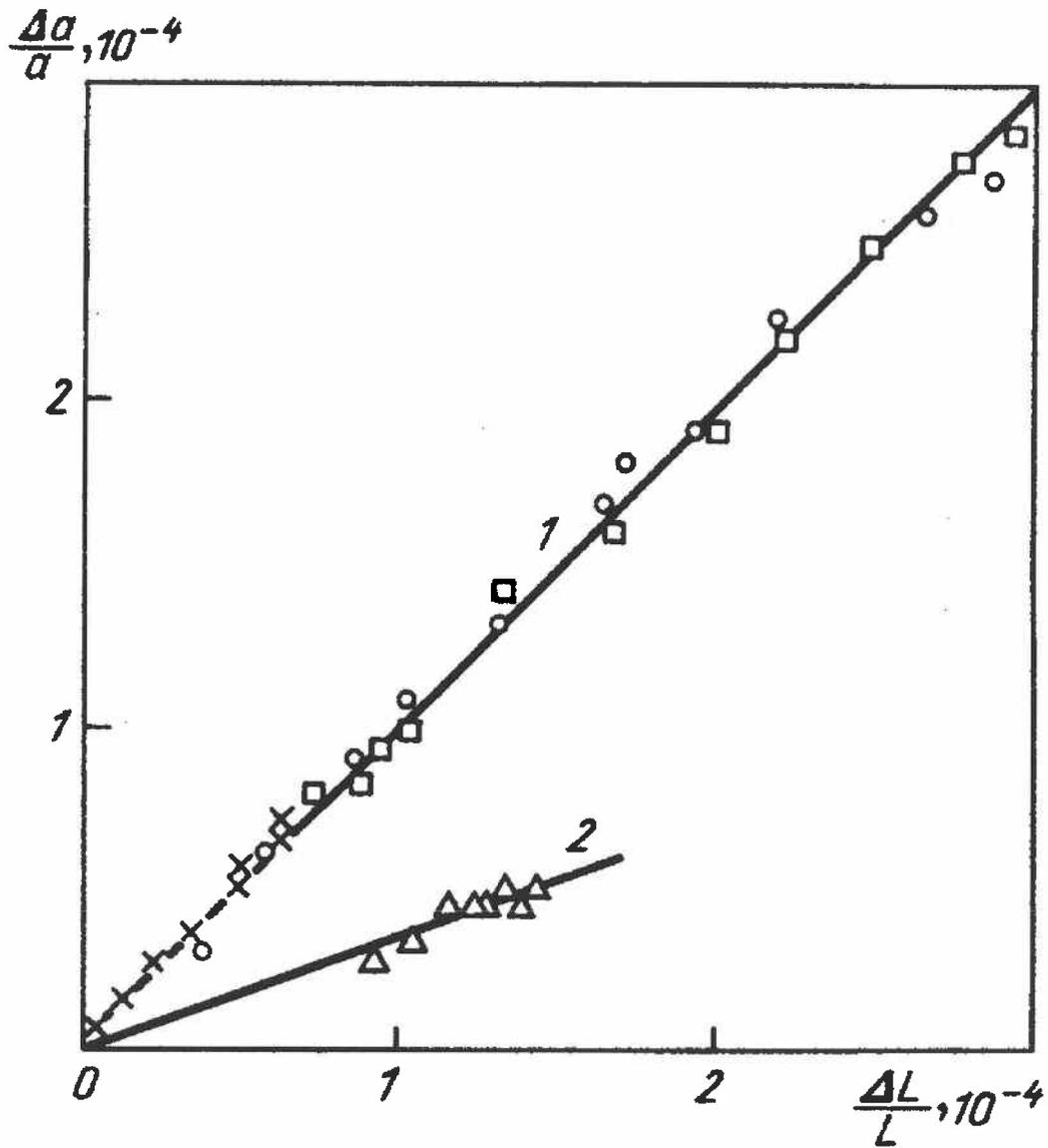
- /SOP 94a/ Soppe, W. und Kotomin, E.  
Aggregation of Frenkel defects under irradiation: a mesoscopic approach  
Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. **B 91** (1994), 87 - 91
- /SOP 94b/ Soppe, W.J. und Prij, J.  
Kinetic model calculations of colloid growth in NaCl  
Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. **B 91** (1994), 92 - 96
- /SOP 94c/ Soppe, W.J., Donker, H., García Celma, A. und Prij, J.  
Radiation-induced stored energy in rock salt  
J. Nucl. Mater. **217** (1994), 1 - 31
- /SOP 94d/ Soppe, W.J. und Prij, J.  
Radiation Damage in a Rock Salt Nuclear Waste Repository  
Nucl. Technol. **107** (1994), 243
- /SOP 95/ Soppe, W.J. und Prij, J.  
Simulation of the Build-Up of Radiation Damage in NaCl: Initial Stages of Colloid Formation  
Rad. Eff. Def. Solids **136** (1995), 201 - 208
- /SPI 80/ Spitzyn, V.I., Barsova, L.I., Kabakchi, S.A., Zyazyulka, I.I. und Lebedeva, I.E.  
Investigation of the Radiation Stability of Natural Rock Salt  
Proc. IAEA-OECD Symp. Otaniemi, Finland July 1979,  
(1980), 325 - 333
- /TIL 94/ Till, E., Zankl, M. und Regulla, D.  
Calculation of the Radiation Transport in Rock Salt Using Monte Carlo Methods  
GSF-Bericht 10/94, GSF, Neuherberg, (1994)
- /WEE 94/ Weerkamp, J.R.W, Groote, J.C., Seinen, J. und den Hartog, H.W.  
Radiation Damage in NaCl. I. Optical-absorption experiments on heavily irradiated samples  
Physical Review **B 50** (1994) 9781 - 9786
- /WOL 93/ Wollenberger, H.J.  
Point Defects in Crystals, Kap. 6 in "Materials Science and Technology: A Comprehensive Treatment", Vol. 1, Eds.: Cahn, R.W., Haasen, P. und Kramer, E.J.  
VCH-Verlag, Weinheim (1993)



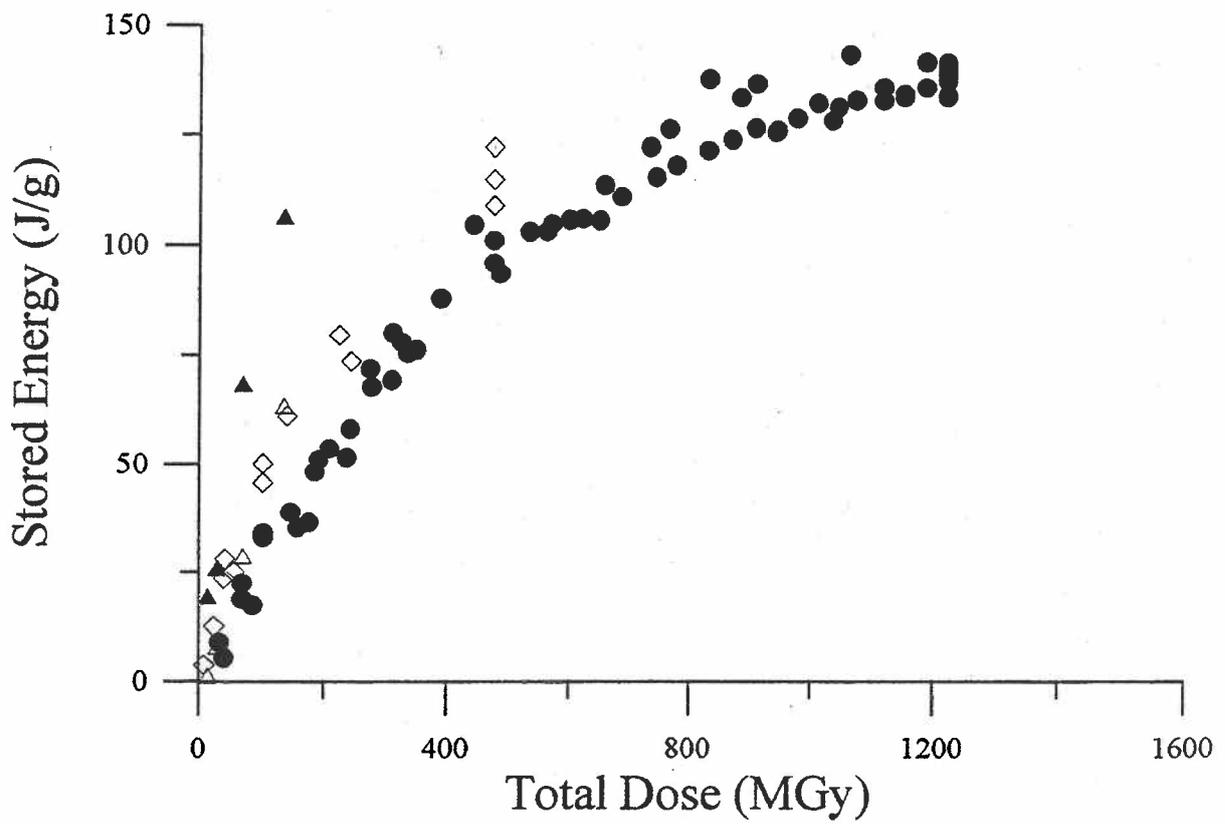
**Bild A-1** Abhängigkeit der Absorptionsbanden der Defektzentren F, F<sub>2</sub> und F<sub>3</sub> von der Gitterkonstanten der Alkalihalogenidverbindungen /ELA 91/



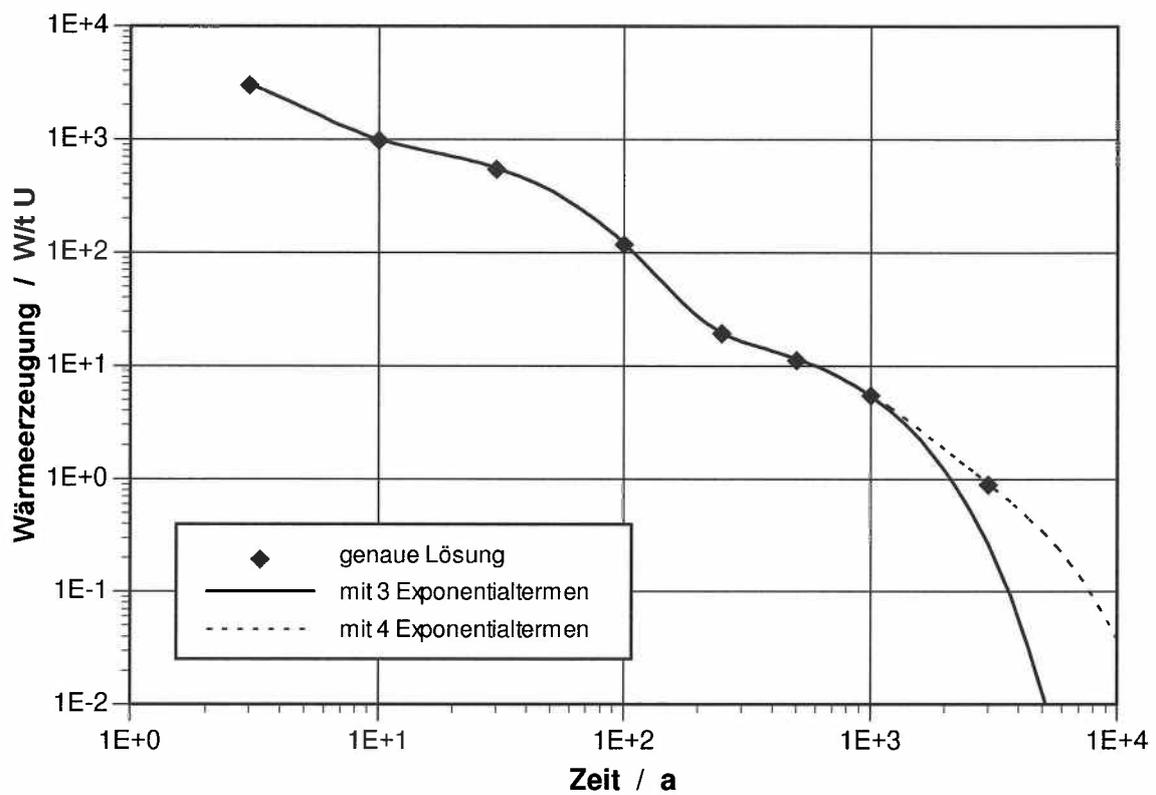
**Bild A-2** Prinzipielle Lage der optischen Absorptionsbanden der wichtigsten Defektzentren (aus /WOL 93/)



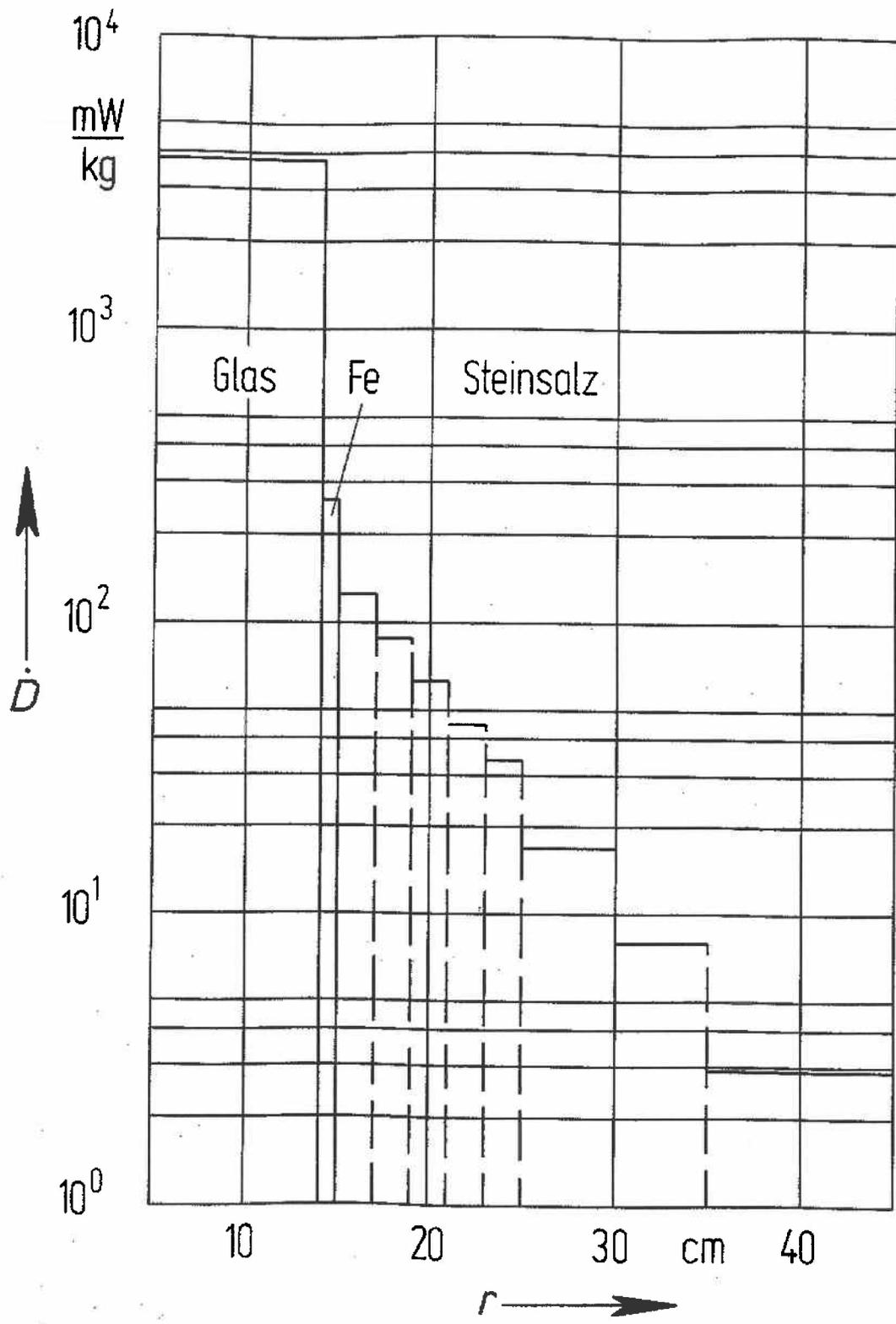
**Bild A-3** Beziehung zwischen den relativen Änderungen der Gitterkonstanten  $a$  und der Länge  $L$  eines KCl-Kristalls, der röntgenbestrahlt wurde (1) oder durch Erhitzung im Kaliumdampf additiv gefärbt wurde (2) (aus /ELA 91/, Daten von /BAL 68/)



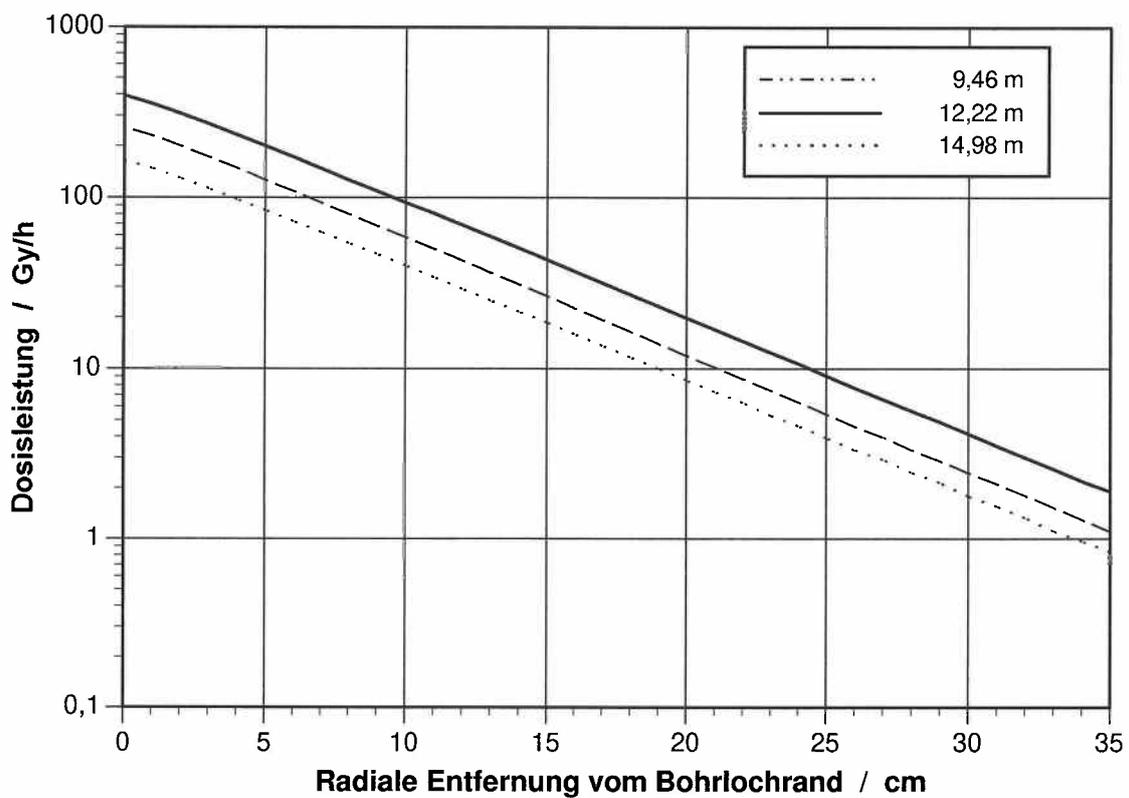
**Bild A-4** Gespeicherte Energie als Funktion der Dosis bei  $\gamma$ -Bestrahlung von NaCl-Proben (● Speisesalz, ◇ Daten von Jenks und Bopp für 95 °C und  $1 \cdot 10^5$  Gy/h,  $\Delta$ , ▲ Daten von den Hartog et al., aus /DON 96/)



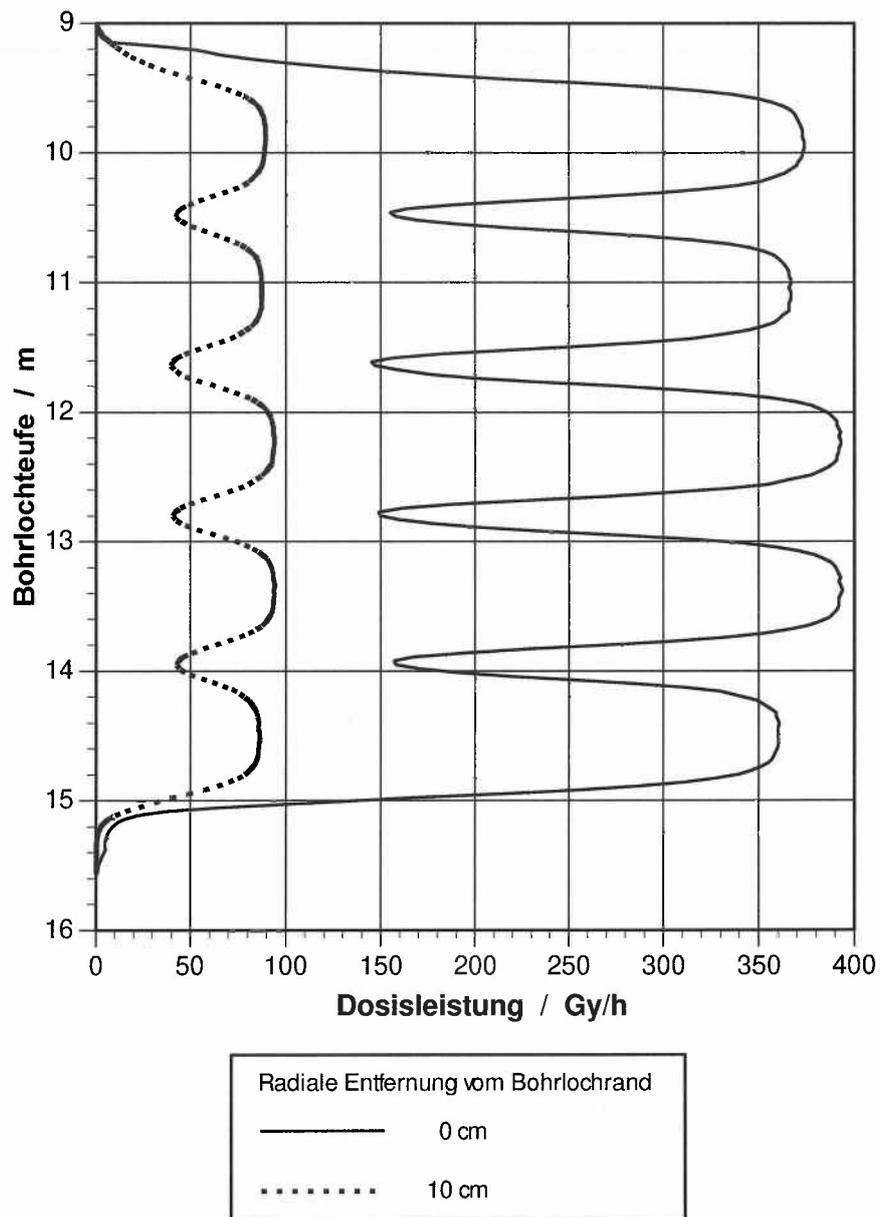
**Bild A-5** Vergleich der mit 3 und 4 Exponentialtermen approximierten Wärmeerzeugung von Abfallkokillen mit der genauen Lösung



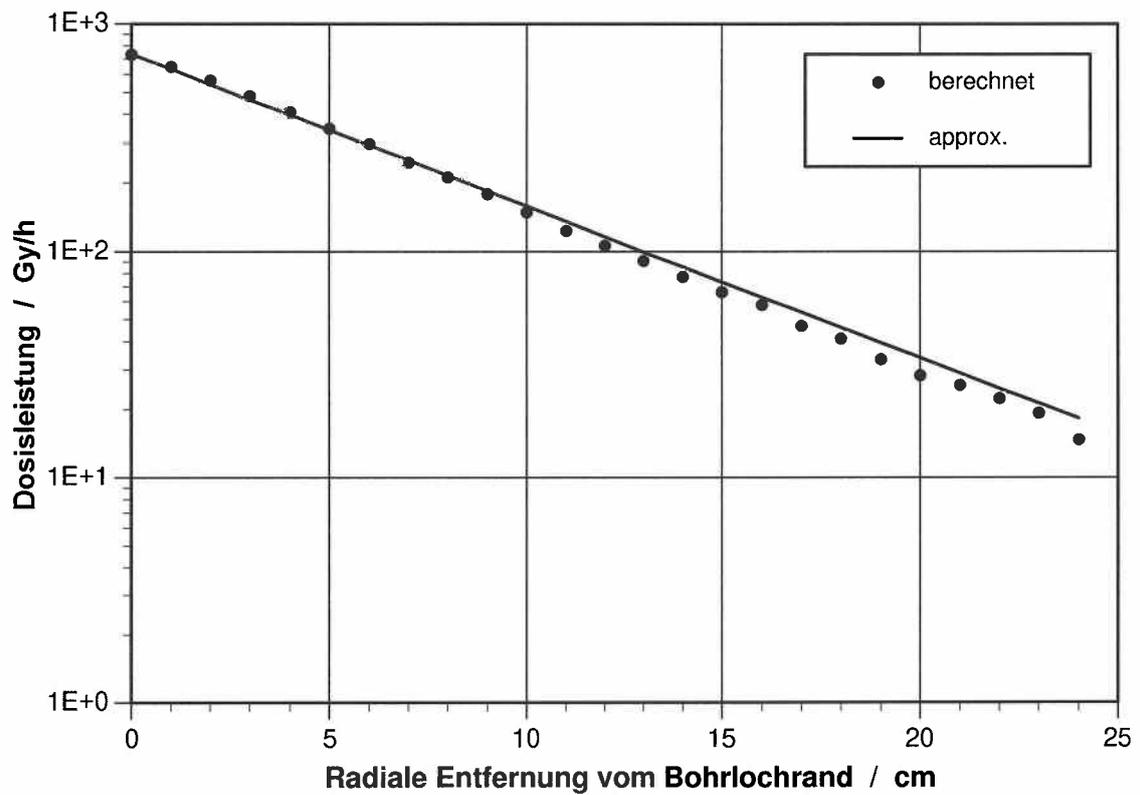
**Bild A-6** Mit Monte-Carlo-Methoden berechnete horizontale  $\gamma$ -Dosisleistungsabnahme im Steinsalz (aus /RAM 81/)



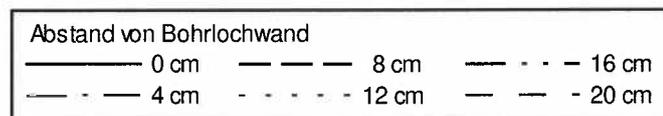
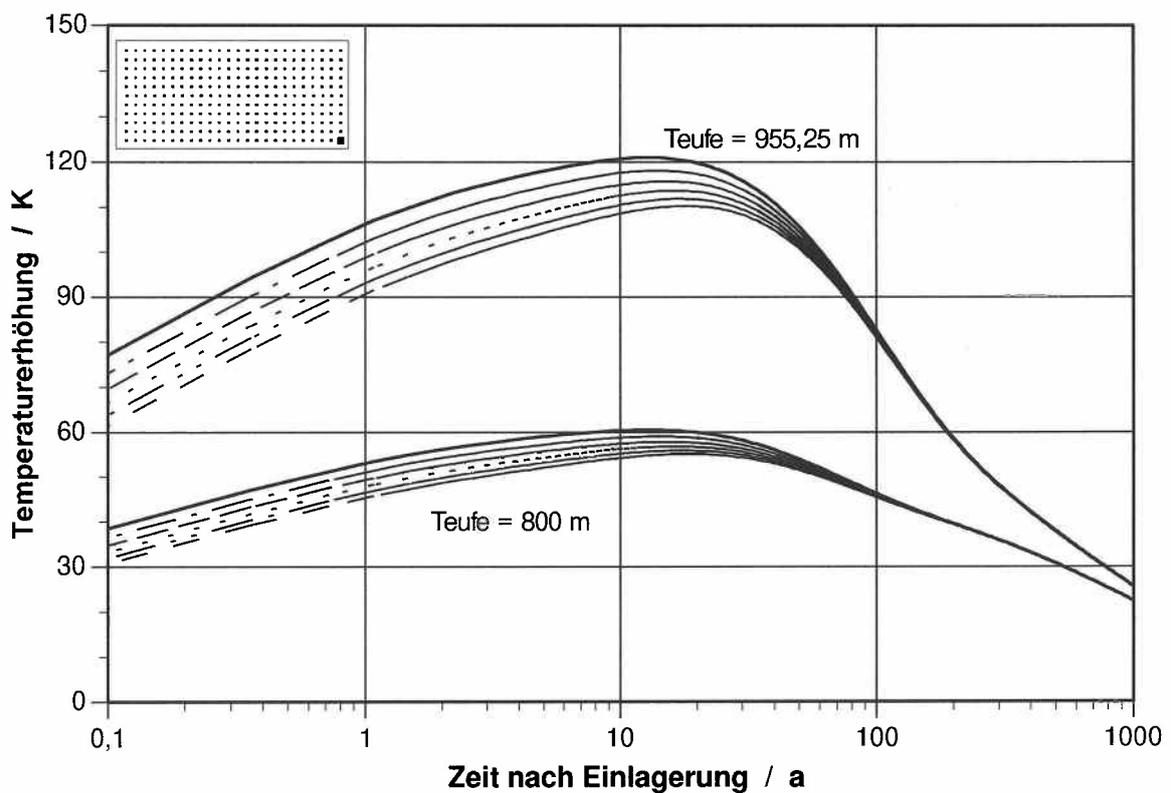
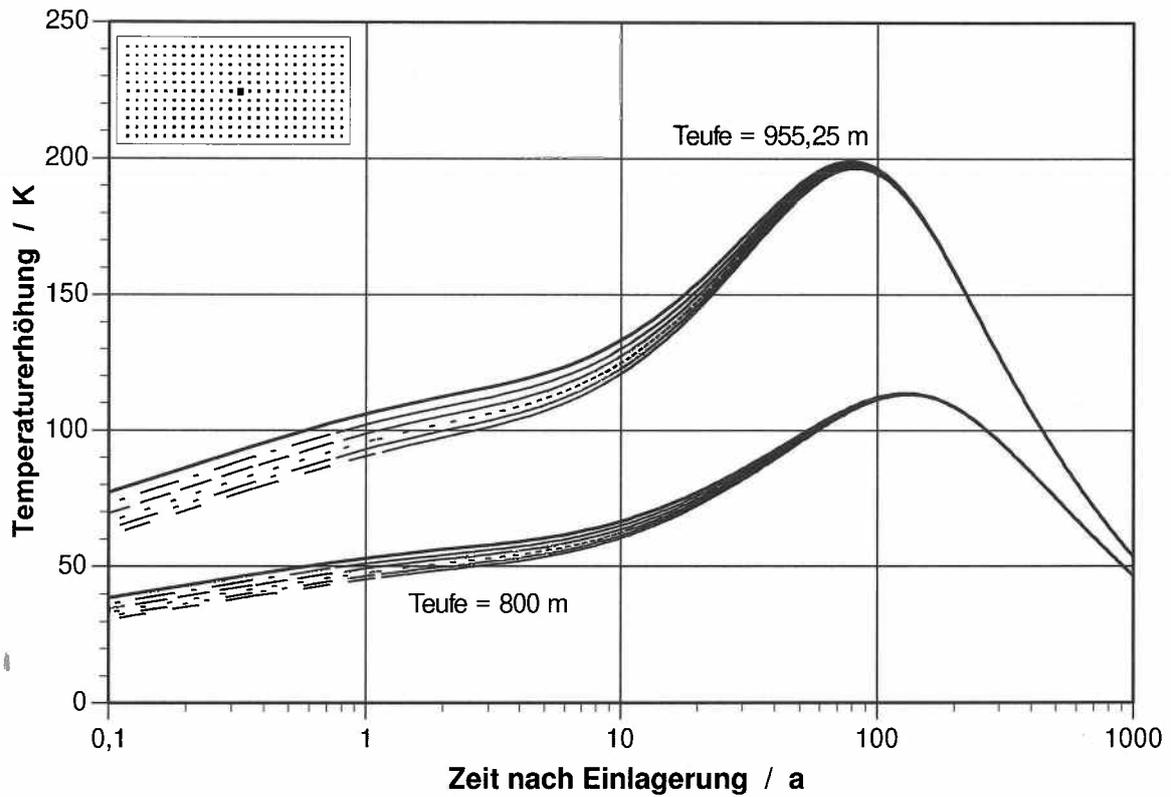
**Bild A-7** Mit Monte-Carlo-Methoden berechnetes radiales  $\gamma$ -Dosisleistungsprofil im Steinsalz des Bohrloches B3 des HAW-Versuchsfeld in der obersten, mittleren und untersten Ebene des Kokillenstapels (Daten aus /TIL 94/)



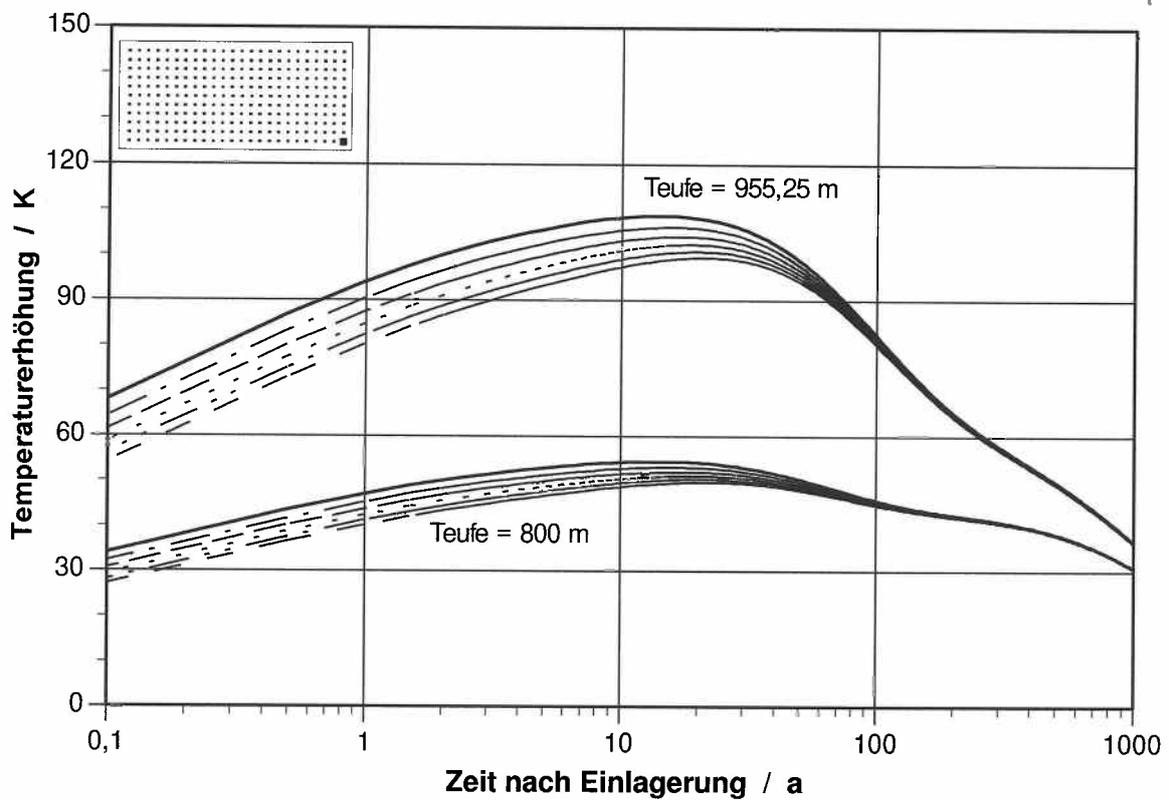
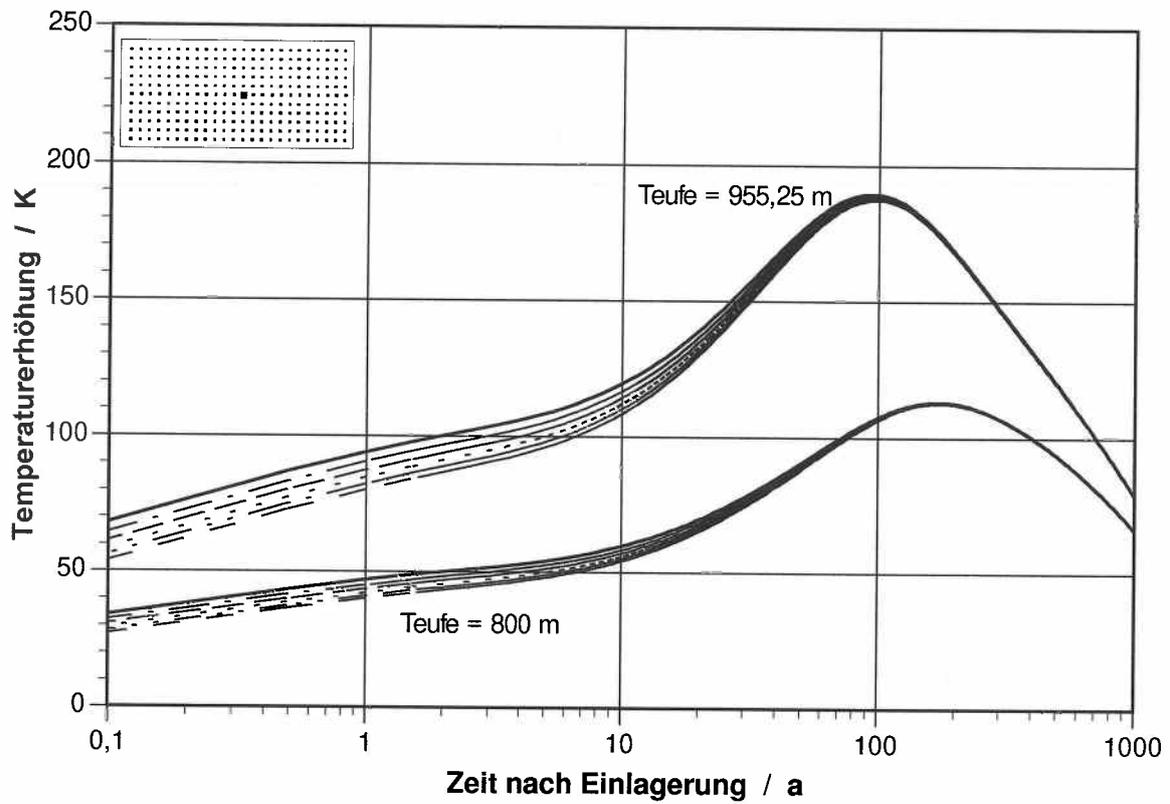
**Bild A-8** Mit Monte-Carlo-Methoden berechnetes vertikales  $\gamma$ -Dosisleistungsprofil entlang des Bohrloches B3 im HAW-Versuchsfeld bei zwei unterschiedlichen radialen Abständen zur Bohrlochwand (Daten aus /TIL 94/)



**Bild A-9** Berechnete und über Näherungsfunktion approximierte radiale  $\gamma$ -Dosisleistungsvverteilung im Salz für ein niederländisches Endlagerszenario (Daten aus /SOP 94d/)

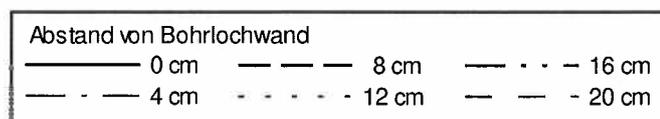
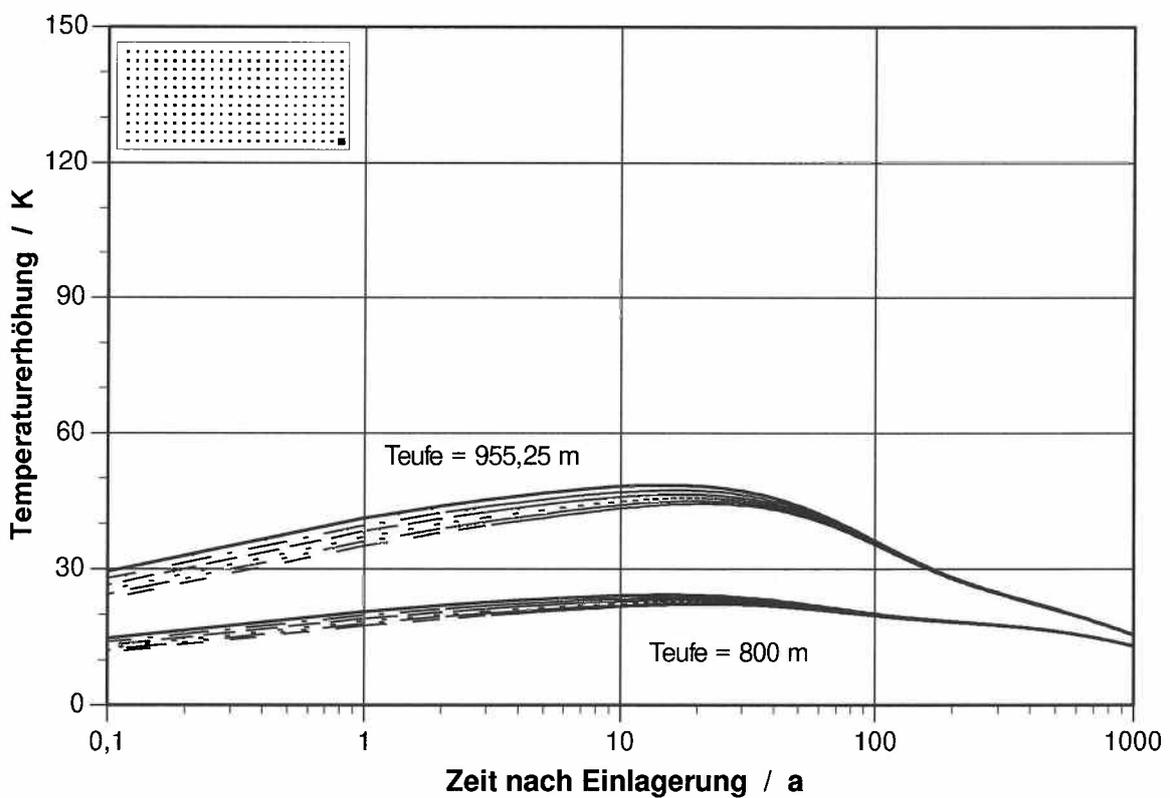
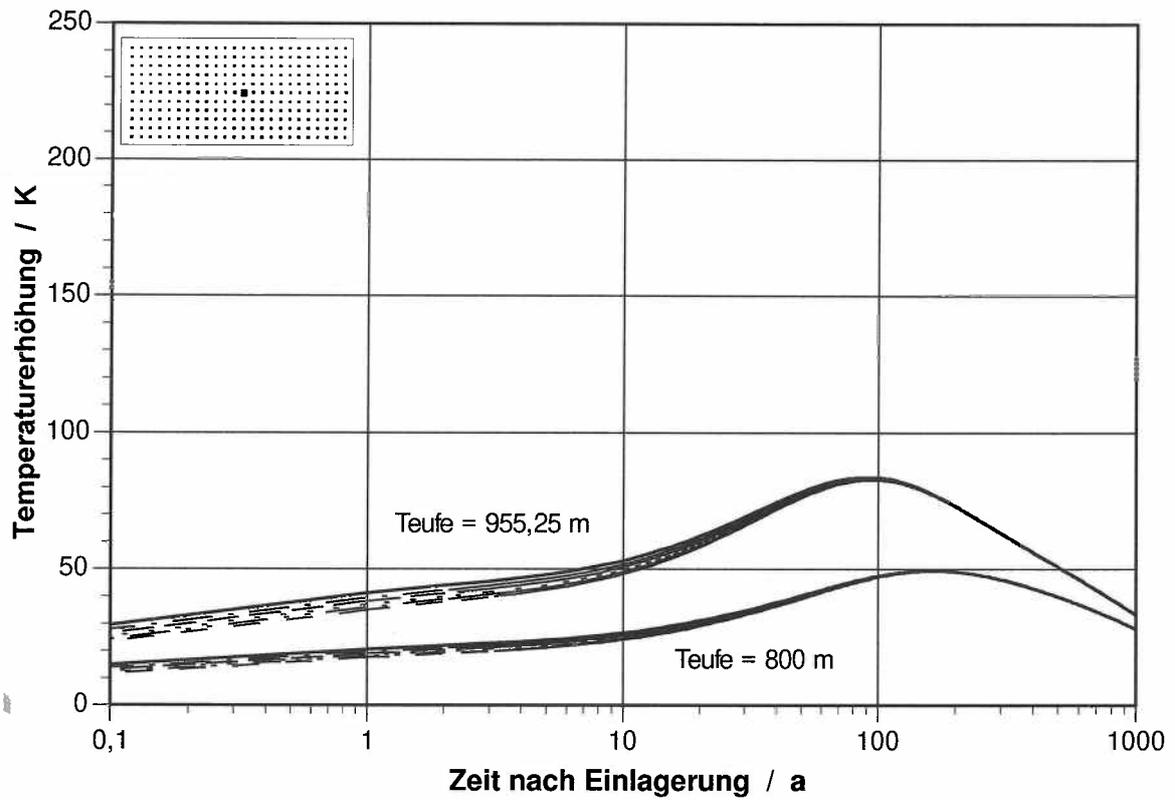


**Bild A-10** Temperaturanstieg bei Szenario 1 (Abbrand 33 GWd/t U, Abklingzeit 3 a, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung 10 a) für 2 Bohrlochpositionen

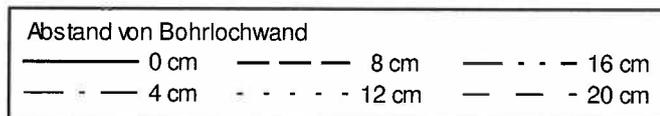
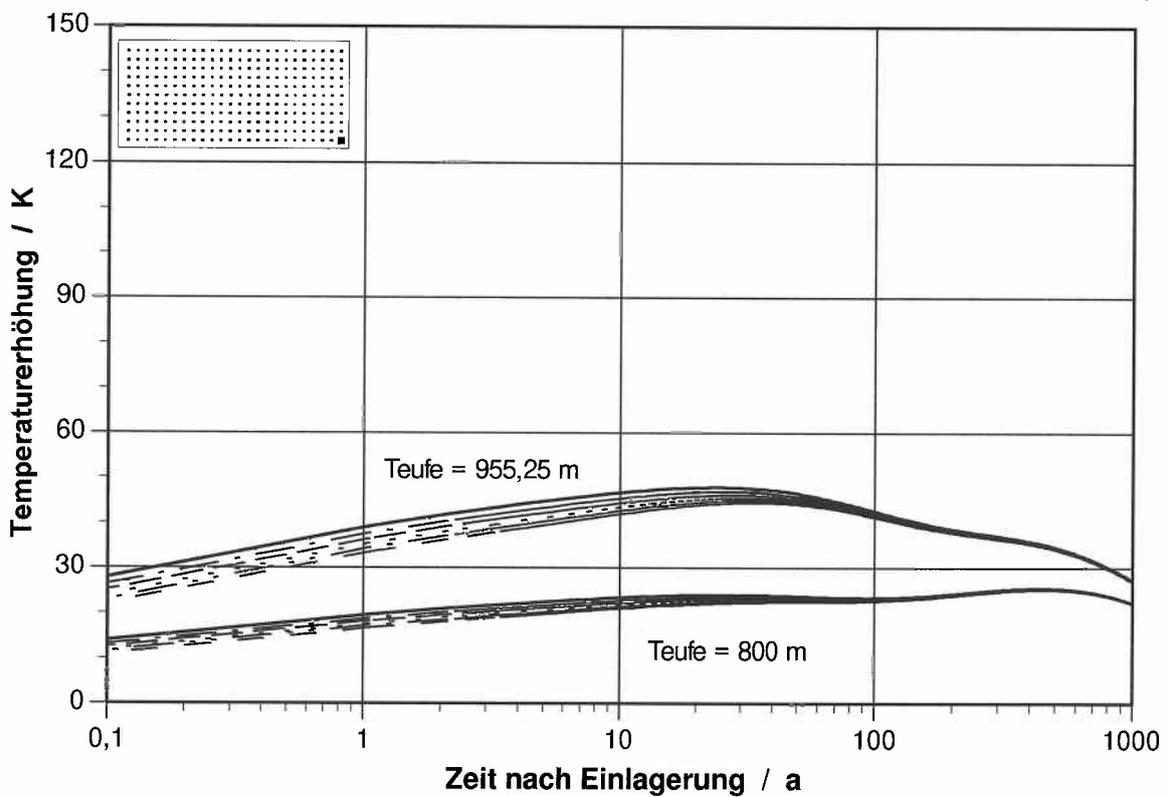
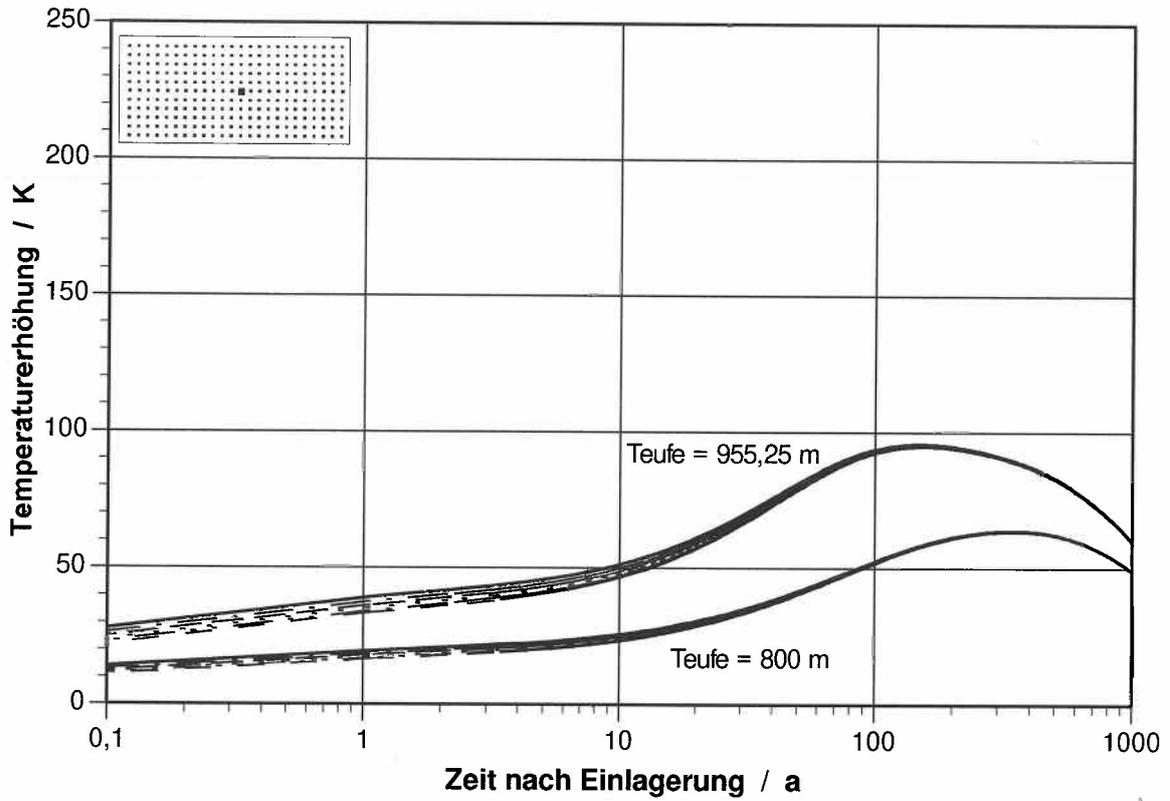


Abstand von Bohrlochwand		
—	— — —	— · · —
— · —	· · · · ·	— — —
0 cm	8 cm	16 cm
4 cm	12 cm	20 cm

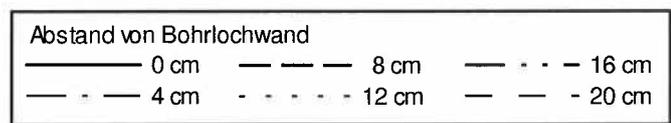
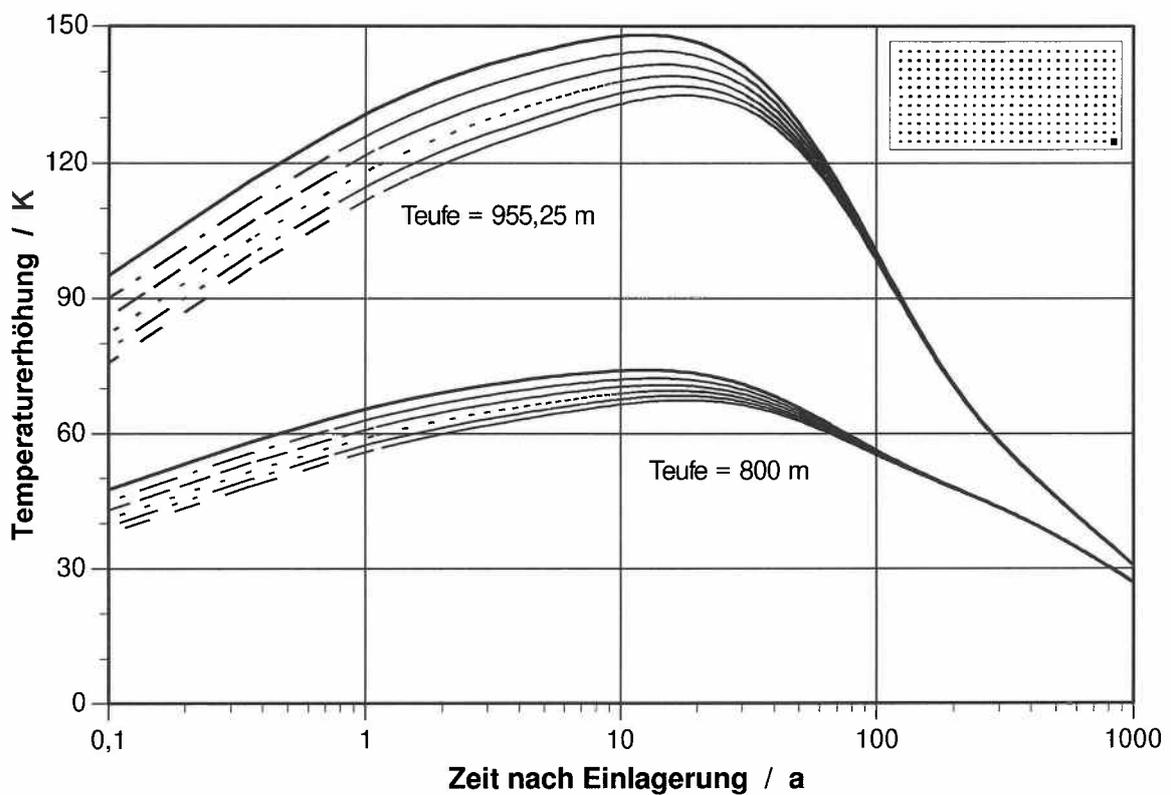
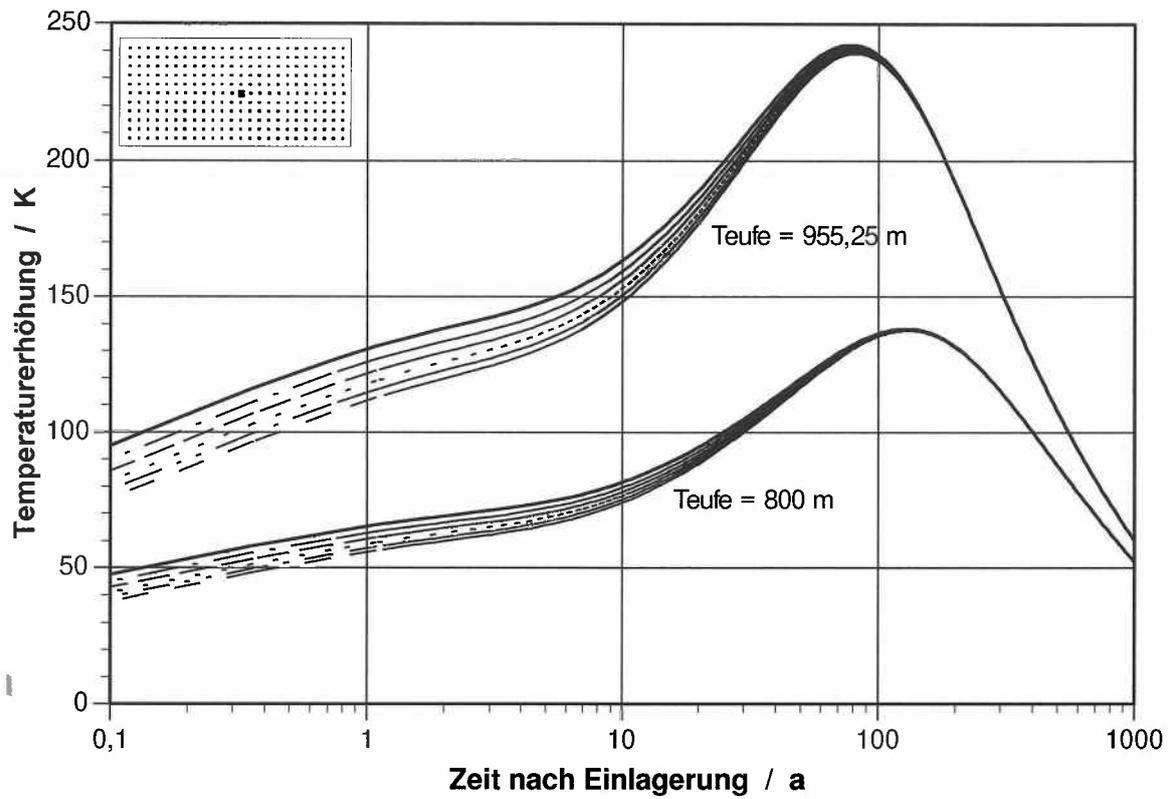
**Bild A-11** Temperaturanstieg bei Szenario 2 (Abbrand 33 GWd/t U, Abklingzeit 10 a, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung 10 a) für 2 Bohrlochpositionen



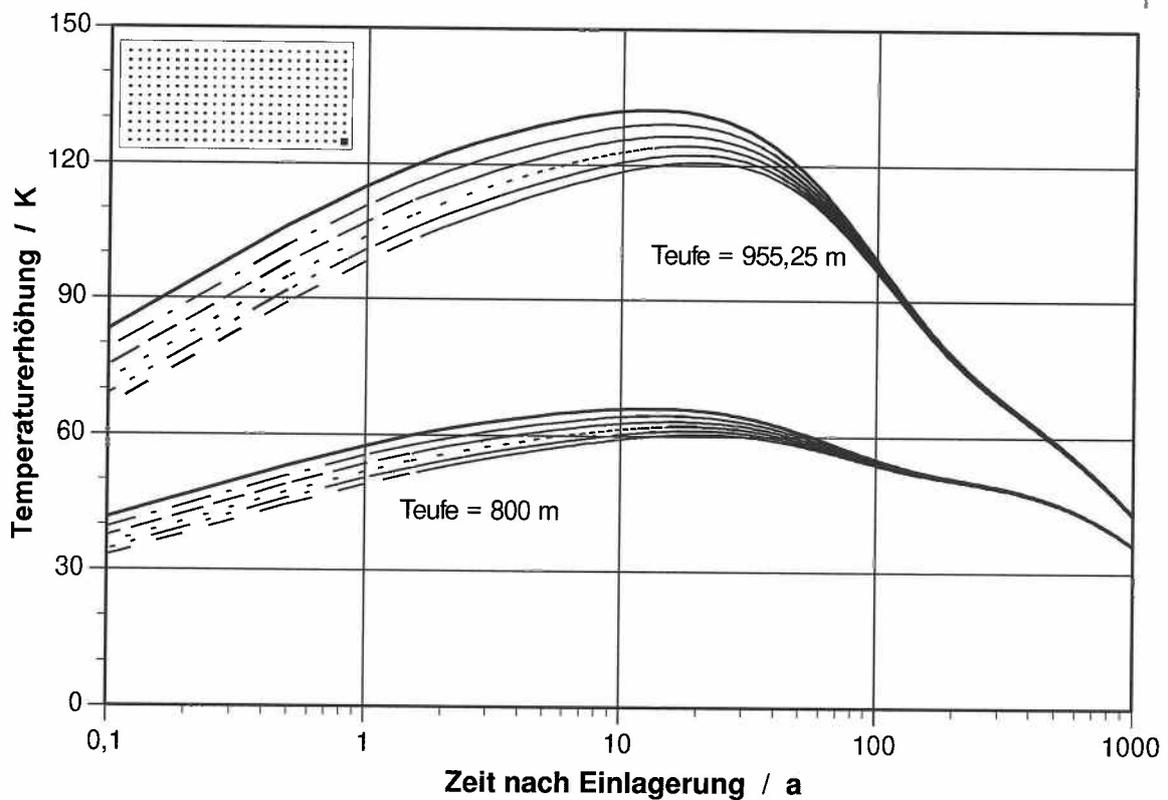
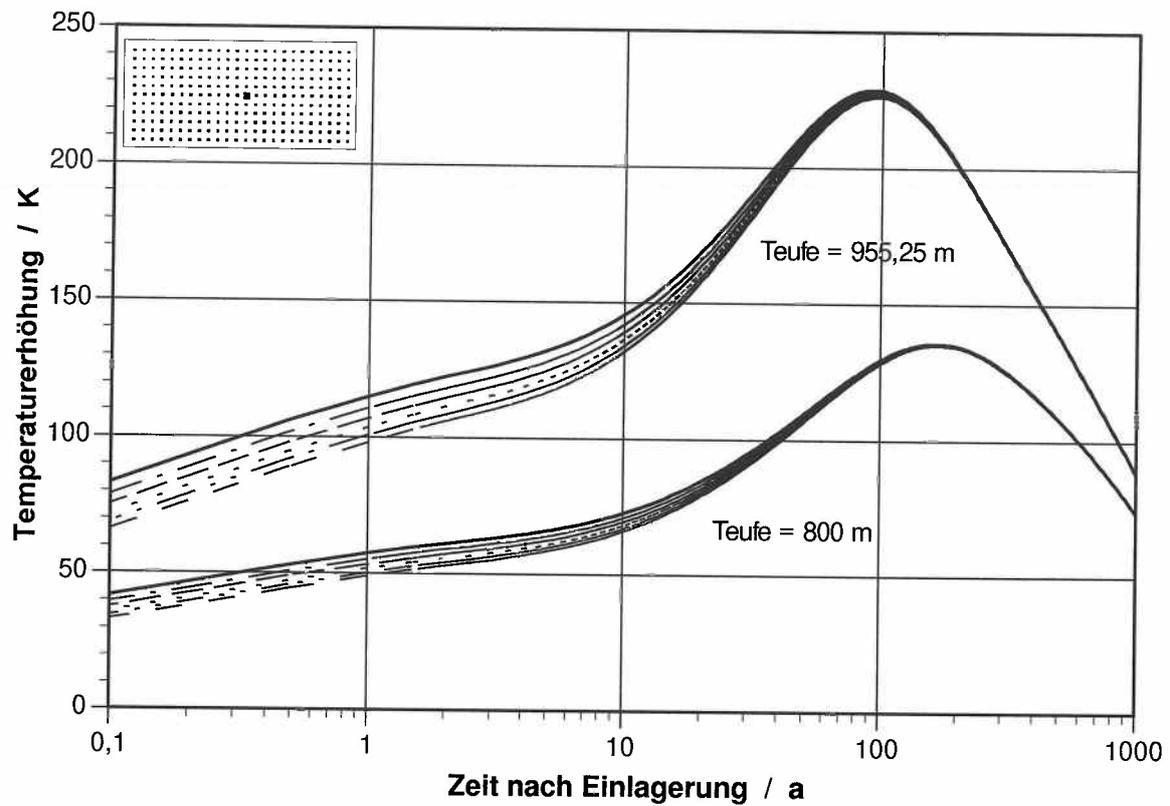
**Bild A-12** Temperaturanstieg bei Szenario 3 (Abbrand 33 GWd/t U, Abklingzeit 3 a, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung 50 a) für 2 Bohrlochpositionen



**Bild A-13** Temperaturanstieg bei Szenario 4 (Abbrand 33 GWd/t U, Abklingzeit 10 a, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung 50 a) für 2 Bohrlochpositionen



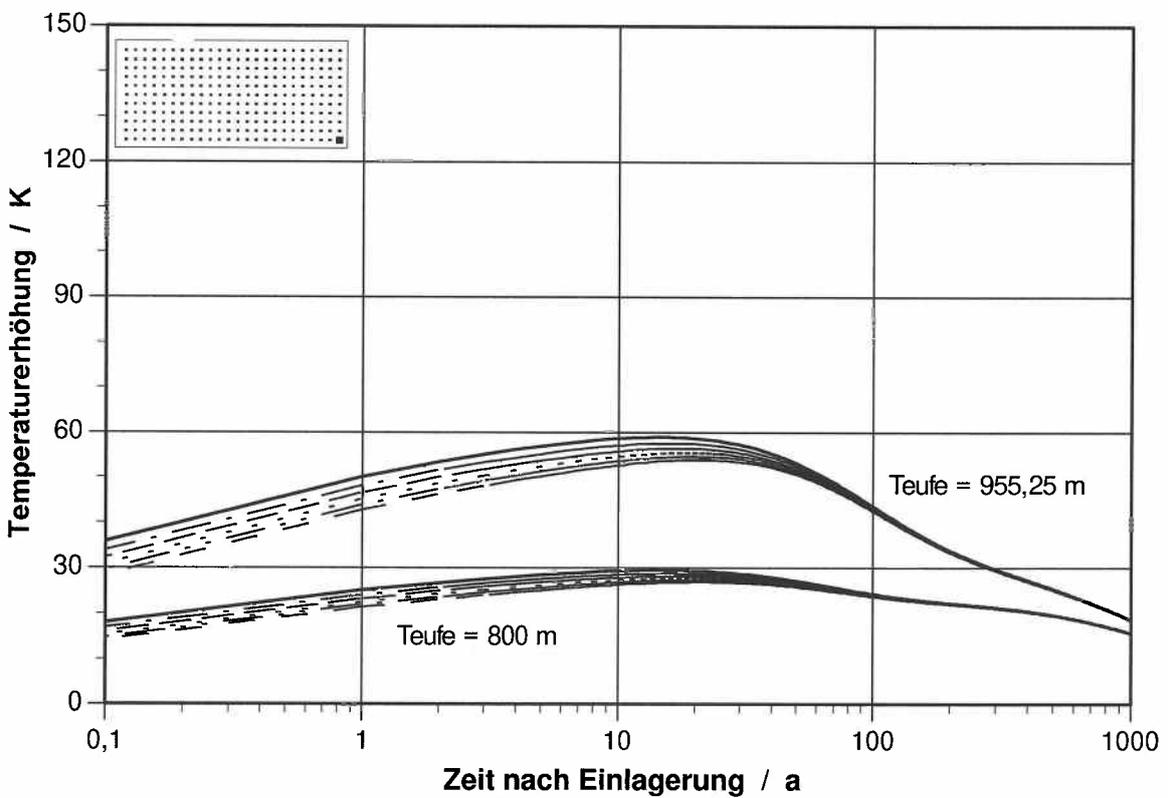
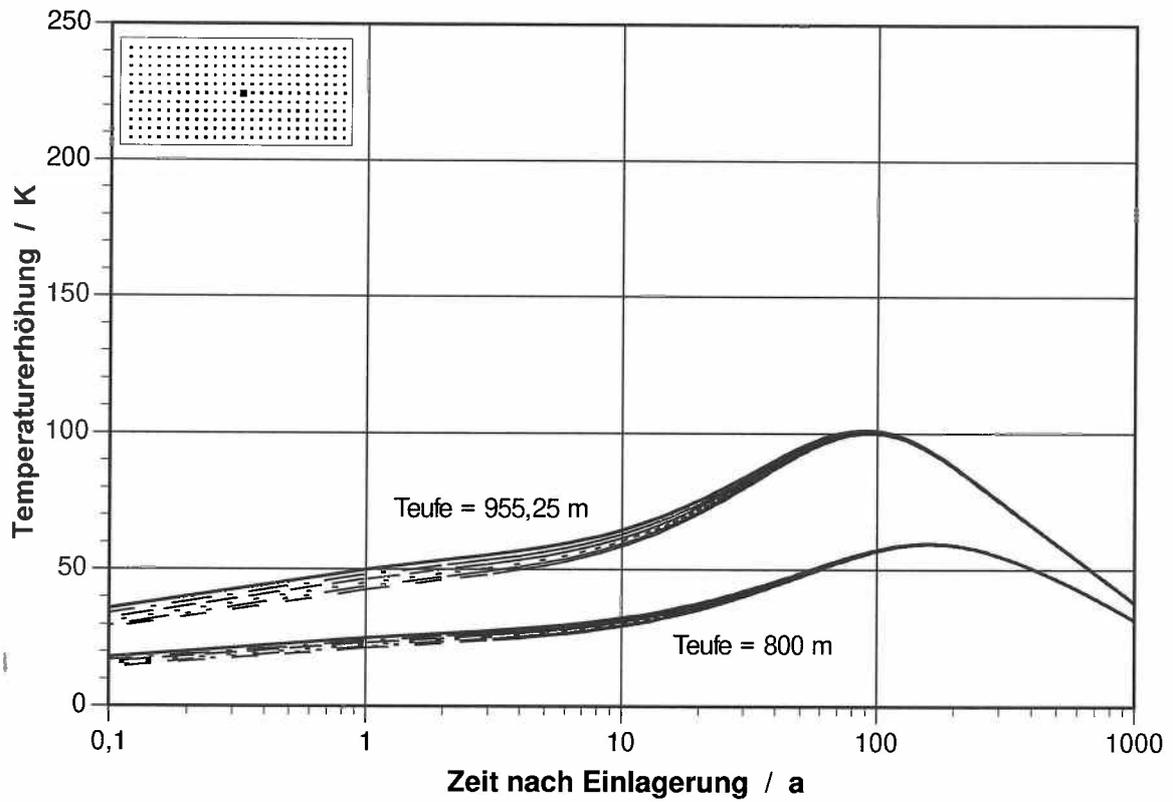
**Bild A-14** Temperaturanstieg bei Szenario 5 (Abbrand 40 GWd/t U, Abklingzeit 3 a, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung 10 a) für 2 Bohrlochpositionen



Abstand von Bohrlöchwand		
—	— — —	— · · ·
— · · ·	· · · · ·	— — —

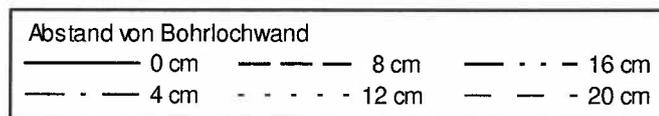
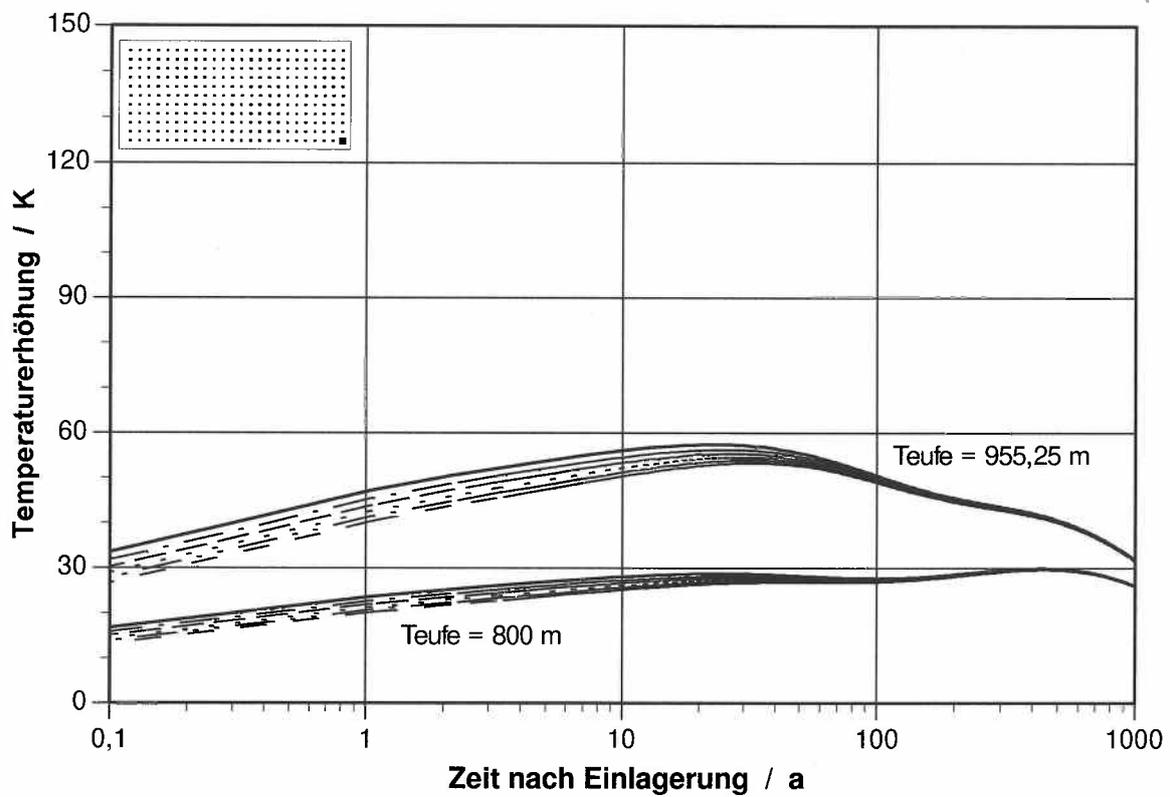
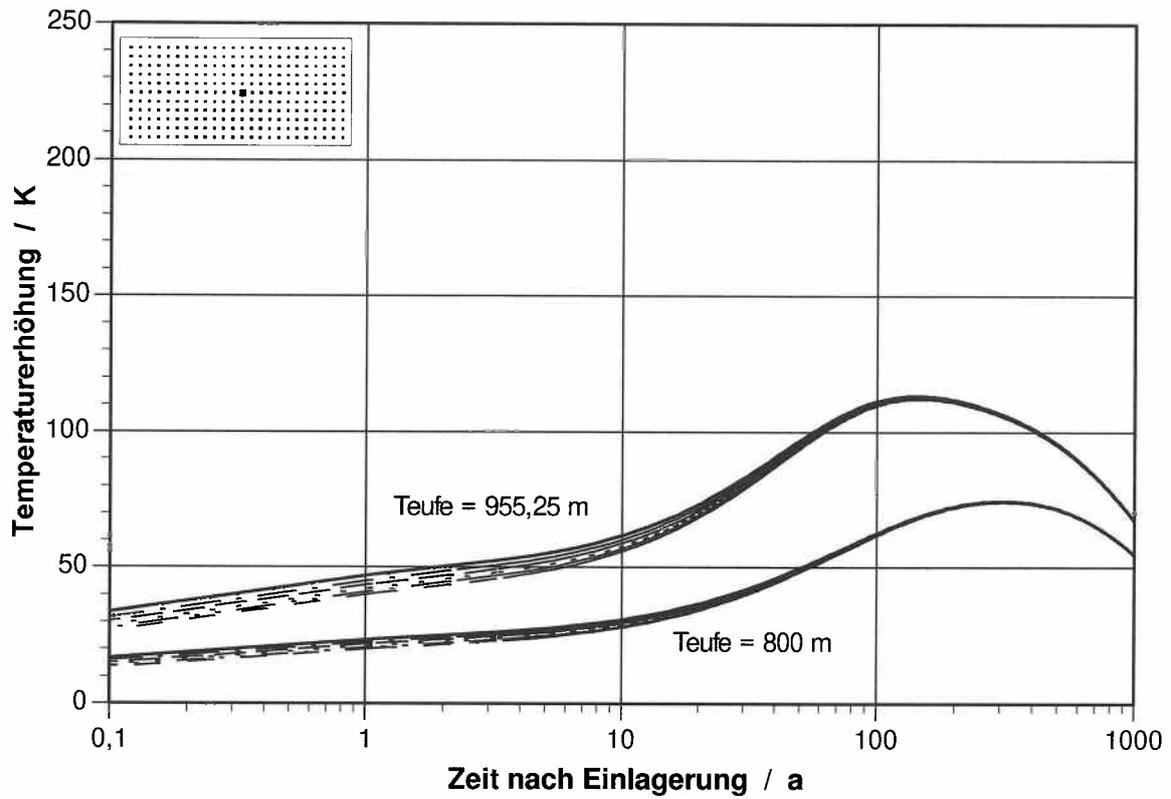
0 cm    8 cm    16 cm  
4 cm    12 cm    20 cm

**Bild A-15** Temperaturanstieg bei Szenario 6 (Abbrand 40 GWd/t U, Abklingzeit 10 a, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung 10 a) für 2 Bohrlochpositionen

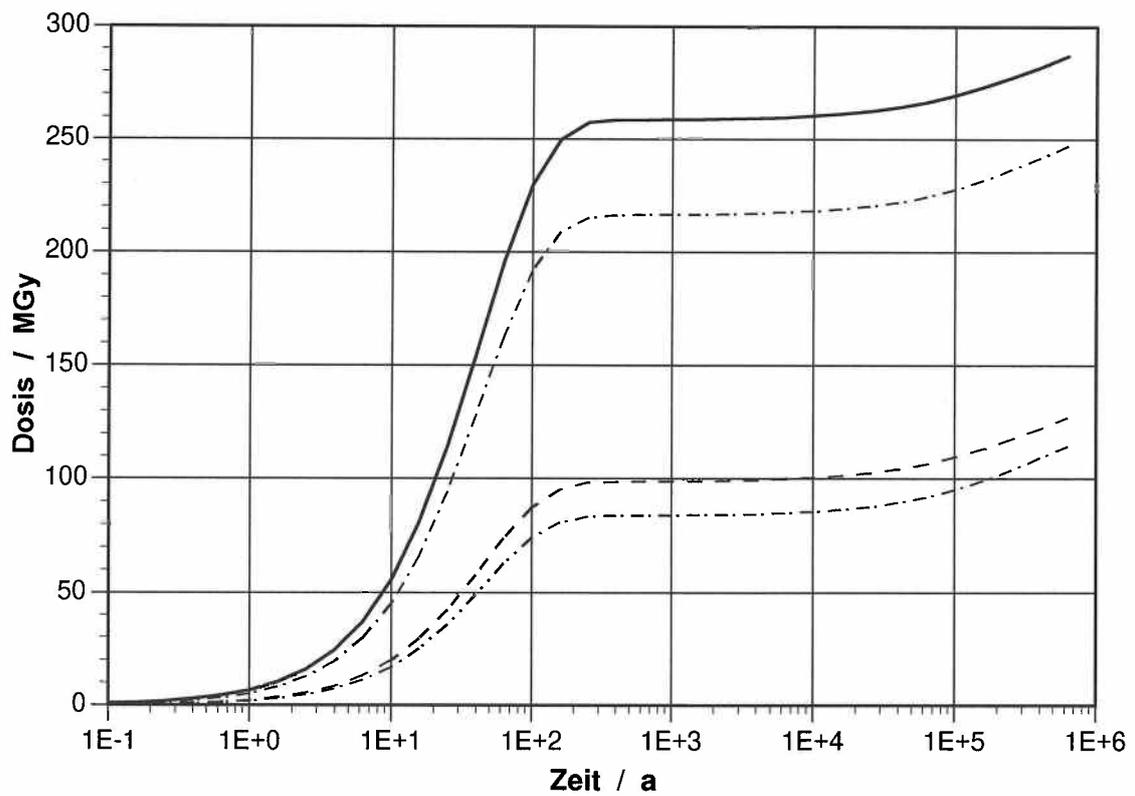
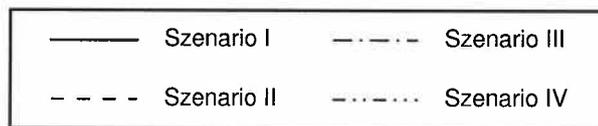
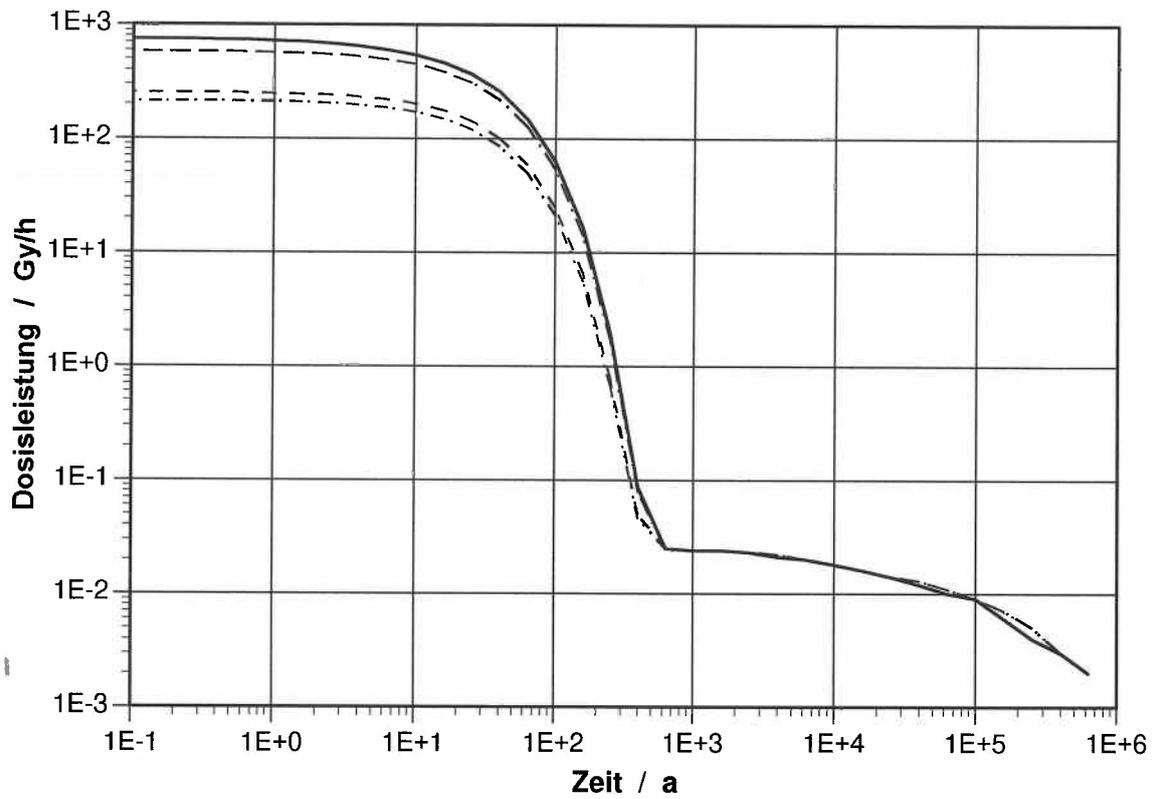


Abstand von Bohrlochwand		
—	— — —	— · · ·
— · · ·	· · · · ·	— — —
0 cm	8 cm	16 cm
4 cm	12 cm	20 cm

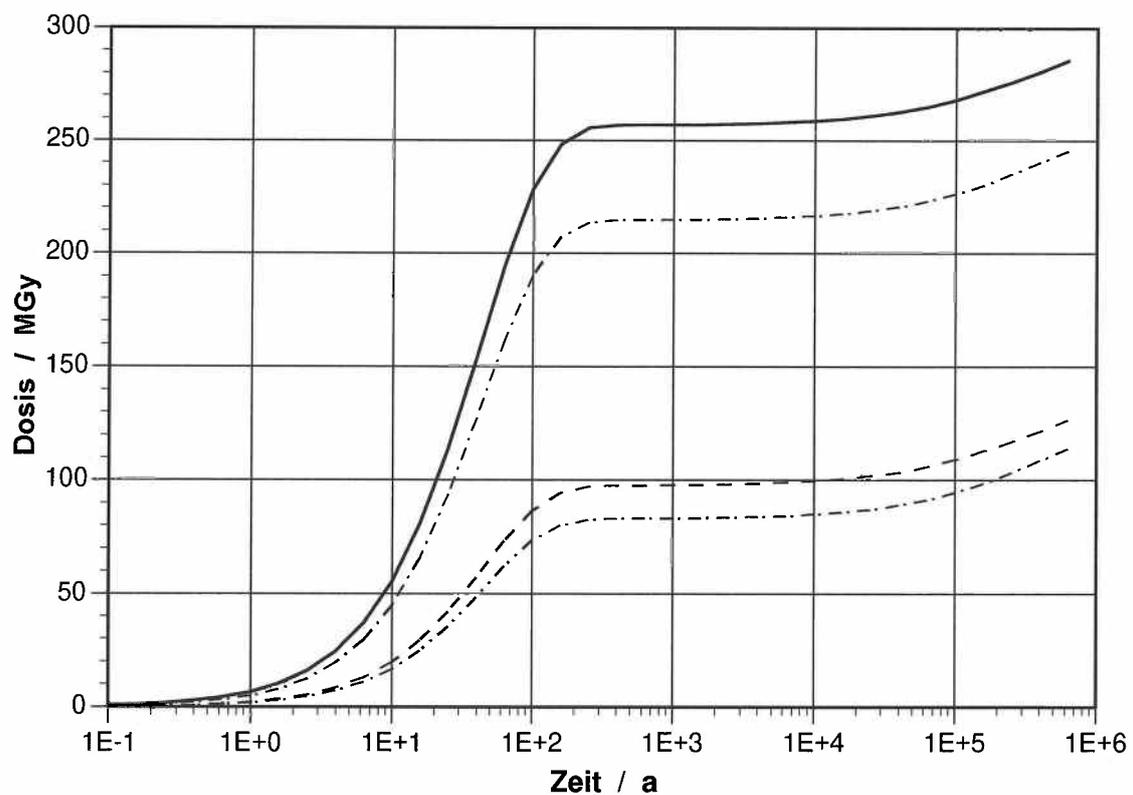
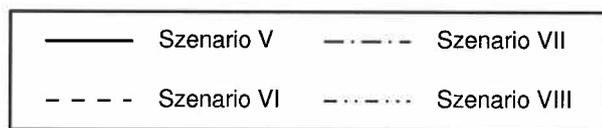
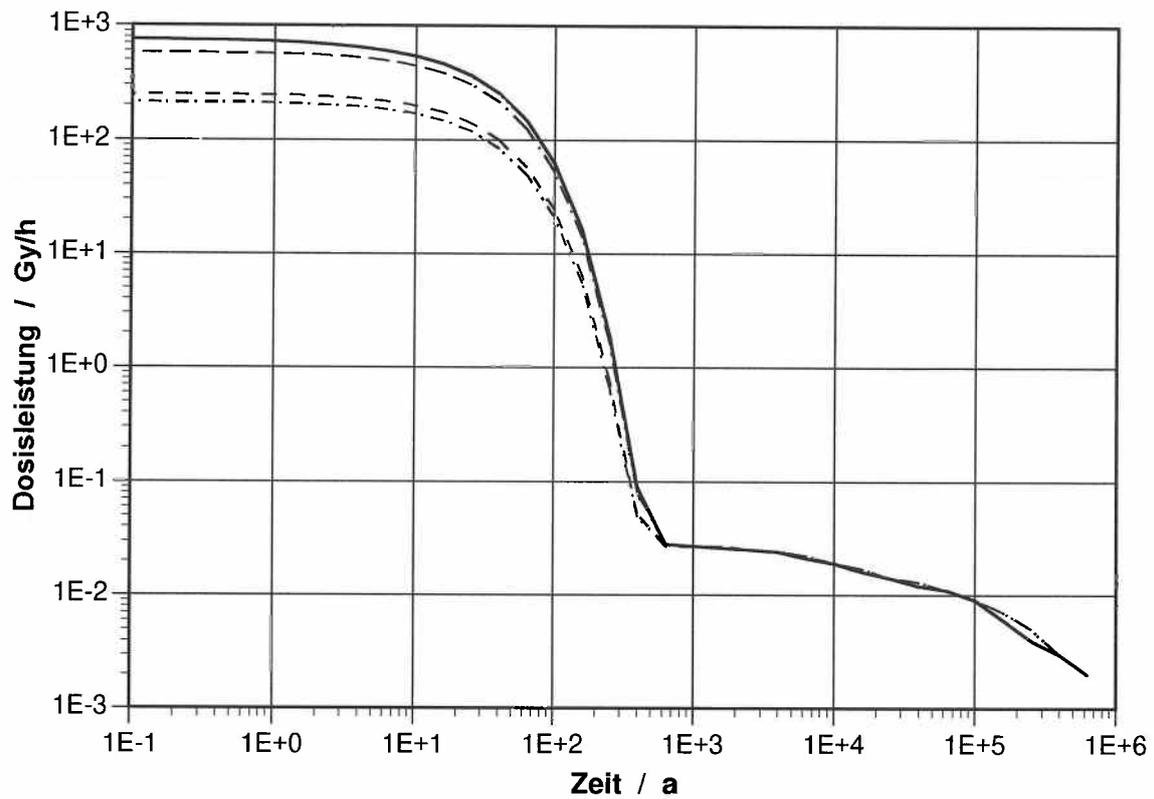
**Bild A-16** Temperaturanstieg bei Szenario 7 (Abbrand 40 GWd/t U, Abklingzeit 3 a, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung 50 a) für 2 Bohrlochpositionen



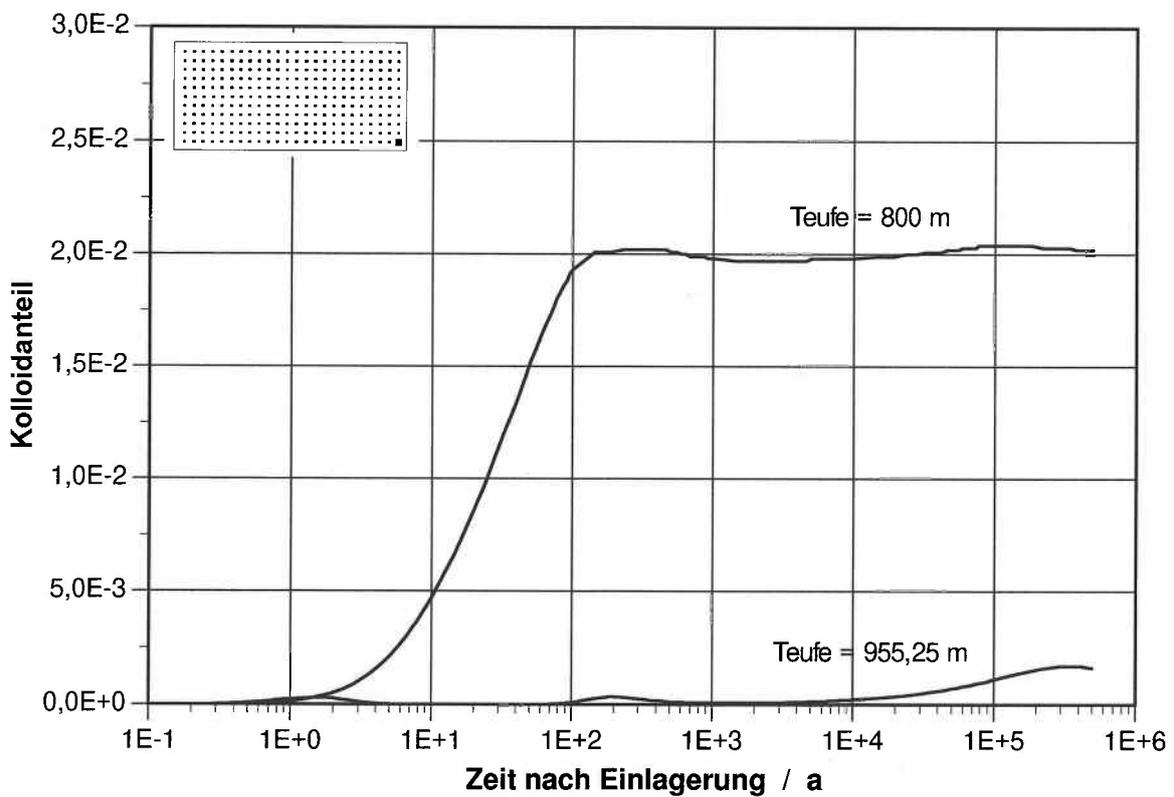
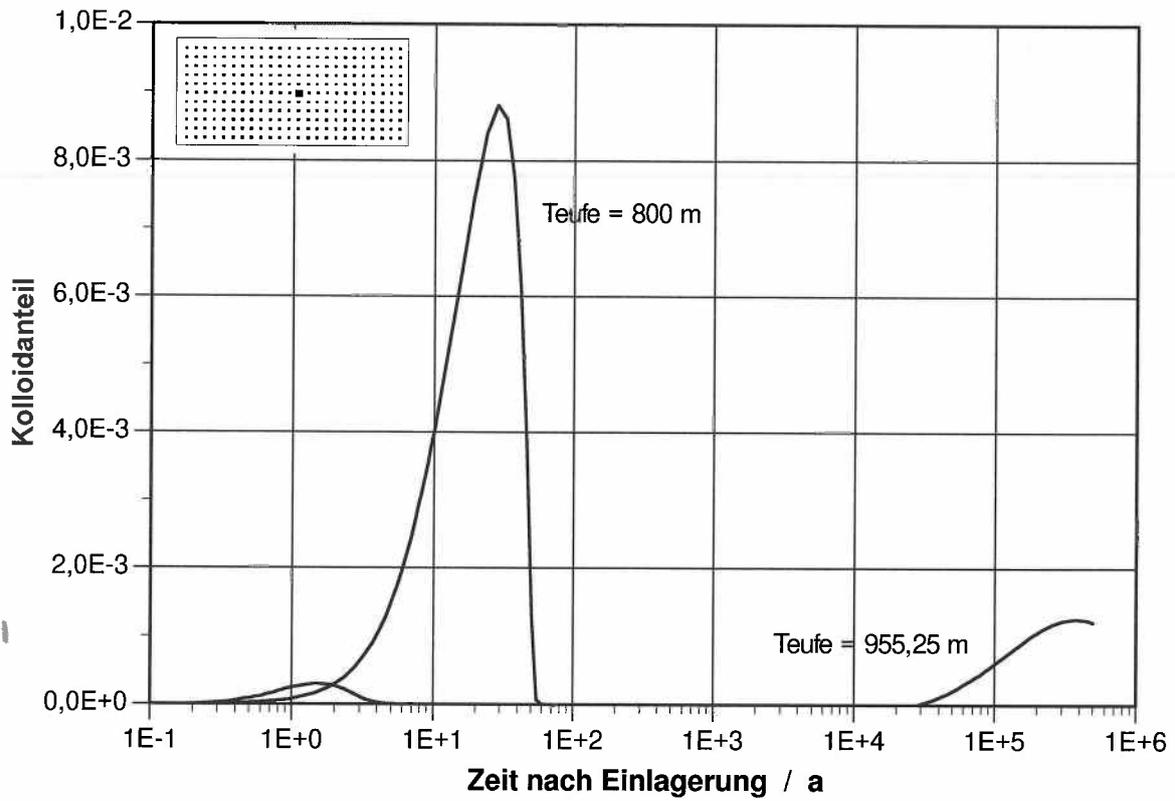
**Bild A-17** Temperaturanstieg bei Szenario 8 (Abbrand 40 GWd/t U, Abklingzeit 10 a, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung 50 a) für 2 Bohrlochpositionen



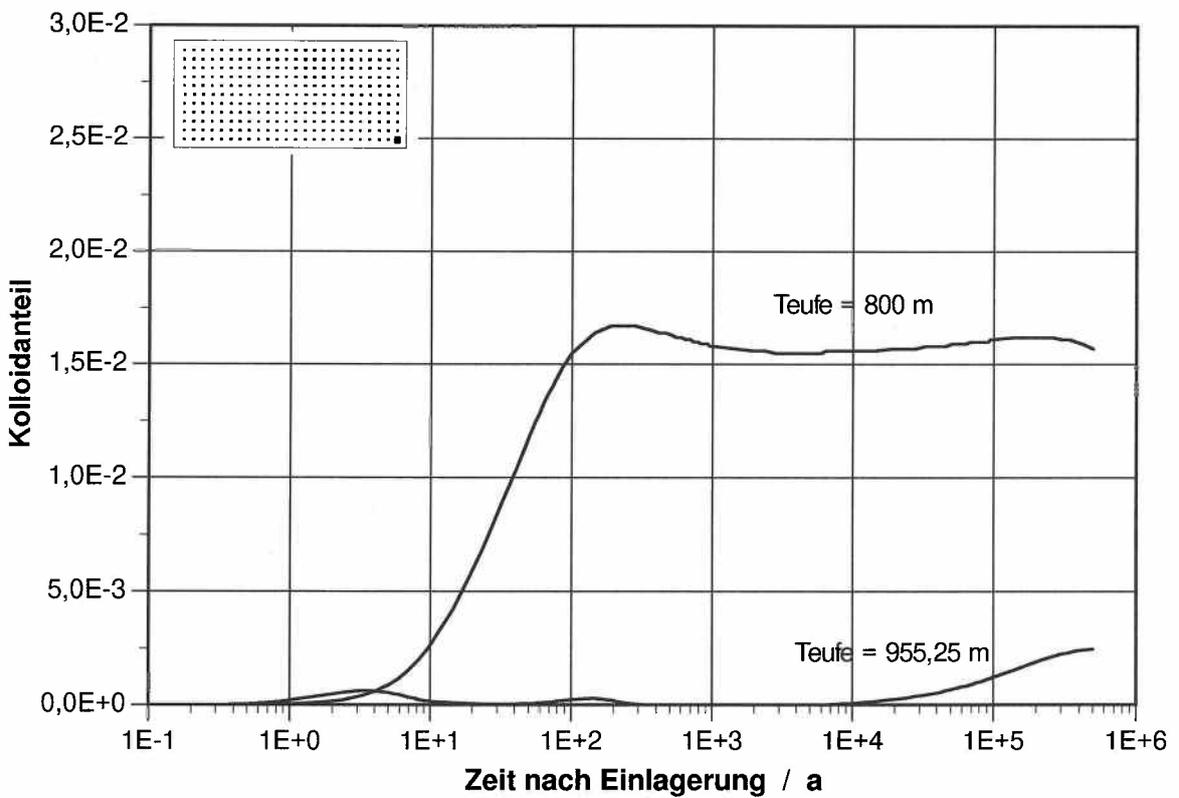
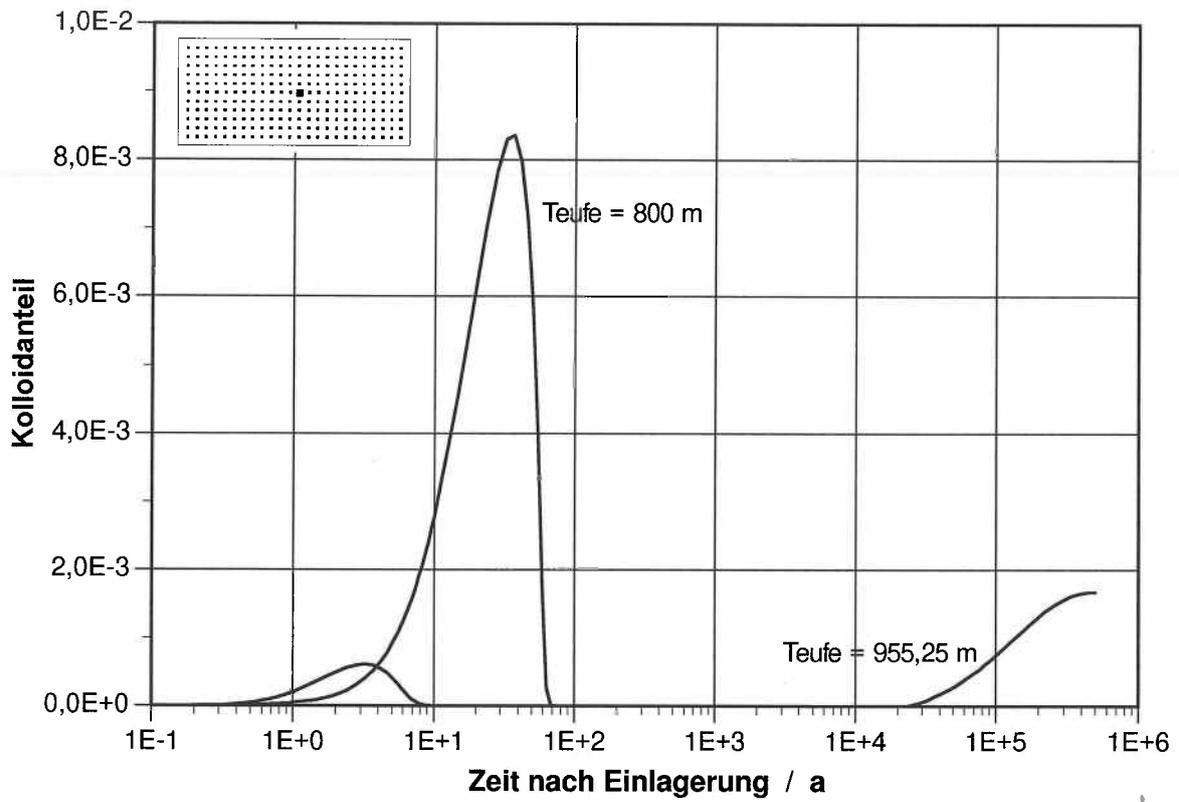
**Bild A-18**  $\gamma$ -Dosisleistung und  $\gamma$ -Dosis im Steinsalz direkt an der Kokillensäule für die Szenarien 1-4 (Abbrand 33 GWd/t U)



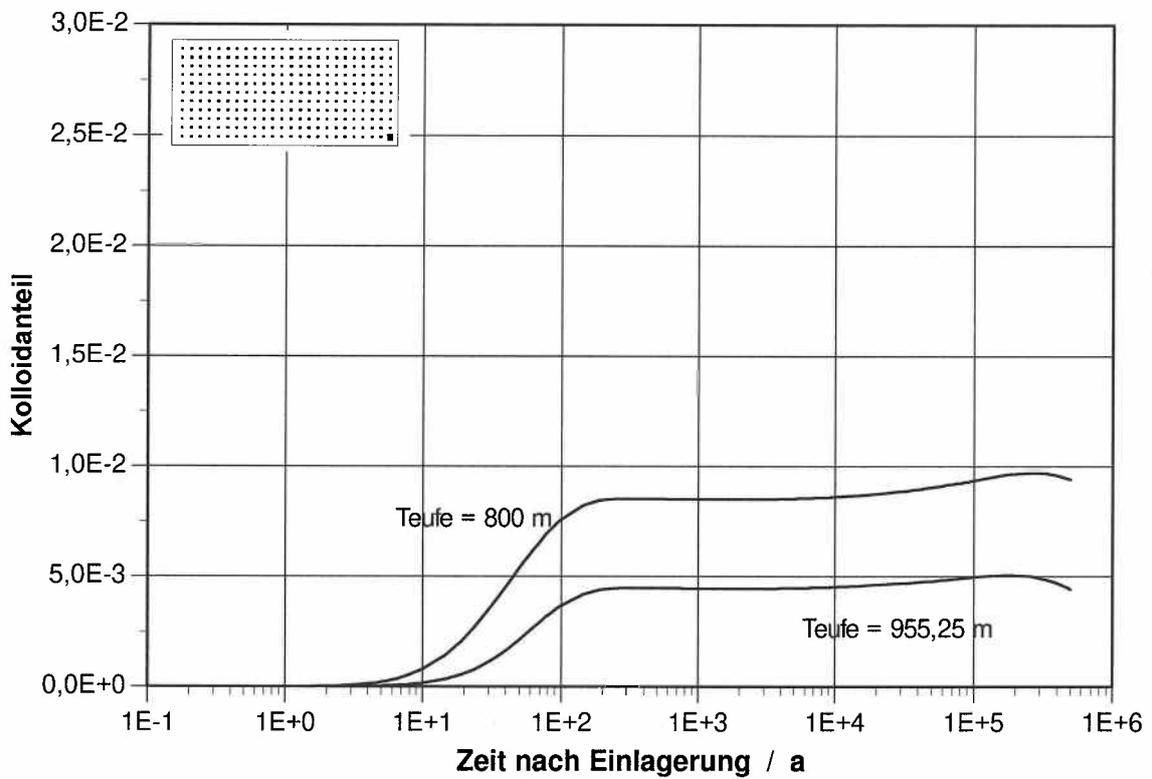
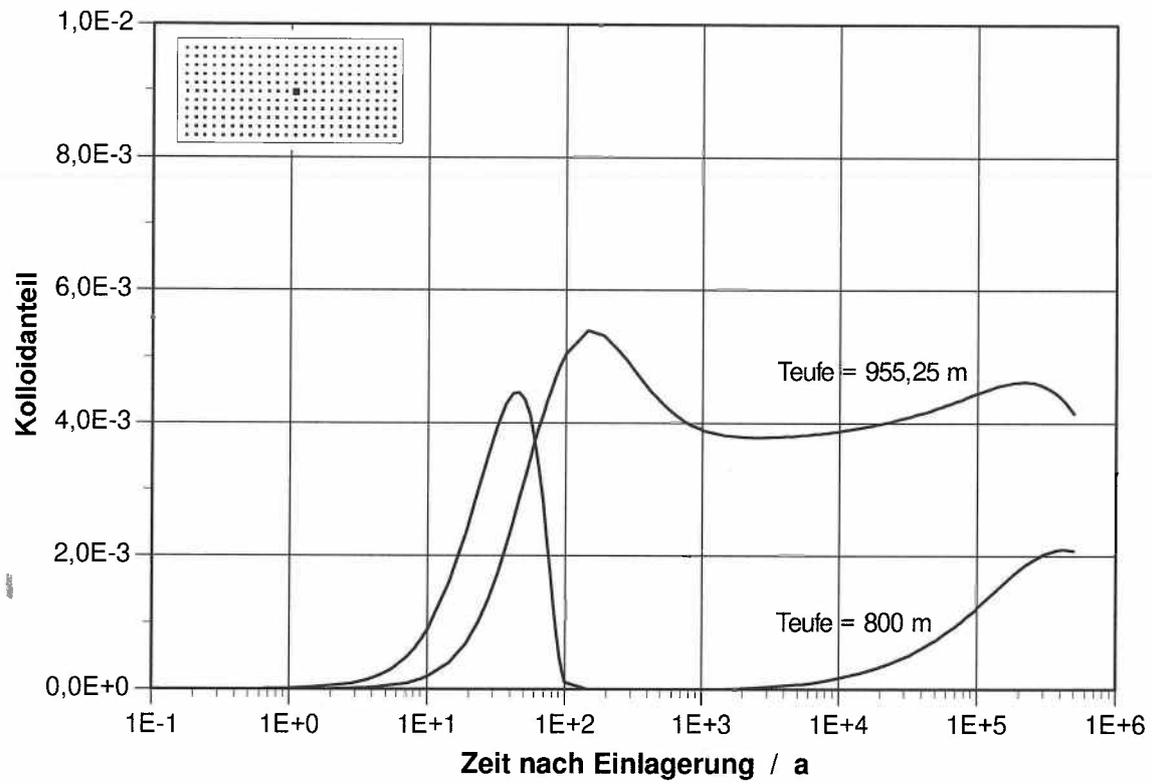
**Bild A-19**  $\gamma$ -Dosisleistung und  $\gamma$ -Dosis im Steinsalz direkt an der Kokillensäule für die Szenarien 5-8 (Abbrand 40 GWd/t U)



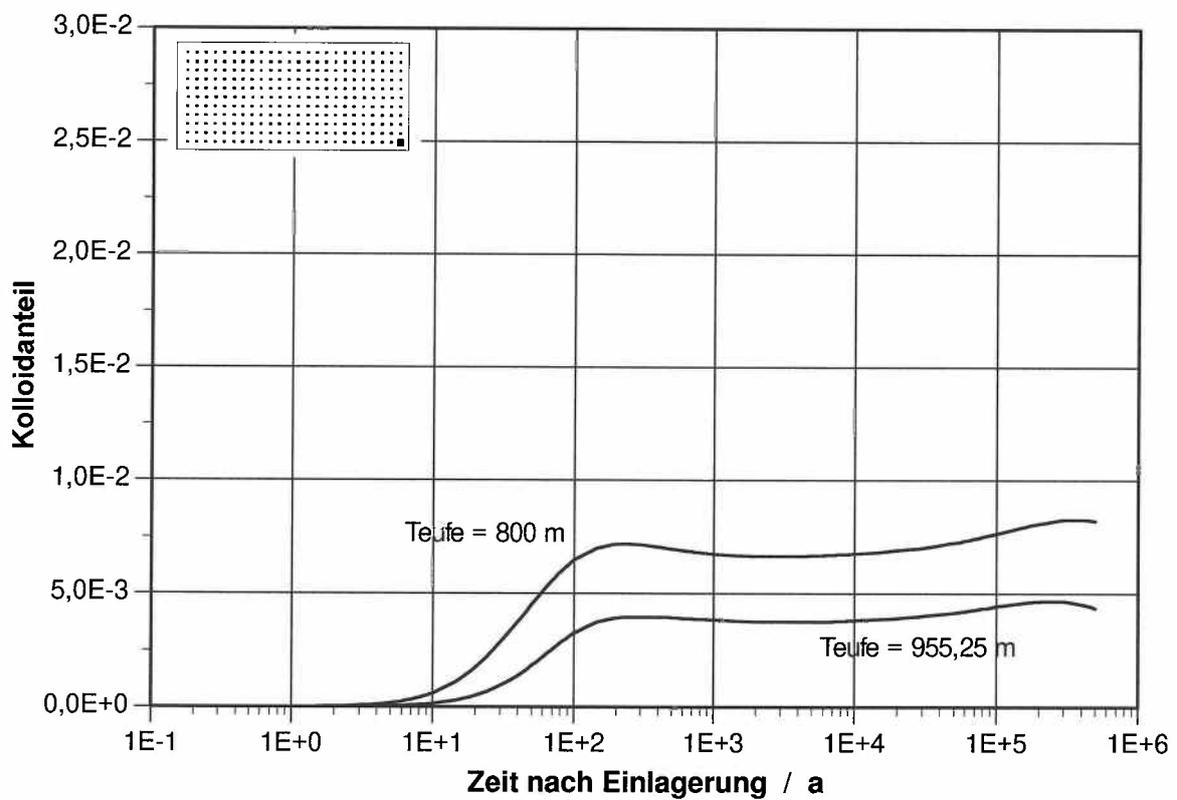
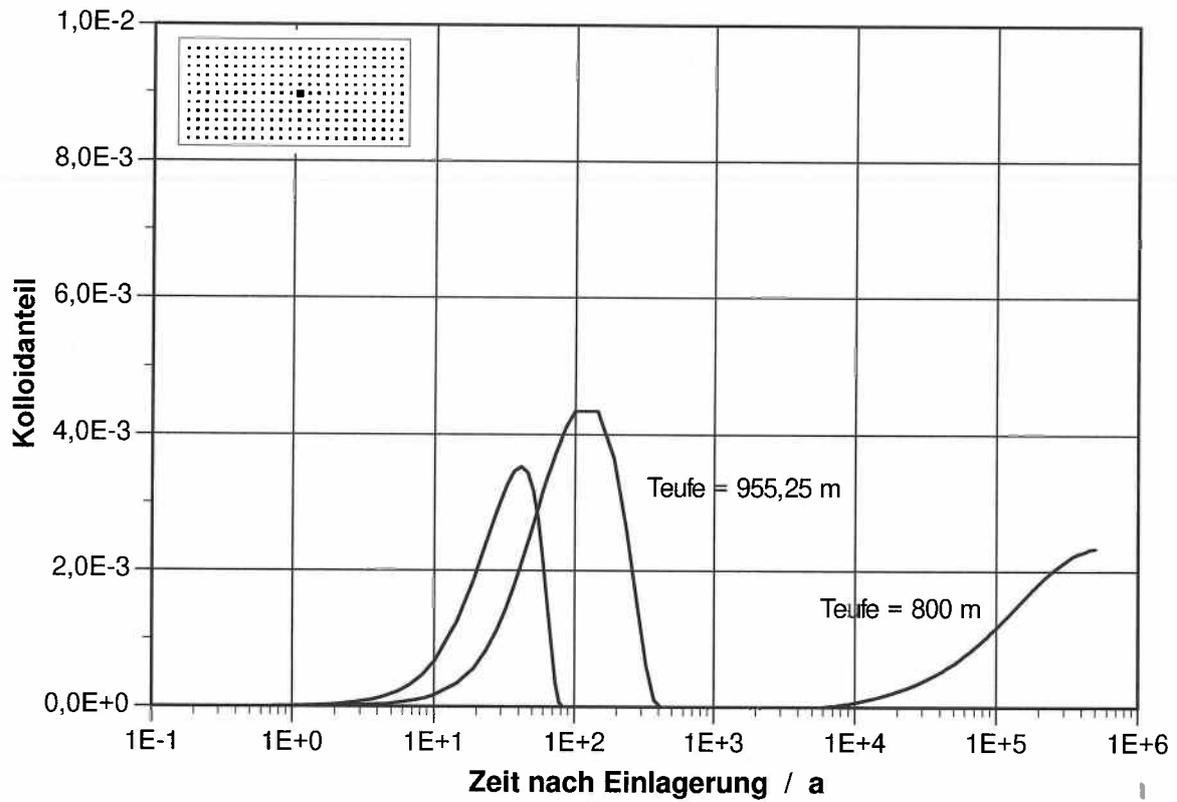
**Bild A-20** Natriumkolloidanteil am Bohrlochrand bei Szenario 1 (Abbrand 33 GWd/t U, Abklingzeit 3 a, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung 10 a) für 2 Bohrlochpositionen



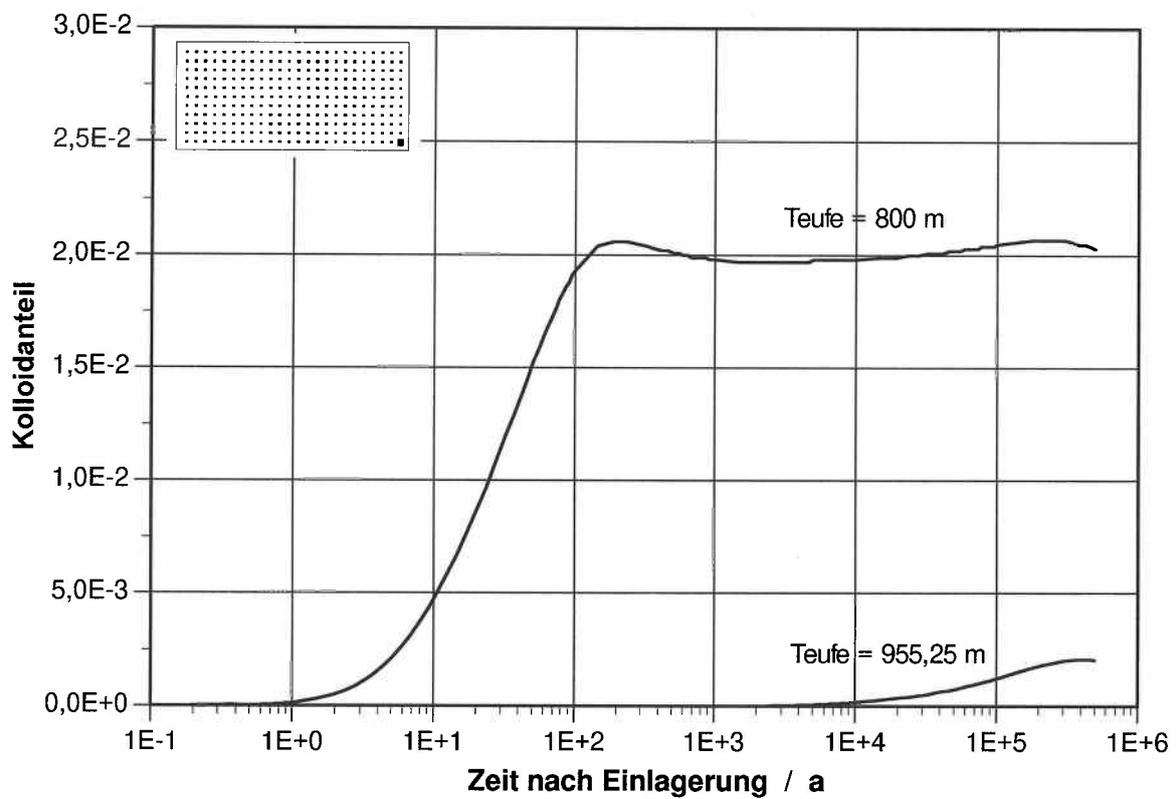
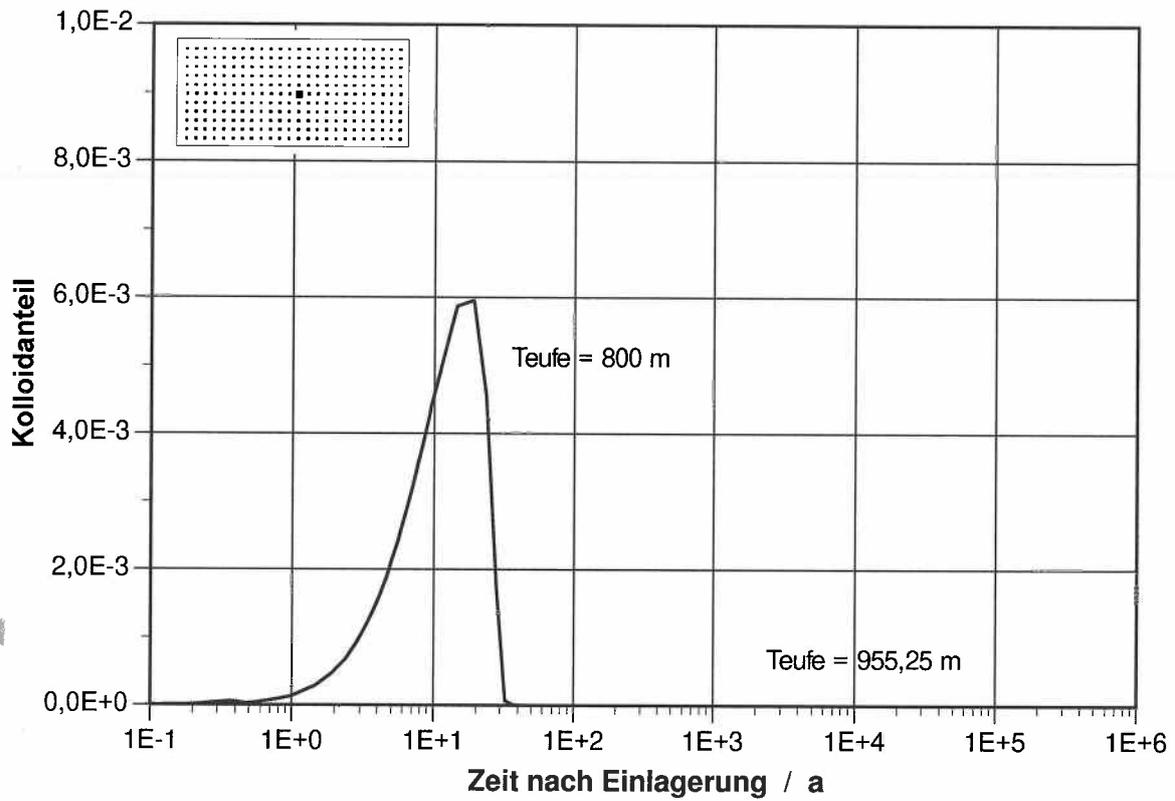
**Bild A-21** Natriumkolloidanteil am Bohrlochrand bei Szenario 2 (Abbrand 33 GWd/t U, Abklingzeit 10 a, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung 10 a) für 2 Bohrlochpositionen



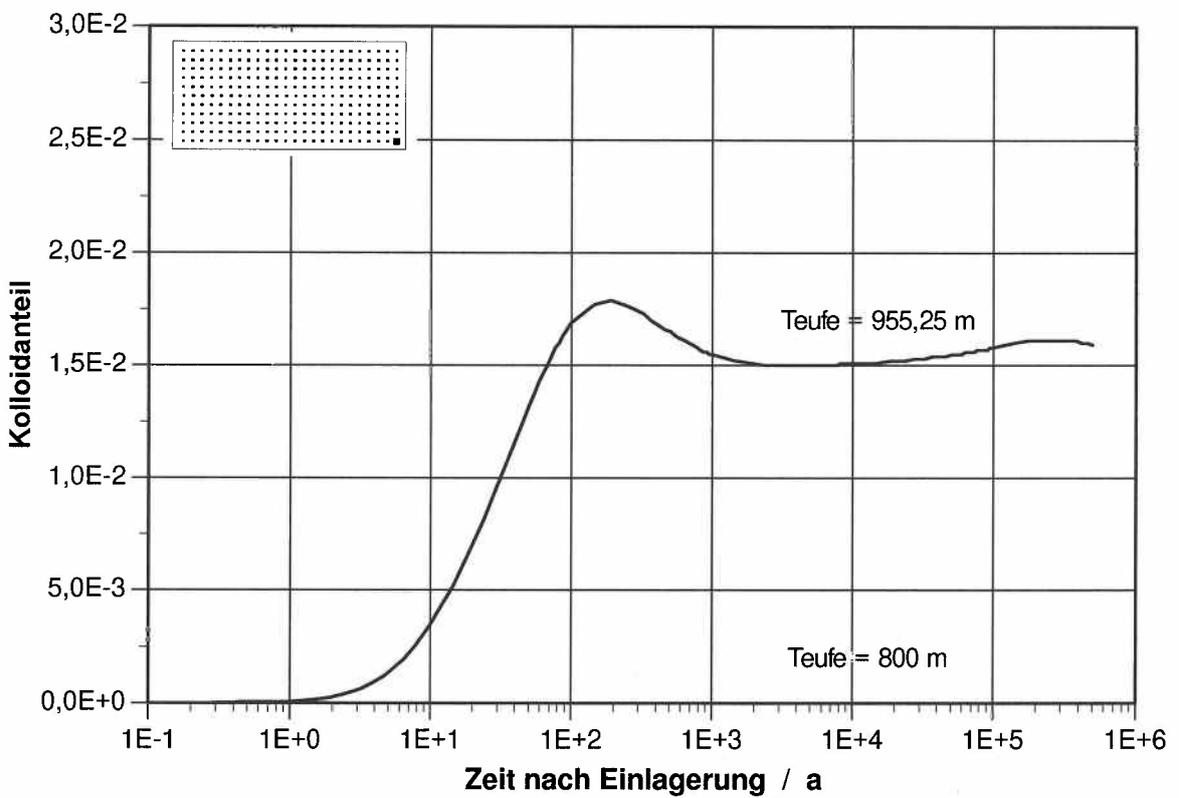
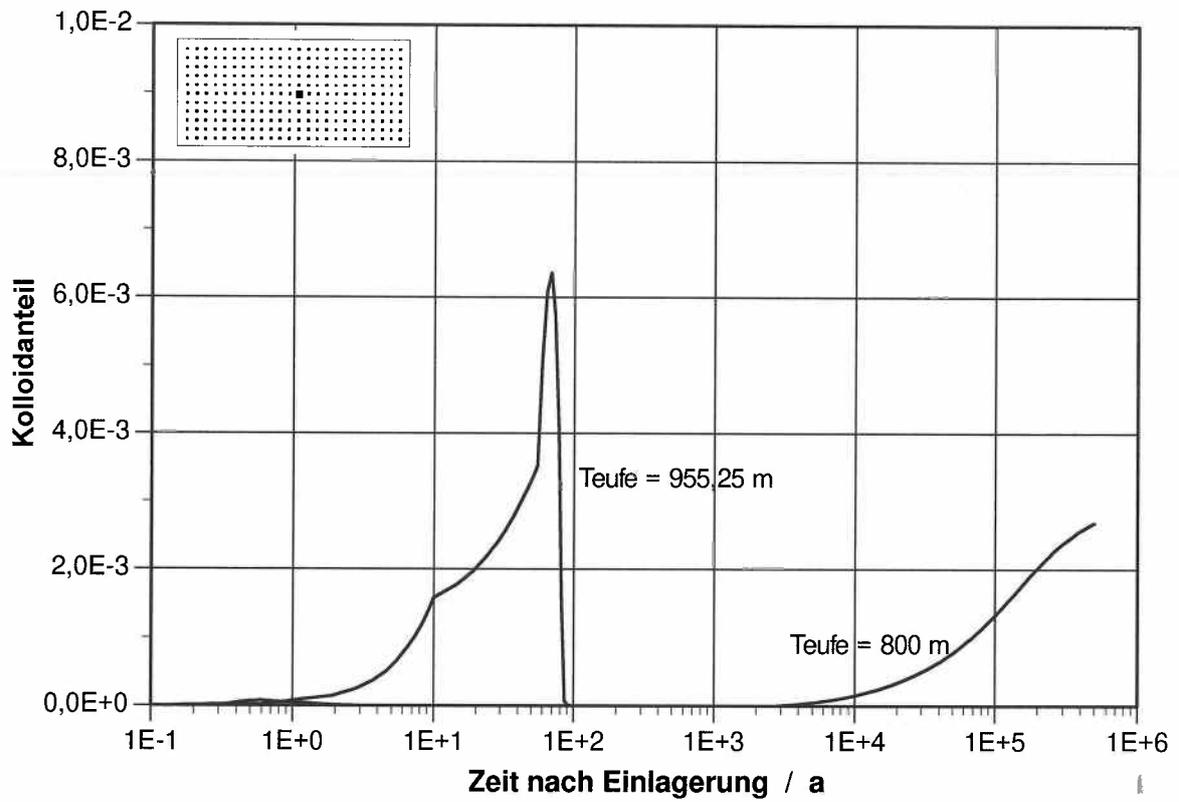
**Bild A-22** Natriumkolloidanteil am Bohrlochrand bei Szenario 3 (Abbrand 33 GWd/t U, Abklingzeit 3 a, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung 50 a) für 2 Bohrlochpositionen



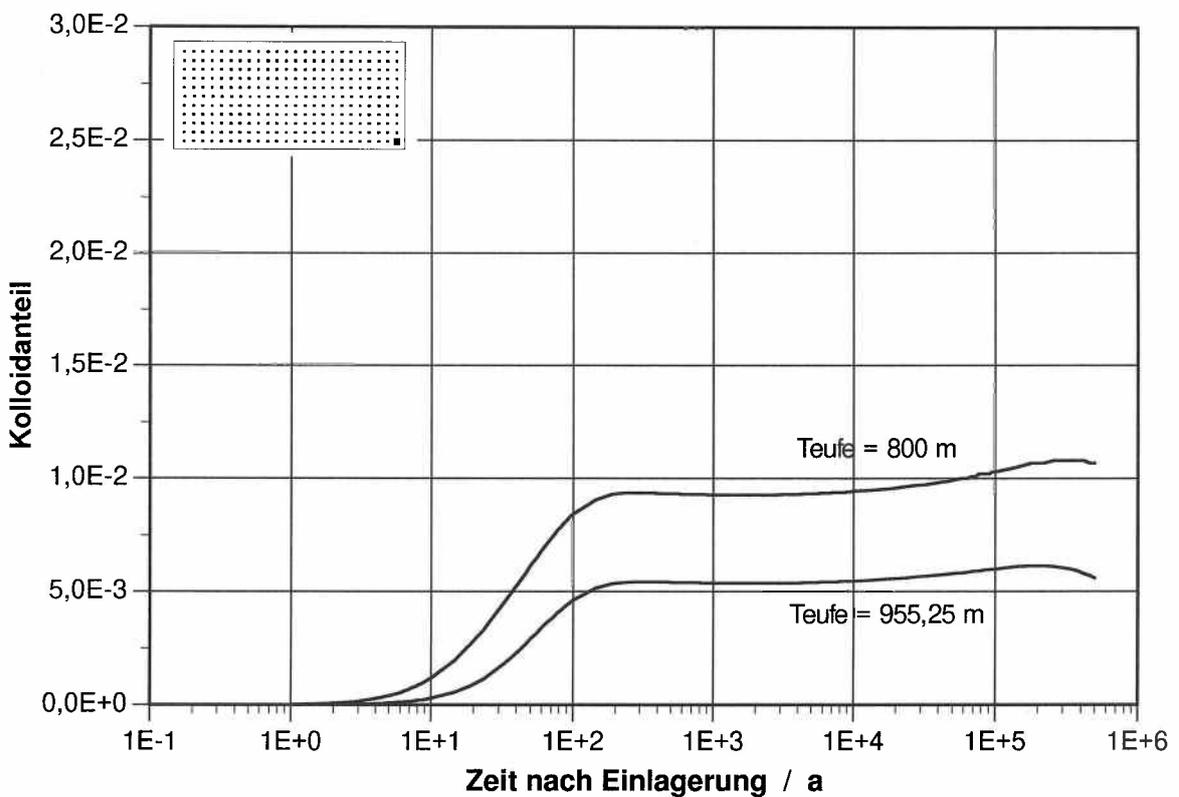
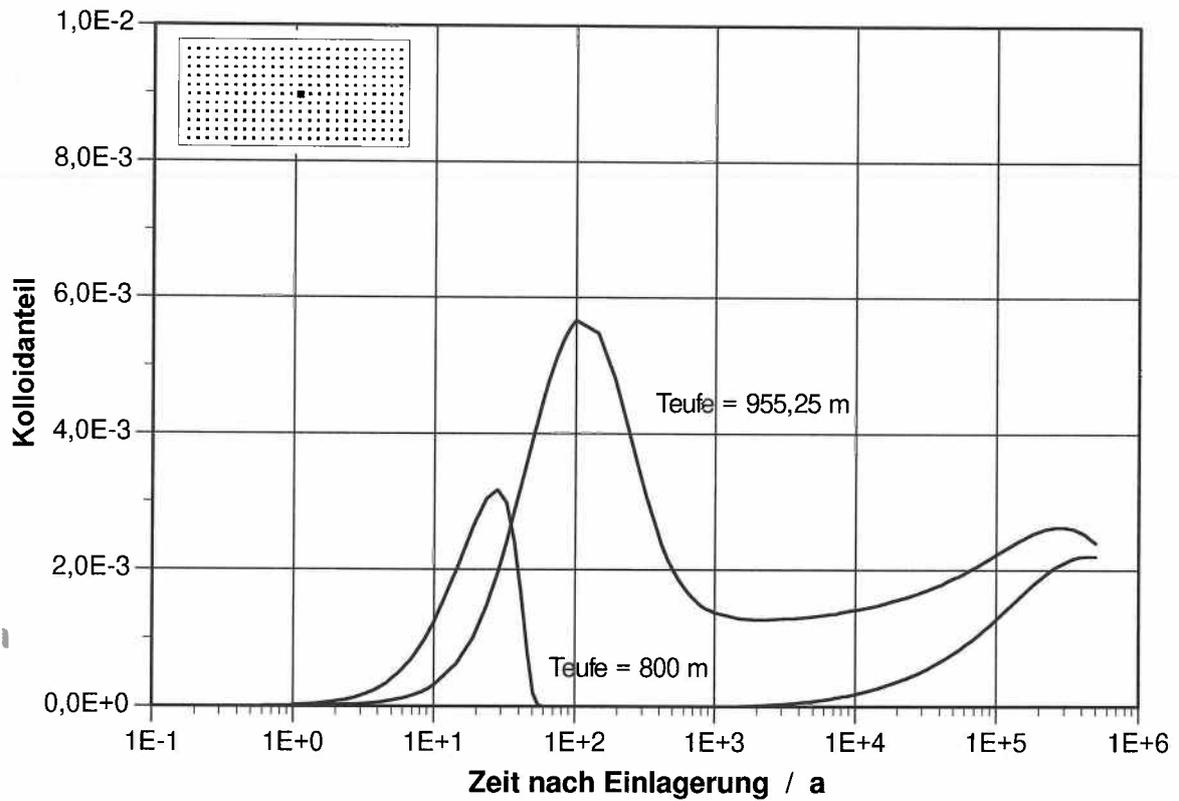
**Bild A-23** Natriumkolloidanteil am Bohrlochrand bei Szenario 4 (Abbrand 33 GWd/t U, Abklingzeit 10 a, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung 50 a) für 2 Bohrlochpositionen



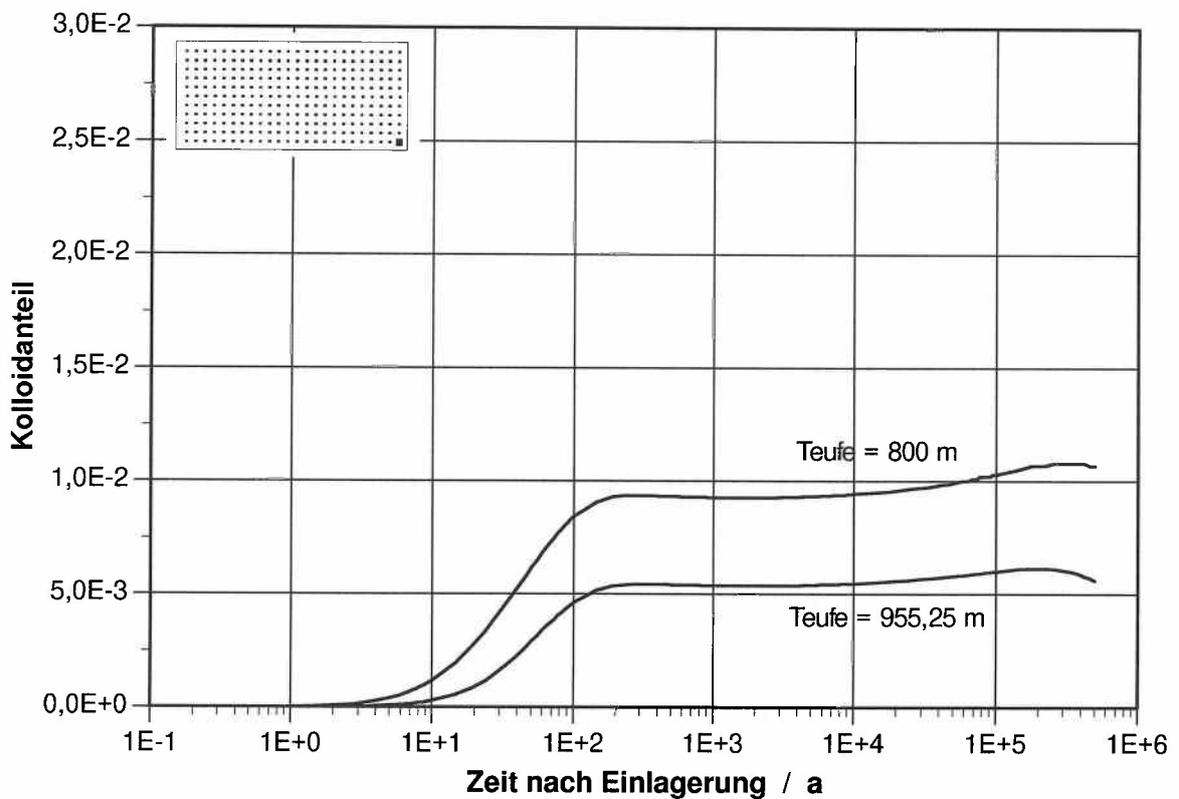
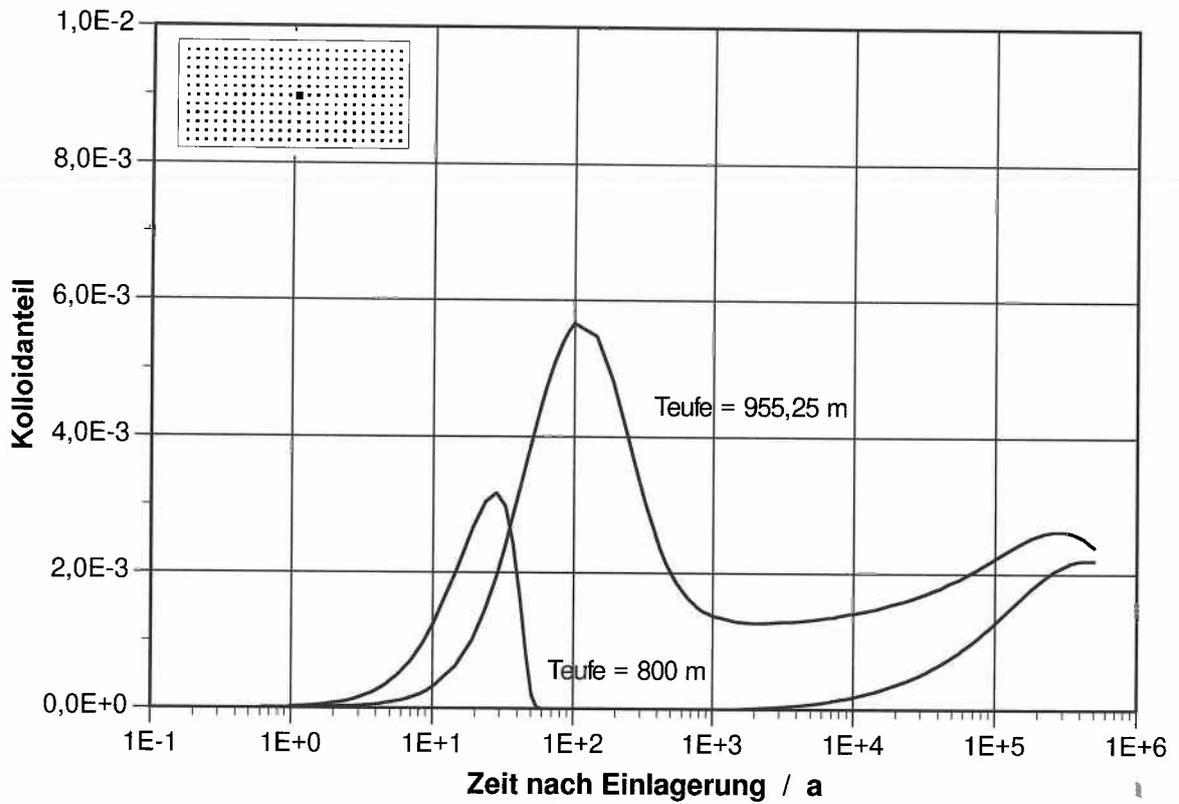
**Bild A-24** Natriumkolloidanteil am Bohrlochrand bei Szenario 5 (Abbrand 40 GWd/t U, Abklingzeit 3 a, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung 10 a) für 2 Bohrlochpositionen



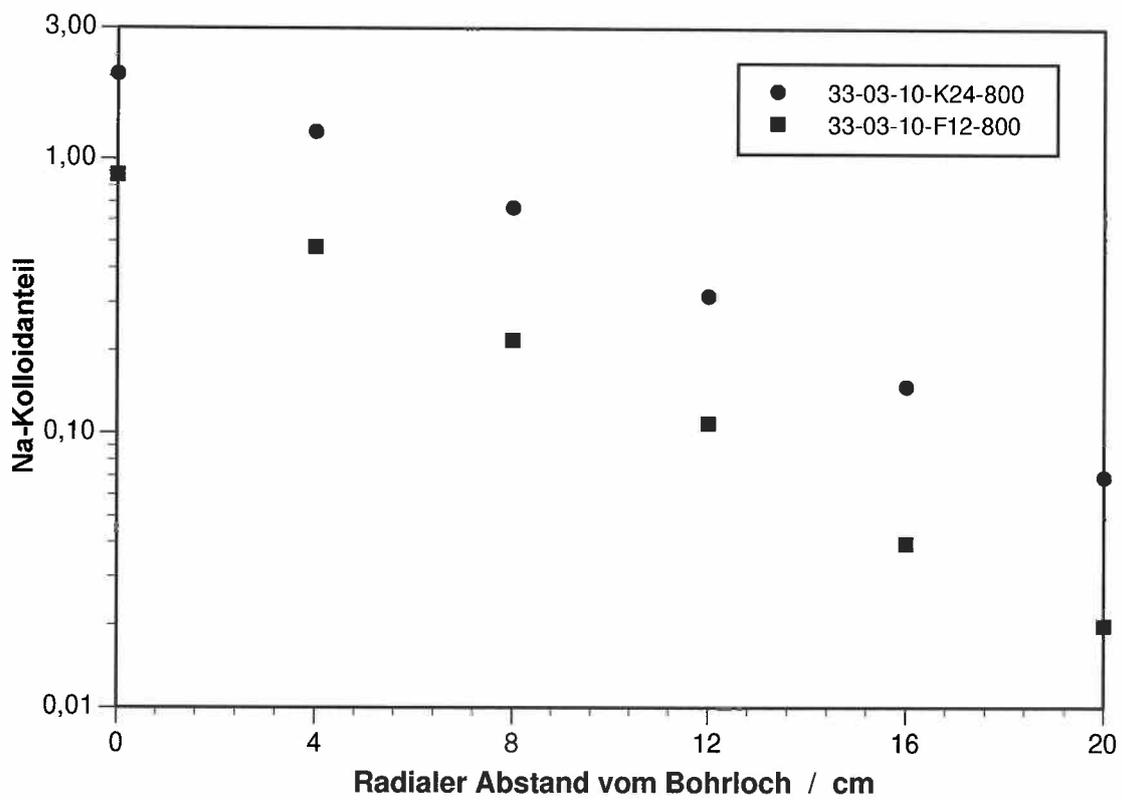
**Bild A-25** Natriumkolloidanteil am Bohrlochrand bei Szenario 6 (Abbrand 40 GWd/t U, Abklingzeit 10 a, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung 10 a) für 2 Bohrlochpositionen



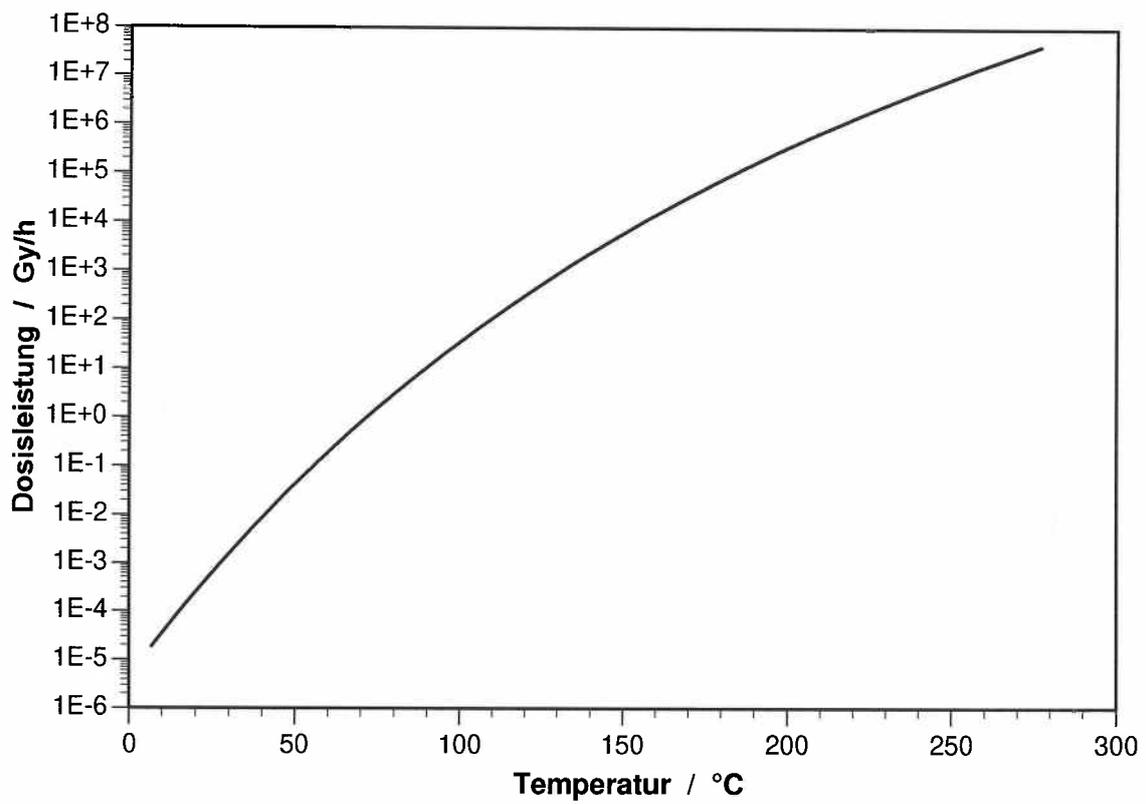
**Bild A-26** Natriumkolloidanteil am Bohrlochrand bei Szenario 7 (Abbrand 40 GWd/t U, Abklingzeit 3 a, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung 50 a) für 2 Bohrlochpositionen



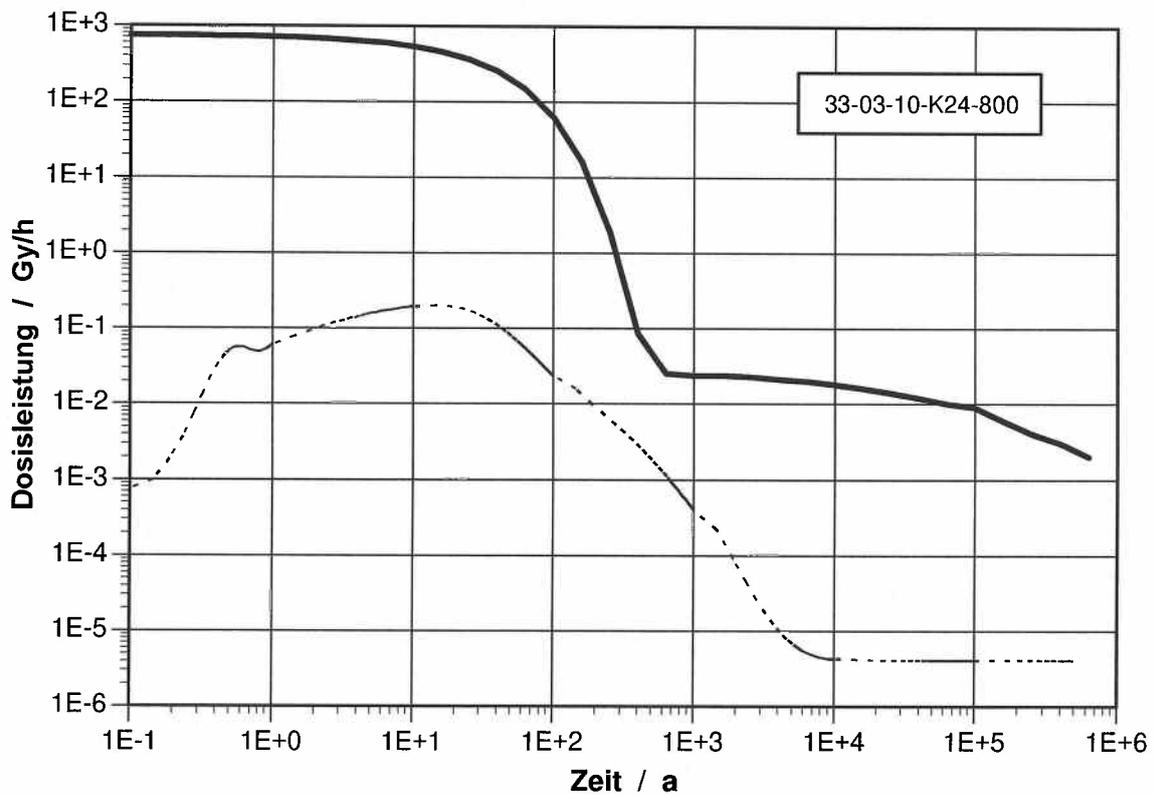
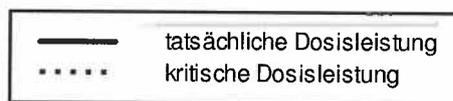
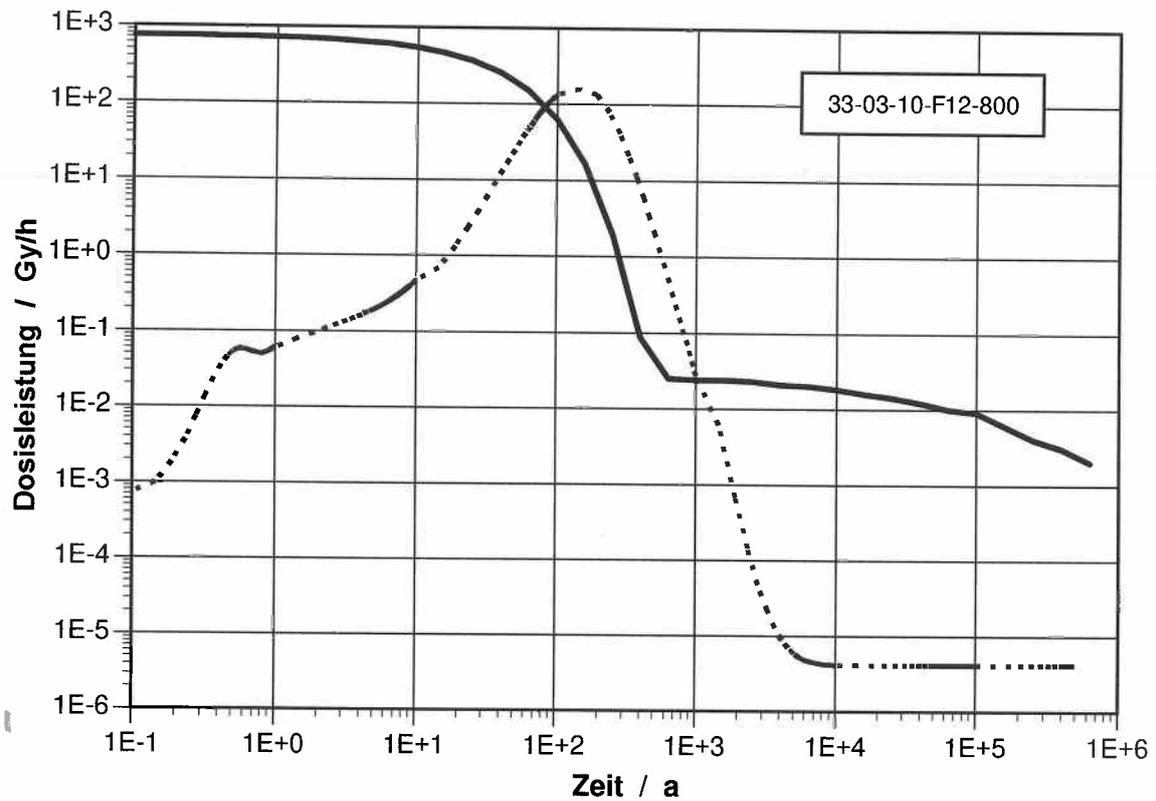
**Bild A-27** Natriumkolloidanteil am Bohrlochrand bei Szenario 8 (Abbrand 40 GWd/t U, Abklingzeit 10 a, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung 50 a) für 2 Bohrlochpositionen



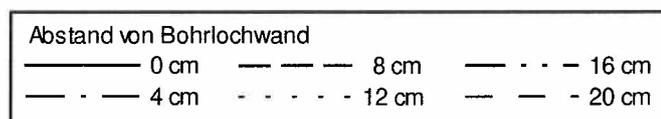
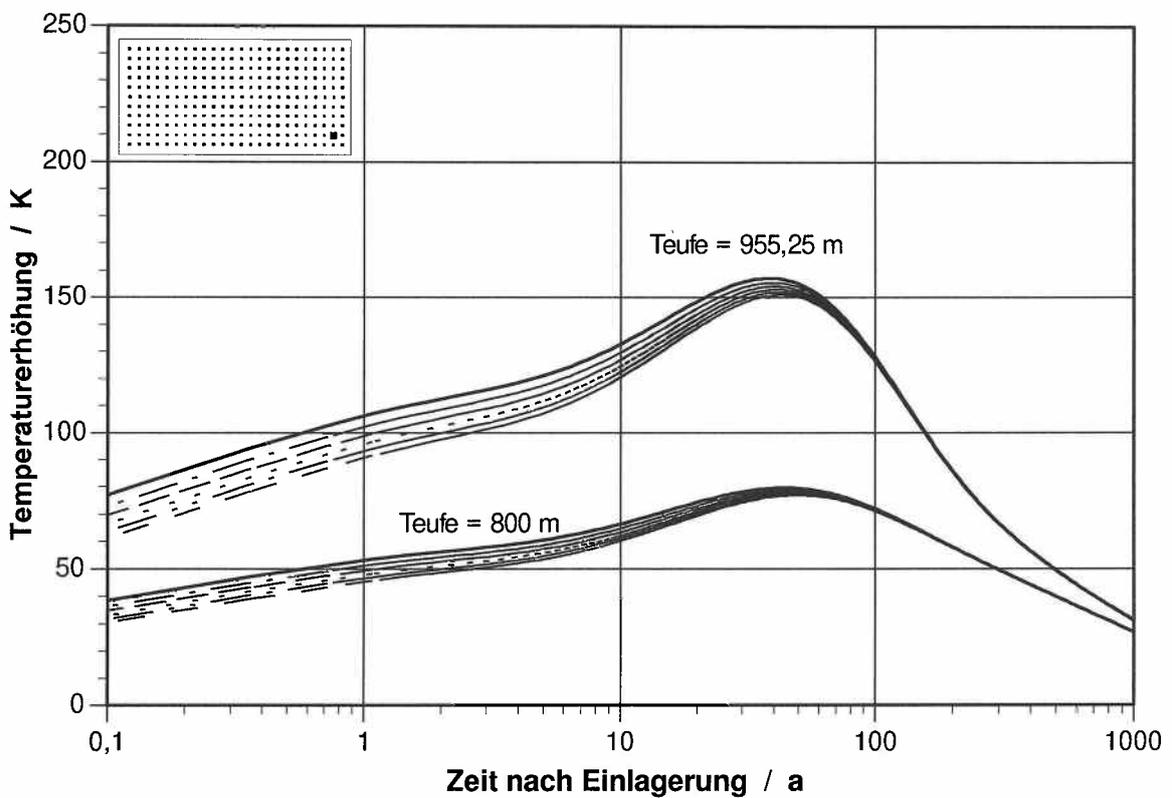
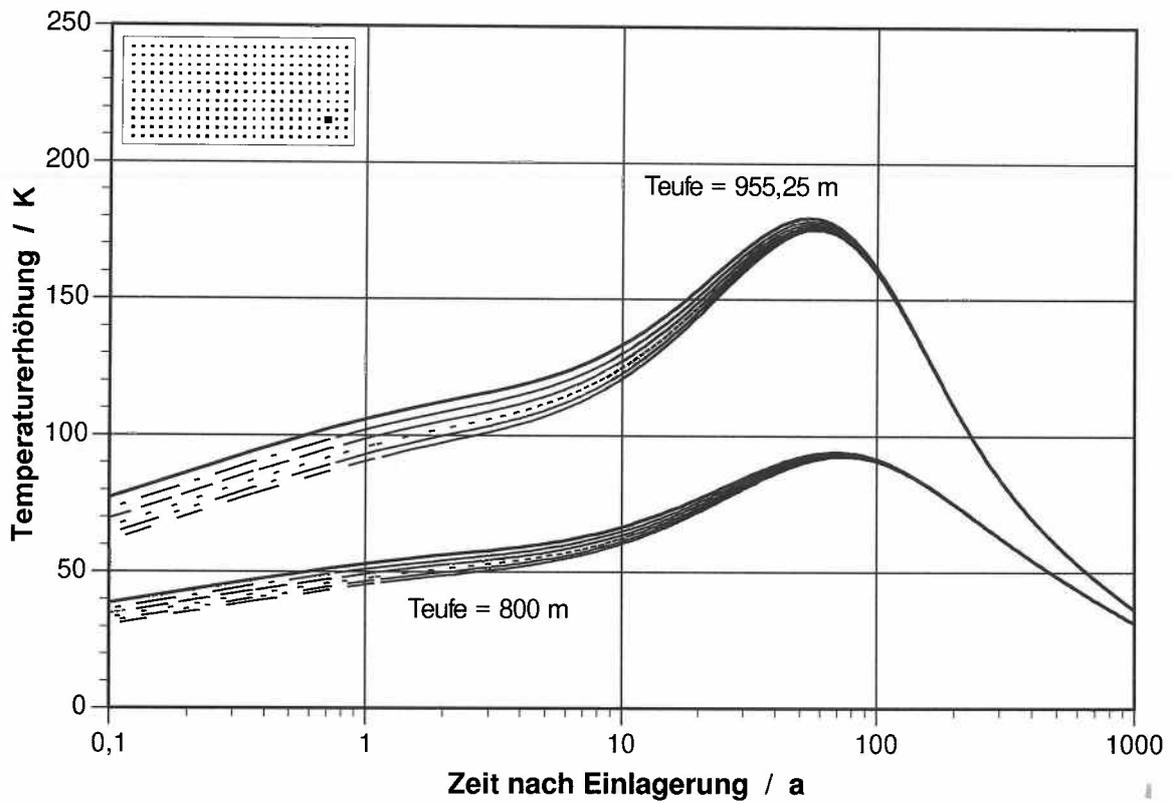
**Bild A-28** Natriumkolloidanteil als Funktion des radialen Abstandes beim Basisfall 33-03-10-F12-800 und 33-03-10-K24-800



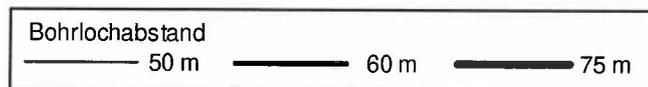
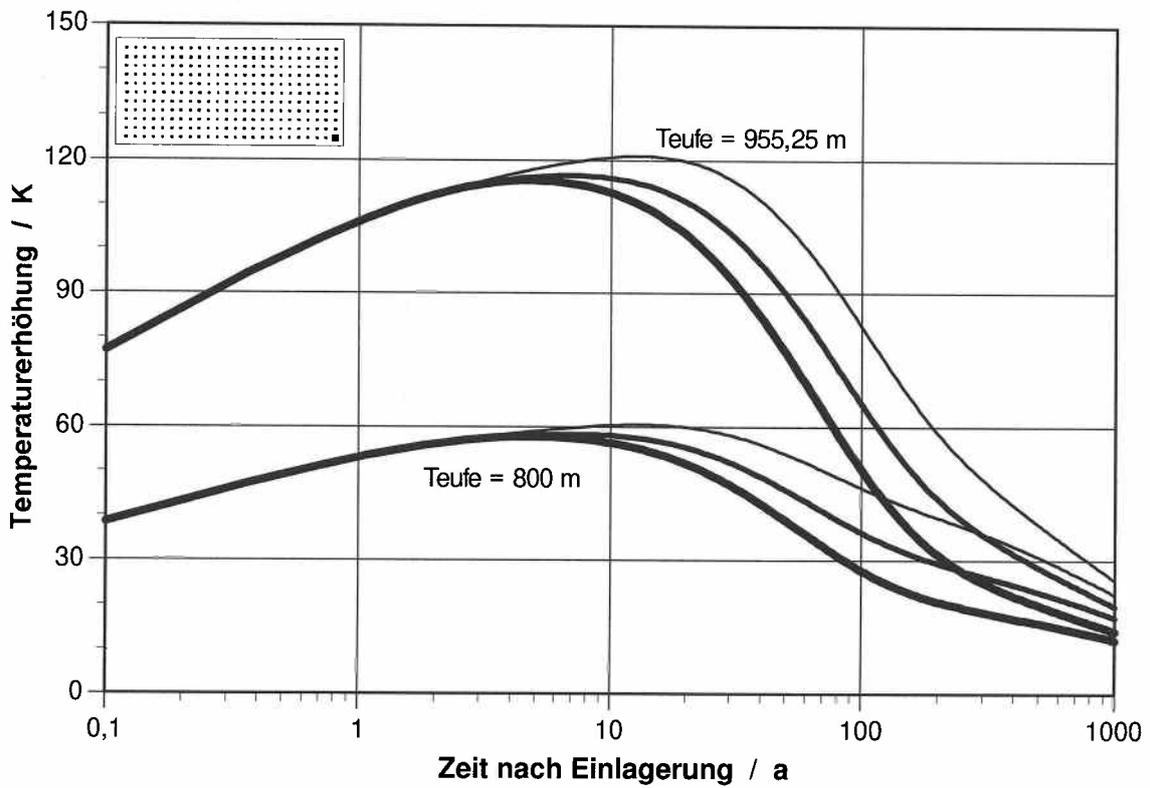
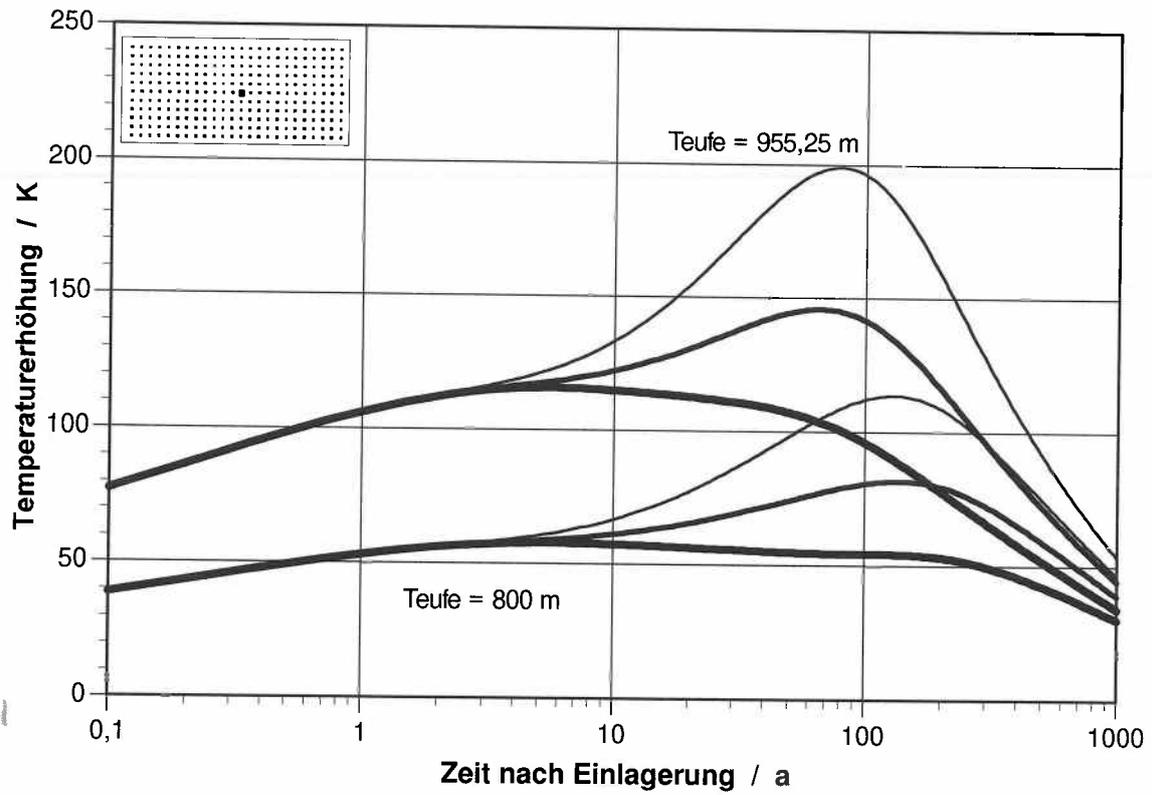
**Bild A-29** Abhängigkeit der kritischen Dosisleistung von der Temperatur (berechnet nach /SOP 94c/)



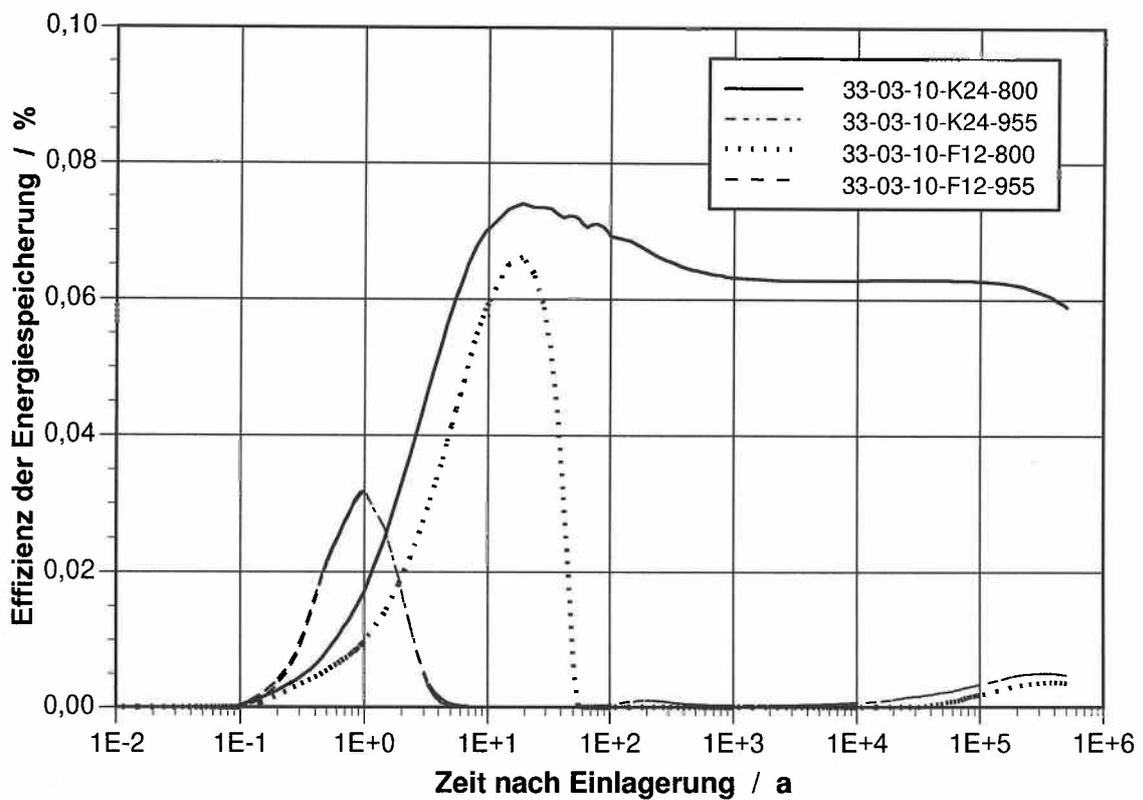
**Bild A-30** Vergleich der kritischen  $\gamma$ -Dosisleistung mit der aktuellen  $\gamma$ -Dosisleistung für die Basisfälle 33-03-10-F12-800 (oben) und 33-03-10-K24-800 (unten)



**Bild A-31** Temperaturentwicklung für verschiedene intermediäre Bohrlochpositionen beim Szenario 1



**Bild A-32** Einfluß des Bohrlochabstandes auf die berechneten Temperaturverläufe beim Szenario 1 (Abbrand 33 GWd/t U, Zeit nach Reaktorentnahme 3 a, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung 10 a)



**Bild A-33** Zeitliche Veränderung der Effizienz der Energiespeicherung beim Szenario 1 (Abbrand 33 GWd/t U, Zeit nach Reaktorentnahme 3 a, Zwischenlagerzeit nach Wiederaufbereitung 10 a), siehe auch Tabelle 9

**Gesellschaft für Anlagen-  
und 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](http://www.grs.de)**