

Literaturstudie über
die Fortentwicklung
des Kenntnisstandes
seit 1997 zur Bildung
von Strahlenschäden
in Alkalihalogeniden

(PSP Nr. 9X0004)

Literaturstudie über die
Fortentwicklung des
Kenntnisstandes
seit 1997 zur Bildung
von Strahlenschäden
in Alkalihalogeniden

Mönig, J

Juli 2002

Auftrags-Nr.: 551180

Anmerkung:

Dieser Bericht ist von der GRS im Rahmen des Vorhabens "Fachliche Unterstützung des BMU-Arbeitskreises zur Auswahl von Endlagerstandorten" (PSP Nr. 9X0004) erstellt worden. Der Auftraggeber behält sich alle Rechte vor. Insbesondere darf dieser Bericht nur mit seiner Zustimmung zitiert, ganz oder teilweise vervielfältigt werden bzw. Dritten zugänglich gemacht werden.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der Auftragnehmer wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers übereinstimmen.

Inhaltsverzeichnis

| | | |
|----------|---|-----------|
| 1 | Einleitung | 1 |
| 2 | Literaturrecherche | 4 |
| 2.1 | Vorgehensweise..... | 4 |
| 2.2 | Klassifizierung | 4 |
| 3 | Bewertung und Diskussion | 6 |
| 3.1 | Experimentelle Bestimmung der Strahlenschädigung | 6 |
| 3.2 | Neue experimentelle Ergebnisse | 8 |
| 3.2.1 | Ausmaß der Strahlenschädigung | 8 |
| 3.2.2 | Explosive Rückreaktion zwischen Bestrahlungsprodukten | 11 |
| 3.3 | Entwicklung von theoretischen Modellen | 14 |
| 4 | Zusammenfassung | 21 |
| 5 | Literaturverzeichnis | 24 |
| 5.1 | Neue Literatur | 24 |
| 5.2 | Weitere Literatur..... | 27 |
| 6 | Anhang | 29 |

1 Einleitung

Die radiolytische Bildung von Strahlenschäden im NaCl ist ein Vorgang, der bei der Endlagerung von wärmeentwickelnden, hochradioaktiven Abfällen (HAW-Abfällen) aus der Wiederaufarbeitung im Steinsalz bei normalen Betriebsbedingungen abläuft. Die Absorption von γ -Quanten im Steinsalz führt über einen komplexen Mechanismus zur Strahlenschädigung des Kristallgitters, wobei aus den primär gebildeten Punktdefekt-paaren aus F- und H-Zentren¹ sekundäre Punktdefekte und bei Bestrahlungsdosen von mehr als 10^6 Gy Defektaggregate und letztlich die molekularen Radiolyseprodukte Chlorgas (Cl_2) und metallisches Natrium (kolloidales Natrium) entstehen, die getrennt im NaCl-Kristallgitter vorliegen. Einher geht damit die Speicherung von Energie. Gleichzeitig und in Konkurrenz zu diesen Prozessen laufen aber auch Rekombinationsreaktionen von primären Defekten und andere Ausheilreaktionen ab, die zu einer Verringerung der Strahlenschädigung führen. In der Regel ergibt sich somit ein nicht-linearer Zusammenhang zwischen γ -Dosis und resultierender Strahlenschädigung. Die wichtigsten Einflußgrößen für die ablaufenden Reaktionen sind γ -Dosisleistung, Temperatur sowie Menge an Verunreinigungen bzw. zusätzlichen Komponenten im Salz.

In einem Endlager stellt die Bildung von Strahlenschäden nur ein lokales Phänomen dar und ist in radialer Richtung um die Einlagerungsbohrlöcher jeweils auf einen maximal 50 cm breiten Bereich begrenzt. Die Bildung chemisch sehr reaktiver Bestrahlungsprodukte kann aber potentiell von Bedeutung für die langzeitliche sichere Endlagerung von Wiederaufarbeitungsabfällen sein. Eine plötzlich ablaufende Rekombination größerer Mengen der molekularen Bestrahlungsprodukte würde wegen der Exothermie der Reaktion zu einer lokalen Temperaturerhöhung mit möglicherweise thermomechanischen Konsequenzen führen. Die Strahlenschädenbildung in Steinsalz wurde und wird daher national und international intensiv experimentell und theoretisch untersucht. Eine direkte experimentelle Bestimmung der Strahlenschädenbildung unter den Randbedingungen der Endlagerung ist jedoch prinzipiell nicht möglich. Mit endlager-relevanten Dosisleistungen können nur niedrige γ -Dosen erreicht werden, bei

¹ F-Zentrum: Leerstelle im Chloridionengitter, die von einem Elektron besetzt ist. H-Zentrum: Loch, das über vier Halogenionen in drei benachbarten Gitterplätzen entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gebunden ist (alternative Darstellung Loch, das über zwei Halogenionen an einem Gitterplatz gebunden ist), d.h. Cl_4^{3-} bzw. Cl_2^-

denen noch keine nennenswerte Bildung von Natriumkolloiden zu beobachten ist. In experimentell zugänglichen Zeiträumen müssen daher sehr hohe γ -Dosisleistungen verwendet werden, um eine entsprechende Gesamtdosis zu erreichen. Quantitative Aussagen zum Ausmaß der Strahlenschädigung des Steinsalzes bei der Endlagerung von HAW basieren folglich im wesentlichen auf Modellrechnungen, bei denen für jeden Ortspunkt die zeitlichen Veränderungen der wichtigen Parameter Dosisleistung und Temperatur während der langen Einlagerungszeiträume zu berücksichtigen sind. Diese Einflußgrößen sind von verschiedenen Randbedingungen (u.a. Anfangsnuklidinventar, Zwischenlagerungszeit vor und nach Wiederaufarbeitung, geometrische Auslegung des Endlagers) abhängig.

In den Jahren 1993 bzw. 1997 wurden die Kenntnisse zu den experimentellen Untersuchungen und den theoretischen Modellen jeweils in Statusberichten /GIE 93, MOE 97/ zusammenfassend dargestellt. Von den Modellen zur Strahlenschädenbildung waren bisher die auf dem makroskopischen Ansatz basierenden Theorien hinsichtlich der Richtigkeit ihrer Modellvorhersagen am erfolgreichsten, vor allem im Hinblick auf eine quantitative Beschreibung des Einflusses der wichtigsten Parameter γ -Dosisleistung, Temperatur und Verunreinigungen. Ein solcher Ansatz basiert auf kinetischen Gleichungen, die die Änderungen der makroskopischen Konzentrationen der primären Defekte und der Defektaggregate als Funktion der Zeit beschreiben. Auf dem makroskopischen Ansatz basieren die Jain-Lidiard-Theorie /JAI 77, LID 79/ und die von den Hartog und seinen Mitarbeitern /SEI 92/ sowie von Soppe /SOP 93, SOP 94/ vorgenommenen Erweiterungen. In Übereinstimmung mit experimentellen Daten wird die Existenz einer kritischen Dosisleistung für die Aggregation der Defekte vorhergesagt, 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.

Modellrechnungen zur radiolytischen Strahlenschädenbildung im Steinsalz mit realistischen Randbedingungen im Bezug auf die Temperaturen und γ -Dosisleistungen, die in einem deutschen Endlager auftreten können, und unter Berücksichtigung ihrer zeitlichen Veränderungen wurden 1997 erstmals durchgeführt /MOE 97/. Für die einzelnen Einflußfaktoren wurden begründete Annahmen getroffen. Die maximale Dosis liegt bei ca. $3 \cdot 10^8$ Gy, wobei 85 - 90 % der Gesamtdosis in den ersten 200 Jahren nach Einlagerung der Abfälle im Salz deponiert werden. Auf der Basis dieser Modellrechnungen wurde die maximal in einem Endlager im Salinar auftretende

Strahlenschädigung mit 2 mol-% Na und die gespeicherte Energie mit ca. 165 J/g abgeschätzt. Negative Folgen, wie z.B. eine spontane Energiefreisetzung mit erheblicher Aufheizung des Wirtsgesteins und potentieller Rißbildung, sind nach diesen Ergebnissen nicht zu befürchten und die Integrität des Einlagerungsbereiches ist durch das Ausmaß der Strahlenschädenbildung nicht gefährdet. Die so ermittelte Strahlenschädigung wurde hinsichtlich der Langzeitauswirkungen als unbedenklich bewertet.

Seit 1997 sind weitere experimentelle und theoretische Arbeiten zu dieser Thematik publiziert worden. So wurden allein von Prof. den Hartog und seinen Mitarbeitern in den Niederlanden mehr als 15 Veröffentlichungen publiziert, in denen ein neues Modell für die Strahlenschädenbildung abgeleitet wird und von einer explosionsartigen Rückreaktion zwischen den im Steinsalzgitter vorhandenen molekularen Bestrahlungsprodukten berichtet wird.

In dieser Literaturstudie werden daher die seit dem letzten Statusbericht im Jahre 1997 veröffentlichten wissenschaftlichen Studien zur Strahlenschädenbildung in Steinsalz ausgewertet und zusammenfassend dargestellt. Dabei wird insbesondere bewertet, ob Konsequenzen im Hinblick auf eine mögliche Endlagerung hochradioaktiver Abfälle in Steinsalzformationen zu ziehen sind. Im einzelnen sind dabei folgende Fragen von besonderem Interesse:

- Gibt es neue experimentelle Erkenntnisse zum Ausmass der Strahlenschädenbildung?
- Welche Bedeutung haben die experimentellen Befunde zur explosiven Rückreaktion der molekularen Bestrahlungsprodukten für eine Einlagerung von HAW im Steinsalz?
- Liefern neue bzw. verbesserte Theorien zur Strahlenschädenbildung andere quantitative Prognosen zum langfristigen Ausmass der Strahlenschädigung als bisher?

Vor diesem Hintergrund ist letztlich die Frage zu beantworten, ob die in der neuen Literatur veröffentlichten Phänomene und Erkenntnisse Auswirkungen auf die 1997 getroffene Aussage haben, dass die Strahlenschädigung des Steinsalzes unter realistischen Bedingungen in einem Endlager keine Auswirkungen auf die Integrität der geologischen Barriere haben.

2 Literaturrecherche

2.1 Vorgehensweise

Um einen möglichst vollständigen Überblick über die seit Drucklegung des letzten Berichtes im Juni 1997 veröffentlichte Literatur zu erhalten, wurde zunächst eine Recherche durchgeführt. Dazu wurden die Jahrgänge 1997 – 2001 sowie die wöchentlichen Ausgaben 1 bis 24 des Jahres 2002 der Chemical Abstracts (Reference Edition, Physical, Chemical & Earth Sciences), die bei der GRS vorliegen, mit geeigneten Suchkriterien abgefragt. Zum einen handelte es sich dabei um Namen von Wissenschaftlern, die auf diesem Sachgebiet veröffentlichen, zum anderen um entsprechende Stichworte:

- Autorennamen Den Hartog, Lidiard, Soppe, Donker, Kotomin
- Sachstichworte radiation damage, radiation defect, stored energy, F-Center, Na colloid

Aus der auf diese Weise ermittelten Trefferliste (mehrere 100 Zitate) wurden anhand des jeweiligen Abstracts die einschlägigen Literaturstellen identifiziert, beschafft und ausgewertet. Zum Teil wurden in diesen Veröffentlichungen weitere Literaturstellen zitiert, die bisher nicht erfasst worden waren, da sie in Journalen veröffentlicht wurden, die von Current Contents nicht berücksichtigt werden. Diese Literaturstellen wurden ebenfalls beschafft und ausgewertet. Insgesamt wurden auf diese Weise mehr als 30 Arbeiten, die seit 1997 veröffentlicht wurden, im vorliegenden Bericht berücksichtigt. Sie sind im Literaturverzeichnis unter dem Stichwort Neue Literatur aufgelistet. Aufgrund der beschriebenen Vorgehensweise ist der Autor überzeugt, dass die relevante wissenschaftliche Literatur zur Bildung von Strahlendefekten in Alkali-halogeniden aus den letzten fünf Jahren vollständig gesichtet worden ist.

2.2 Klassifizierung

Die Literaturstellen beschäftigen sich mit der Untersuchung der Reaktionen von Strahlendefekten bzw. des Ausmasses der Strahlenschädenbildung, der Untersuchung von additiv gefärbten Kristallen oder anderen Aspekten. Tabelle 1 gibt eine erste Zuordnung der Arbeiten zu den Themengebieten und Alkali-halogenidsystemen, wobei auch Mehrfachnennungen vorkommen können.

Tab. 1 Klassifizierung der Veröffentlichungen nach Themengebieten

| | Alkalihalogenidsysteme | |
|--|--|--|
| | NaCl | andere |
| Quantitative Daten zur Strahlenschädigung | /DON 96/, /HAR 96/, /VAI 96/, /HAR 97/, /HAR 99/, /VAI 99/, /VAI 00a/, /DUB 00b/ | |
| Art, Form und Eigenschaften von Defektaggregaten | /KAN 97/, /CHE 98/, /VAI 96/, /VAI 97/, /VAI 99/ | /KLE 01/ |
| Bildungsmechanismen von Defektaggregaten | /KUZ 97/, /LID 98/, /DUB 99°a-c/, /VAI 99/, /DUB 00b/, /DUB 01a/ | /KUZ 97/, /KOT 98/, /HUI 98/, /GAL 99/, /KOT 01/ |
| Ausheilreaktionen von Metallkolloiden, explosive Reaktion von Defektaggregaten | /LID 98/, /VAI 00a/, /VAI 00b/, /VAI 01/, /DUB 01b/ | /ZHA 97/, /GE 98/, /GAL 99/ |
| Modellrechnungen | /LID 98/, /DUB 00a/, /DUB 00b/, /TUR 01/, /DUB 01a/ | /HUI 98/, /KUZ 98/ |
| Sonstige Aspekte | /MAR 98/, /ADU 98/ | /ADU 98/ |

Die weitere Auswertung konzentriert sich auf die Arbeiten in NaCl-Systemen. Strahlenschädigungen unter Bildung von metallisches Kolloiden im Kristallgitter treten aber auch bei anderen Salzen mit einwertigen Kationen oder Anionen, wie LiF /KLE 01/ oder CsI /GAL 99/ auf, sowie bei Salzen mit zweiwertigen Kationen, wie z.B. CaF₂ /HUI 98/. Die Mechanismen, die zur Bildung der Defektaggregate aus den primären Punktdefekten führen, entsprechen dabei weitgehend den Vorgängen beim NaCl.

3 Bewertung und Diskussion

3.1 Experimentelle Bestimmung der Strahlenschädigung

Üblicherweise wird das Ausmaß der Strahlenschädigung durch Bestimmung der Menge an molekularen Bestrahlungsprodukten, also kolloidalem Natrium bzw. Chlorgas, oder durch Messung der gespeicherten Energie ermittelt. Die gebräuchlichsten physikalischen bzw. chemischen Methoden zur Bestimmung der Strahlenschädigung sind in Tabelle 2 aufgeführt. In der letzten Spalte sind die Messmethoden nach ihrer Art von Informationen unterschieden. Mit quantitativen Methoden kann die Strahlenschädigung direkt ermittelt werden, während qualitative Methoden Informationen zu den Strahlendefekten selbst und zum Mechanismus der Strahlenschädigung liefern. In bestimmten Dosisbereichen lassen qualitative Messmethoden auch quantitative Aussagen zu.

Tab. 2 Übliche Methoden zur Bestimmung der Strahlenschädigung

| Bestrahlungsprodukt | Messmethode | Bemerkung |
|----------------------|---|-------------|
| Kolloidales Natrium | DDK*, Bestimmung der latenten Schmelzwärme des Na bei ca. 100 °C | quantitativ |
| | Chemische Analyse, nach Reaktion mit Wasser Bestimmung des Wasserstoffs | quantitativ |
| | NMR | qualitativ |
| | ESR | qualitativ |
| Chlorgas | DDK*, Bestimmung der latente Schmelzwärme des Cl bei -100 °C | quantitativ |
| | Chemische Analyse, durch Reaktion mit in wässriger Lösung | quantitativ |
| Gespeicherte Energie | DDK* | quantitativ |

* DDK = dynamische Differenz-Kalorimetrie (engl. differential scanning calorimetry, DSC)

Mit der dynamischen Differenz-Kalorimetrie können in einer Messung sowohl die Mengen der molekularen Bestrahlungsprodukte, Cl₂ und kolloidales Na, über ihre latenten Schmelzwärmen als auch die gespeicherte Energie ermittelt werden. Nach erfolgter γ -Bestrahlung wird die Salzprobe abgekühlt (-120 °C) und dann mit einer kontinuierlichen Heizrate aufgeheizt, wobei die resultierenden Wärmeflüsse gemessen werden. Ein typisches Messsignal ist in Abbildung 1 dargestellt.

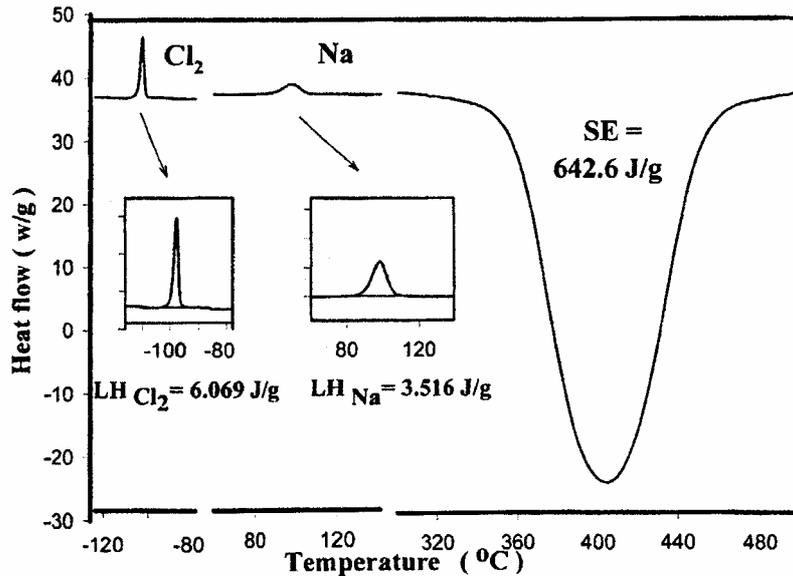


Abb. 1 Gleichzeitige Bestimmung der latenten Schmelzwärme von Chlor (LH_{Cl_2}) und Natrium (LH_{Na}) und gespeicherten Energie (SE) in einer γ -bestrahlten NaCl-Probe (aus /VAI 99/)

Zwischen den gemessenen Konzentrationen an molekularen Bestrahlungsprodukten und der gespeicherten Energie sind nunmehr durch viele Ergebnisse folgende **Äquivalenzfaktoren** belegt:

- Gespeicherte Energie: 85 J/g pro mol-% kolloidales Natrium
- Latente Schmelzwärme von Na: 0,47 J/g pro mol-% kolloidales Natrium
- Latente Schmelzwärme von Cl_2 : 0,81 J/g pro mol-% kolloidales Natrium

Mit Hilfe dieser Äquivalenzfaktoren ist eine direkte Umrechnung und ein Vergleich experimenteller Daten zur Strahlenschädigung, die mit verschiedenen Messmethoden ermittelt wurden, möglich.

In relativ wenigen Fällen werden mehrere Messverfahren parallel auf dieselben Proben angewendet. In diesen Fällen zeigt sich im allgemeinen eine Proportionalität zwischen den Mengen an molekularen Bestrahlungsprodukten und der gespeicherten Energie /GAR 96, VAI 99, VAI 01/.

3.2 Neue experimentelle Ergebnisse

3.2.1 Ausmaß der Strahlenschädigung

Quantitative Daten zur Strahlenschädigung von NaCl-Proben wurden in den letzten Jahren im wesentlichen von der Arbeitsgruppe von Prof. den Hartog veröffentlicht. In einigen Fällen ist die Abhängigkeit von der γ -Dosis über einen größeren Dosisbereich systematisch dokumentiert, häufiger wird dagegen der Einfluß eines Parameters, z.B. Temperatur oder Salztyp, auf die Strahlenschädigung bei vereinzelt γ -Dosiswerten untersucht. Allerdings sind die Randbedingungen der Versuche nicht immer vollständig dokumentiert. Mindestvoraussetzung für eine Berücksichtigung von Werten ist, dass neben einem Meßwert zur gespeicherten Energie bzw. zum Anteil von kolloidalem Natrium die Dosis angegeben worden ist.

Aus den Ergebnissen lassen sich folgende generelle Aussagen ableiten:

- In allen Fällen, bei denen die Temperaturabhängigkeit bestimmt wurde, tritt die maximale Strahlenschädigung in einem Temperaturbereich zwischen 80 °C und 120 °C auf. Bei einigen Probenarten, wie z.B. K-dotierten NaCl-Proben oder natürlichen Salzproben, weicht bei höheren Temperaturen die Abhängigkeit der Strahlenschädigung vom üblichen glockenförmigen Verlauf ab, d.h. es tritt auch bei Temperaturen um 150 °C noch eine Strahlenschädigung auf (Tailing) /HAR 96/.
- Je nach Art der Salzprobe hängt die Strahlenschädenbildung in unterschiedlicher Weise von der γ -Dosis ab. Während bei der Bestrahlung von natürlichem Steinsalz aus dem ehemaligen Salzbergwerk Asse eine deutliche Sättigung (Plateaubildung) der Strahlenschädigung mit zunehmender Dosis zu beobachten ist /DON 96/, zeigt sich bei der Bestrahlung von K-dotierten NaCl-Proben bis zu einer Dosis von $3 \cdot 10^9$ Gy ein praktisch linearer Zusammenhang /DUB 00b/.

Im Anhang (Tabelle 3) sind sämtliche quantitative Daten zur Strahlenschädigung von NaCl-Proben, die seit 1996 veröffentlicht wurden, unter Angabe der Originalmesswerte sowie der Datenquelle zusammengestellt. Zusätzlich wurden Daten aus /SEI 94/ aufgenommen, die bisher mit falschen Dosiswerten berücksichtigt wurden. Zum Teil wurden die Werte in den Abbildungen der Veröffentlichungen durch Ausmessen ermittelt. Der resultierende Fehler wird als vergleichsweise gering (kleiner 5%) eingeschätzt. Wurde die Strahlenschädigung bei einer bestimmten Dosis in Abhängigkeit von der

Temperatur untersucht, so wurde jeweils nur der maximale Wert in die Tabelle aufgenommen. Die Berechnung der Strahlenschädigung, d.h. des Anteils an kolloidalem Natrium und der gespeicherten Energie, in Tabelle 3 erfolgte auf der Basis der Originalmesswerte und der oben angegebenen Äquivalenzfaktoren.

In /DUB00a/ weisen die Autoren darauf hin, dass ein neuer Algorithmus zur Ermittlung der Dosisleistung angewendet worden ist, der die Rückstreuung des Elektronenstrahls vom Probenhalter berücksichtigt. Dadurch erhöhen sich sämtliche Dosiswerte um den Faktor zwei. Aus diesem Grunde werden alle Dosisangaben in Veröffentlichungen vor 1999, bei denen als Maximaldosis der Wert $1,5 \cdot 10^9$ Gy angegeben ist, verdoppelt. Die so korrigierten Dosiswerte sind in Tabelle 3 mit einem Sternchen (*) bei der Dosisangabe gekennzeichnet.

Eine Betrachtung der Einzelergebnisse in Tabelle 3 legt die Vermutung nahe, dass in einigen Veröffentlichungen dieselben Ergebnisse aufgeführt sind, so zum Beispiel bei den KBF_4 -dotierten NaCl-Proben in /VAI 99/ Abb. 3a und in /DUB 00b/ Abb.2. Da die Veröffentlichung von 2000 keinen Verweis auf die Arbeit von 1999 enthält, wurden beide Datenreihen aufgenommen. Ganz eindeutig ist die mehrfache Verwendung von Ergebnissen bei einigen Rasterelektronenaufnahmen (/HAR 97/ Abb.1, /HAR 99/ Abb.1 und /VAI 00b/ Abb.3 sind identisch). Auch hier finden sich jeweils keine Verweise auf die früheren Literaturstellen.

Die neuen experimentellen Daten aus Tabelle 3 sind in Abbildung 2 in Abhängigkeit von der γ -Bestrahlungsdosis dargestellt (linke y-Achse = Gespeicherte Energie, rechte y-Achse = Anteil an kolloidalem Natrium). Die durchgezogene Linie stellt die Dosisabhängigkeit der Strahlenschädigung bei einer unterstellten Effizienz der Energiespeicherung von 0,07 % dar. Mit Ausnahme von drei Werten im Niedrigdosisbereich bei $7 \cdot 10^7$ Gy liegen sämtliche Meßwerte unterhalb dieser Linie, unabhängig davon ob es sich um reine NaCl-Proben, um künstlich dotierte NaCl-Kristalle oder um natürliches Steinsalz handelt. Bei Dosiswerten über $4 \cdot 10^8$ Gy erfolgt die Energiespeicherung in allen Fällen mit einer Effizienz von weniger als 0,04 %.

Die neuen quantitativen Daten zur Strahlenschädigung sind in guter Übereinstimmung zu früheren Werten. Bei der Auswertung der bis Ende 1996 bekannten Ergebnisse von entsprechenden Bestrahlungsversuchen mit NaCl-Proben bei hohen γ -Dosen wurde gezeigt /MOE 97, Tabelle 2/, dass in allen Fällen weniger als 0,1 % der in den Proben absorbierten Bestrahlungsenergie in gespeicherte Energie umgewandelt wird.

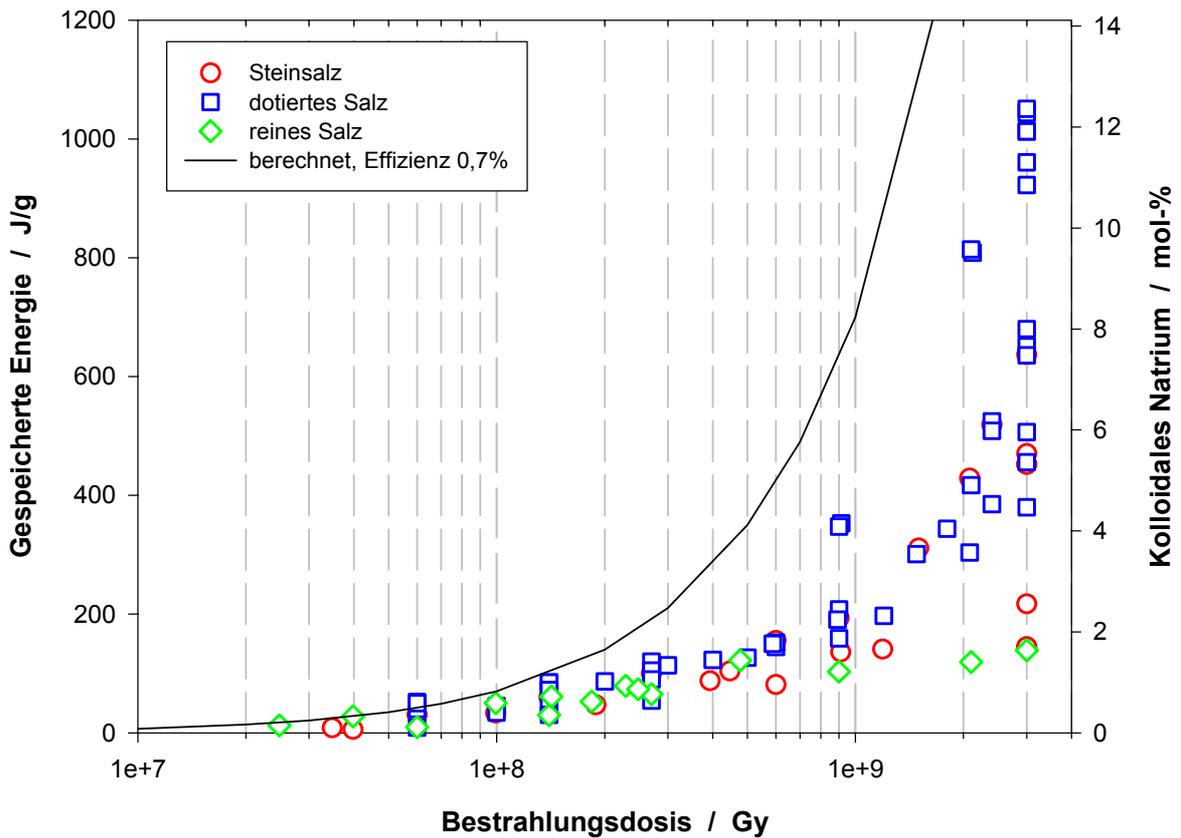


Abb. 2 Dosisabhängigkeit der Energiespeicherung und Strahlenschädigung

Die **Effizienz der Energiespeicherung**, η , stellt einen einfachen, gemeinsamen Bezugspunkt zum Vergleich von experimentellen Ergebnissen zur Strahlenschädigung, die bei unterschiedlichen Dosiswerten ermittelt wurden, dar. Bei diesem Wert wird die gespeicherte Energie, die entweder direkt gemessen worden ist oder aus der Menge an molekularen Bestrahlungsprodukten mit Hilfe der Äquivalenzfaktoren berechnet wird, in Bezug zur absorbierten γ -Strahlungsenergie gesetzt:

$$\eta = \frac{E}{D} \cdot 100000$$

mit:

η = Effizienz der Energiespeicherung, in %

E = gespeicherte Energie, in J/g

D = γ -Bestrahlungsdosis, in Gy = J/kg

Fazit: Bei bestrahlten NaCl-Proben liegt die Effizienz der Energiespeicherung unterhalb von 0,7 %, unabhängig von γ -Dosis, Salztyp und Bestrahlungstemperatur. Damit wird eine wichtige Aussage aus dem Statusbericht von 1997 bestätigt.

3.2.2 Explosive Rückreaktion zwischen Bestrahlungsprodukten

In /HAR 97, VAI 00a, VAI 00b/ sowie auf der Homepage ihres Instituts im Internet (<http://msc.phys.rug.nl>) haben den Hartog und Mitarbeiter eindeutig gezeigt, dass es bei mit hoher γ -Dosis² bestrahlten Salzproben zu einer explosionsartigen Rückreaktion zwischen den im NaCl-Kristallgitter vorhandenen molekularen Bestrahlungsprodukten kommen kann. Dadurch bilden sich in den bestrahlten Salzkristallen unter dem Elektronenmikroskop sichtbare Risse im Mikrometerbereich, deren Anteil und Länge mit steigender Dosis zunimmt. Bei sehr hohen Dosen können die Reaktionen so heftig ablaufen, dass die Kristalle in kleinere Bruchstücke zertrümmert werden. Die explosive Rückreaktion erfolgt entweder

- thermisch induziert während der kalorimetrischen Bestimmung der gespeicherten Energie nach Abschluß der γ -Bestrahlung
- oder spontan während der Bestrahlung selbst unter den herrschenden Bedingungen.

Eine wichtige Voraussetzung für das Auftreten von explosiven Rückreaktionen ist die Bildung von Hohlräumen (engl. voids) durch die Bestrahlung. Bei geringer Strahlenschädigung sind die Hohlräume gleichmäßig verteilt und weisen ein mehr oder weniger rundes Aussehen (Durchmesser ≤ 70 nm) /VAI 97/ auf. Mit zunehmender Strahlenschädigung bei höheren γ -Dosen nimmt die Anzahl der Hohlräume zu, die einzelnen Hohlräume wachsen zunächst /VAI 97/, sie nehmen ein längliches Aussehen an und ordnen sich entlang der kristallographischen $\langle 100 \rangle$ -Achse an /VAI 00b/. Zwischen der Hohlraumgröße und Stabilität von bestrahlten Salzproben besteht eine Korrelation /HAR 97, VAI 99/. Bestimmte Salzproben wie K-dotiertes NaCl oder natürliches Steinsalz, bei denen durch die Bestrahlung Hohlräume mit einem Durchmesser > 100 nm entstehen, zeigen eine höhere Neigung zu explosiven Reaktionen. Bei Salzmaterialien, wie reinem NaCl oder KBF₄-dotiertem NaCl, bei denen nur kleine Hohlraumstrukturen erzeugt werden, zeigen sich weder thermisch-induzierte noch spontane Rückreaktionen.

² Genaue Angaben, welche γ -Bestrahlungsdosen notwendig sind, fehlen in den Veröffentlichungen. Aus dem Textzusammenhang sowie von den in Abbildungen dargestellten Beispielen läßt sich aber ableiten, dass die Dosis $> 10^9$ Gy liegen muß.

Thermisch-induzierte Reaktionen

Lokale thermisch-induzierte Rückreaktionen werden bei manchen Salzproben während der kalorimetrischen Bestimmung der gespeicherten Energie ausgelöst, bei der die Probe schrittweise erwärmt wird. Sobald eine bestimmte Temperatur erreicht wird, z.B. ca. 200 °C, läuft die Reaktion ab und erzeugt im DDK-Signal einen exothermen Spike. Je höher die Strahlenschädigung ist, desto niedriger ist die Temperatur, bei der die ersten Spikes zu beobachten sind. Bei Proben, bei denen Spikes aufgetreten sind, liefert die nachfolgende, bei höheren Temperaturen durchgeführte, Messung der gespeicherten Energie scheinbar einen geringeren Wert für die Strahlenschädigung als die Messung der latenten Schmelzwärme der Natriumkolloide (siehe Abbildung 3). Solche Proben weichen deshalb von der üblichen Linearität zwischen den beiden Messwerten nach unten ab.

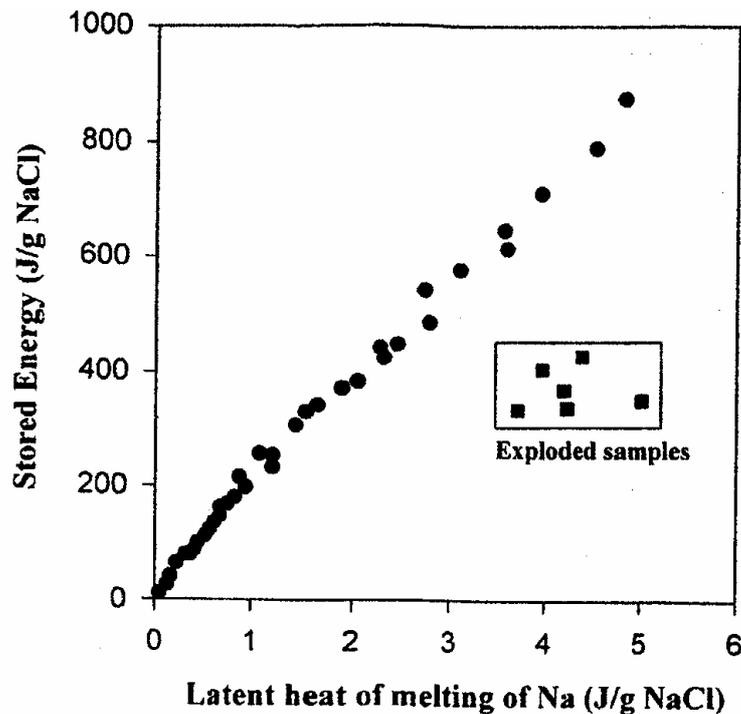


Abb. 3 Abhängigkeit zwischen gespeicherter Energie und latenter Schmelzwärme von Natrium in bestrahlten NaCl-Proben (aus /VAI 00b, TUR 01/)

Wird bei Salzproben, bei denen während der Aufheizphase Spikes auftreten, die Aufheizung nach dem ersten Spike beendet und danach erneut die latente Schmelzwärme der Na-Kolloide bestimmt, liegt der Messwert erheblich niedriger als bei der ersten Messung, oft um bis zu 30 % /VAI 00b/. Ebenso wird eine verringerte latente Schmelz-

wärme des Chlorgases festgestellt. Das Probengewicht verändert sich aber nicht, d.h. es gibt keine gasförmigen Produkte. Dies lässt sich durch eine Rekombinationsreaktion der molekularen Bestrahlungsprodukte zu kristallinem NaCl erklären.

In Abbildung 3 ist zu sehen, dass thermisch induzierte explosionsartige Reaktionen erst auftreten, wenn die latente Schmelzwärme für Natriumkolloide $> 3,5 \text{ J/g}$ ist. Der Wert entspricht mehr als 7,4 mol-% kolloidalem Na bzw. 630 J/g gespeicherter Energie. Um derart hohe Strahlenschädigungen zu erzeugen, sind nach Abb. 2, unabhängig von Salzart bzw. Bestrahlungstemperatur, γ -Dosen von mehr als $1,5 \cdot 10^9 \text{ Gy}$ notwendig.

Spontane Explosionsreaktionen

Nach /HAR 97/ treten spontane Rekombinationsreaktionen bei K-dotierten NaCl-Proben und natürlichen Steinsalzproben bereits während der γ -Bestrahlung, d.h. bei weniger als $100 \text{ }^\circ\text{C}$, auf. Genaue Angaben zu den Bestrahlungsdosen, ab denen solche Reaktionen auftreten, fehlen jedoch. Der Autor des vorliegenden Berichts vermutet, dass es sich um vereinzelte Beobachtungen bei der höchsten Bestrahlungsdosis von $3 \cdot 10^9 \text{ Gy}$ handelt. Für diese Vermutung sprechen folgende Überlegungen:

- Sämtliche REM-Aufnahmen in Veröffentlichungen, in denen durch die explosive Rückreaktion zerstörte Salzkristalle dargestellt sind, zeigen das Ergebnis von thermisch induzierten Reaktionen /VAI 00a,b/ oder von Proben, die mit $3 \cdot 10^9 \text{ Gy}$ bestrahlt wurden /TUR 01, VAI 01/.
- Durch spontane Rückreaktionen während der Bestrahlung sollten sich Abweichungen von der Linearität zwischen Strahlenschädigung und γ -Dosis ergeben, da sie zu einer Verringerung der Menge an molekularen Bestrahlungsprodukten führen. Für K-dotierte NaCl-Proben waren aber in /DUB 00b/ bis zu einer Dosis von $3 \cdot 10^9 \text{ Gy}$ keine ausgeprägte Abweichungen von der Linearität zu beobachten.

Fazit: Die vorgestellten Experimente und Ergebnisse belegen eindeutig, dass explosionsartige Reaktionen bei γ -bestrahlten NaCl-Proben auftreten können. Nach den vorliegenden Daten treten thermisch induzierte Reaktionen erst bei relativ hohen Strahlenschädigungen auf, für die γ -Dosen von deutlich mehr als 10^9 Gy notwendig sind. Gleiches gilt sicherlich für die spontane Rückreaktion, die bereits während der Bestrahlung abläuft.

3.3 Entwicklung von theoretischen Modellen

Die Theorien zur strahleninduzierten Defektaggregation und Kolloidbildung in Alkalihalogeniden können auf der Basis des verwendeten mathematischen Formalismus in verschiedene Kategorien eingeteilt werden, die als makroskopische, mesoskopische und mikroskopische Ansätze bezeichnet werden (siehe auch /MOE 97/).

Die mikroskopischen Theorien betrachten die elementaren Prozesse auf atomarer Ebene. Sie verwenden keine phänomenologischen Parameter, deren Wert nur durch Anpassung ermittelt werden kann, sondern nur fundamentale Defektparameter wie Diffusionsenergien und Wechselwirkungsenergien. In den letzten Jahren wurden derartige Theorien verfeinert und im wesentlichen auf die Beschreibung der Kinetik bei der Metallkolloidbildung während der Aufheizung von bestrahlten CaF_2 - und LiF -Kristallen angewendet /KUZ 98, KOT 98, KOT 01/. Eine Validierung gegenüber experimentellen Daten von bestrahltem NaCl ist bisher nicht erfolgt. Daher werden diese Theorien hier nicht weiter betrachtet.

Die Strahlenschädigung in NaCl -Systemen wurde bisher im wesentlichen mit Theorien beschrieben, die auf dem Jain-Lidiard-Modell bzw. deren Weiterentwicklungen basieren. Eine sehr gute Übersicht über die grundsätzlichen Annahmen und Vorhersagen dieser makroskopischen Modelle sowie einen Vergleich mit experimentellen Daten, ist in /LID 98/ zu finden. Eine wichtige Schlussfolgerung ist, dass der Basissatz der Defektreaktionen im Jain-Lidiard-Modell bestätigt wird. Insbesondere gilt, dass Natriumkolloide im Salz relativ langsam mit zunehmender Dosis wachsen, weil ein kleiner Überschuss von F-Zentren (im Vergleich zu H-Zentren) die Kolloide erreicht, die Rekombination von F-Zentren und H-Zentren das kinetische Verhalten des gesamten Systems bestimmt und Versetzungen und Kolloide Senken sowohl für H-Zentren als auch für F-Zentren darstellen.

Kürzlich haben den Hartog und Kollegen auf der Basis ihrer experimentellen Beobachtungen, insbesondere der zunehmenden Bildung von Hohlraum bzw. Kavitäten im Kristallgitter bei höheren γ -Dosen, ein in wichtigen Einzelreaktionen neuartiges Modell vorgeschlagen /DUB 99a-c, DUB 00a/ und kürzlich modifiziert /DUB 01a-b, TUR 01/. Es kann die Rißbildung in bestrahlten Kristallen ebenso erklären wie die explosive Rückreaktion bei hohen Bestrahlungsdosen bzw. Strahlenschädigungen und wird nachfolgend kurz skizziert.

Der wesentliche Unterschied zu den Modellen, die auf der Jain-Lidiard-Theorie basieren, liegt darin, wie die Entstehung von perfekten Versetzungsringen bei gleichzeitiger Bildung von Chlorgasmolekülen im Kristallgitter bei höheren Bestrahlungsdosen erklärt wird. In den Modellen nach Jain-Lidiard reagieren gemäß /HOB 73/ **zwei** H-Zentren an einem Versetzungskern, wodurch der Versetzungsring um ein stöchiometrisches Zwischengitterpaar verlängert wird, und erzeugen dabei ein stationäres Molekülzentrum, ein Chlorgasmolekül, das sich in einem stöchiometrischen Vakanzenpaar befindet.

Nach dem neuen Modell löst **ein** H-Zentrum an einer Stufenversetzung ein Gitterkation aus seinem Gitterplatz, bildet damit ein stöchiometrisches Zwischengitter-Paar, wodurch ein elektronisches Loch neben einer Kationenfehlstelle, das als V_F -Zentrum bezeichnet wird, entsteht. Beim V_F -Zentrum handelt es sich um einen sekundären Punktdefekt, der ein morphologisches Gegenstück zu einem F-Zentrum darstellt. Schematisch ist die Bildung eines V_F -Zentrums in Abbildung 4 dargestellt.

Die weitere mikrostrukturelle Entwicklung des Systems unter Bestrahlung hängt von der Neigung (engl. bias) der verschiedenen, unterschiedlich großen Defektaggregate zur Absorption von Punktdefekten ab. Eine höhere Neigung bedeutet, dass im zeitlichen Mittel eine größere Anzahl primärer Punktdefekte ein Defektaggregat erreicht. Zur Bildung von V_F -Zentren an einer Stufenversetzung ist z.B. notwendig, dass mehr H-Zentren als F-Zentren die Stufenversetzung erreichen, da letztere zu einer Ausheilreaktion führen. Ähnlich ist zur Bildung von Vakanzenpaaren an der Oberfläche einer Gasblase ein Überschuss von ankommenden F-Zentren erforderlich. So werden sämtliche Reaktionen, die zur Bildung und zum Verbrauch von V_F -Zentren an den verschiedenen Defektaggregaten führen, durch deren Neigung zur Absorption von primären Punktdefekten, d.h. von F- und H-Zentren, gesteuert.

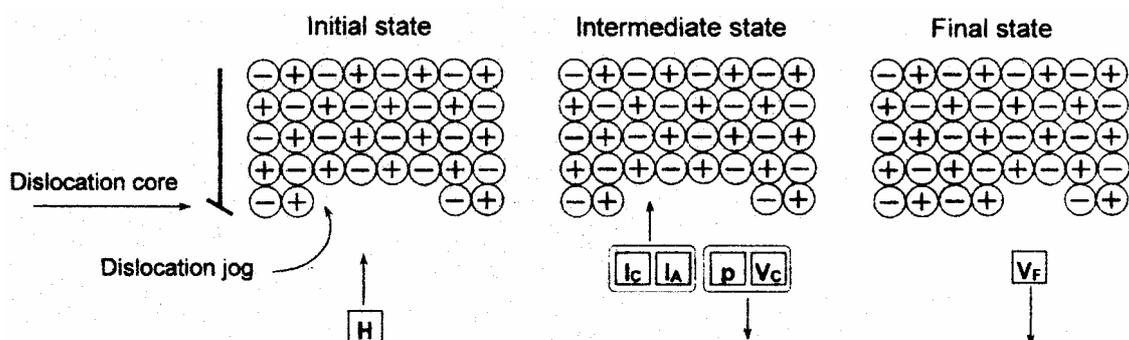


Abb. 4 Bildung eines V_F -Zentrums durch Absorption eines H-Zentrums an einer Stufenversetzung (aus /DUB 00a/)

Die Mobilität von V_F -Zentren und F-Zentren ist ähnlich (die Aktivierungsenergien für die Wanderung im Kristall liegen bei 0,69 eV für V_F -Zentren bzw. 0,8 eV für F-Zentren) und sie ist erheblich kleiner als die Mobilität von H-Zentren ($E_A = 0,1$ eV). Da die Gleichgewichtskonzentration von Punktzentren umgekehrt proportional zur Mobilität ist, sollte die Keimbildung von Chlorgasblasen über die Rekombination zweier V_F -Zentren wesentlich wahrscheinlicher sein als über die Reaktion von zwei H-Zentren. In realen Kristallen können auch Verunreinigungen als Fallen für H-Zentren dienen und so ebenfalls einen Keim bilden. Wenn mehrere H-Zentren auf einen solchen Keim stoßen, so reagieren sie dort miteinander und bilden eine Chlorgasblase, die sich ihren Platz im Kristallgitter unter Bildung eines perfekten Versetzungsringes "herausstanzt" (im Englischen wird dieser Prozess als 'self-interstitial loop punching' bezeichnet). Dieser Prozess entspricht den Vorgängen bei der Bildung von Heliumgasblasen im Kristallgitter von Metallen unter Bestrahlung.

Über in den Veröffentlichungen angegebene Formeln können durchschnittliche Menge und mittlerer Radius der Gasblasen und Natriumkolloidteilchen bei konstanter Versetzungsliniendichte in Abhängigkeit von der Bestrahlungsdosis berechnet werden. Ab einer Dosis von ca. 8 d.p.a.³ (entspricht $1,8 \cdot 10^8$ Gy bei 14 eV bzw. $7,9 \cdot 10^8$ Gy bei 60 eV für die Bildung eines unkorrelierten F-H-Paares) werden danach die Kolloidteilchen so groß, dass der mittlere Abstand zwischen zwei Gasblasen überschritten wird, wodurch es zu einer Reaktion zwischen elementarem Natrium und Chlor zu NaCl kommt /TUR 01/. Die freiwerdende Bildungsenergie wird durch die mittlere Anzahl von Chloratomen in der Gasblase bestimmt, da die Kolloidteilchen eine um zwei Größenordnungen höhere Anzahl von Na-Atomen enthalten. Durch die Aufheizung der Reaktionsprodukte entsteht eine kurzzeitige Druckspitze (im Pikosekunden-Bereich), die ein plastisches Wachstum der Kavität mit den Reaktionsprodukten induzieren kann.

³ Für Modellrechnungen ist eine Angabe der Dosis in der Form des Anteils von versetzten Anionen (d.p.a. = displacements per anion) praktisch, während bei den Experimenten die deponierte Energie pro Masseneinheit (Gy = J/kg) gemessen wird. Zur Umrechnung zwischen beiden Dosiswerten wird ein Energiewert für die Bildung eines unkorrelierten Paares von F- und H-Zentren benötigt. In /TUR 01/ und /DUB 01a/ wird offenbar ein Wert von 14 eV verwendet, während in den meisten früheren Veröffentlichungen von den Hartog und Kollegen (z.B. /DUB 00a, DUB 99b/) der Wert von 60 eV benutzt wird. In der ursprünglichen Jain-Lidiard-Theorie wurde ein Wert von 15 eV verwendet /JAI 77, LID 79/, der für KCl gilt, während später ein Wert von 100 eV als für NaCl besser geeignet genannt wird /HUG 89, SOP 93/.

Mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit entstehen dabei Hohlräume, deren Radius einen kritischen Wert überschreiten (bei einer angenommenen Wahrscheinlichkeit von 10^{-3} stimmen die Modellvorhersagen mit der experimentell beobachteten Bildungsrate überein /DUB 01a/). In früheren Arbeiten /DUB 99b, DUB 00a/ wurde die Entstehung der Hohlräume zwar durch einen anderen Teilmechanismus erklärt, als Mindestdosis für die Hohlraumbildung aber auch $4 \cdot 10^8$ Gy angegeben.

Nach ihrer Entstehung können solche Hohlräume im Vergleich zu den Kolloidteilchen rasch durch die Agglomeration von F-Zentren und V_F -Zentren, deren Reaktion stöchiometrische Vakanzpaare erzeugt, weiter wachsen. Der Radius der Hohlräume erreicht schnell 10 nm und nimmt mit steigender Dosis langsam weiter zu, ihre Konzentration liegt in den meisten Experimenten zwei bis vier Größenordnungen niedriger als die berechnete Menge an Kolloidteilchen und Gasblasen.

Nach dem neuen Modell sind die Chlorgasblasen die kleinsten dispers verteilten Defektaggregate mit einer Größe von 1 – 2 nm und einem mittleren Abstand von 5 nm. Ihre mittlere Konzentration liegt um zwei Größenordnungen über der von Kolloidteilchen. Während des Wachstums eines Hohlraumes erfolgt daher recht häufig eine Kollision mit Gasblasen (siehe Abbildung 5), wodurch sich Chlorgas in dem Hohlraum ansammeln kann, bevor dieser auf ein Natrium-Kolloidteilchen stößt.

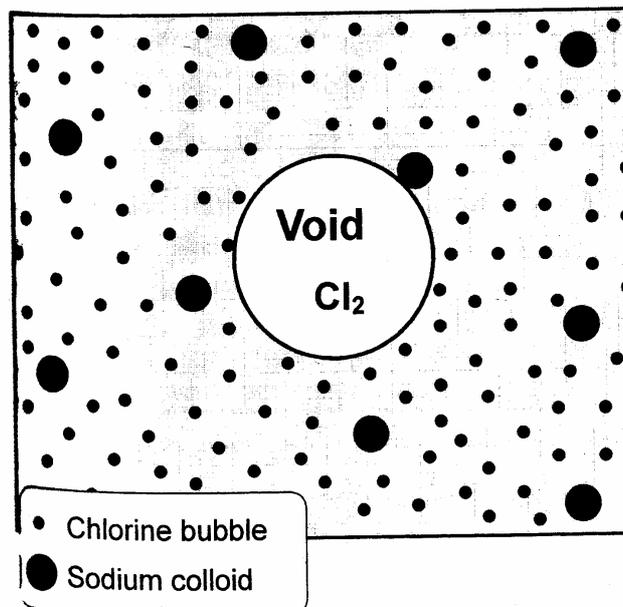


Abb. 5 Verteilung von Chlorgasblasen, Na-Kolloidteilchen und gasgefüllten Hohlräumen in γ -bestrahlten NaCl-Kristallen (aus /DUB 01a/)

Nach /TUR 01/ übersteigt bei einer Dosis von ca. 90 d.p.a. (entspricht $2,1 \cdot 10^9$ Gy bei 14 eV bzw. $8,9 \cdot 10^9$ Gy bei 60 eV für die Bildung eines unkorrelierten F-H-Paares, s.o.) die Ausdehnung der Hohlräume den mittleren Abstand zwischen zwei Natriumkolloidteilchen, der bei ca. 22 nm liegt, so dass es zu einer Reaktion kommt. Diese ist wegen der um ca. zwei Größenordnungen höheren Anzahl von beteiligten Atomen erheblich heftiger als wenn nur eine Chlorgasblase direkt mit einem Kolloidteilchen reagiert hätte. Dadurch kommt es in einem nunmehr wesentlich größeren Reaktionsvolumen zu einem Temperatur- und Druckanstieg, der direkt vom Volumenanteil an Natriumkolloiden, d.h. vom Ausmaß der Strahlenschädigung, abhängt. Bei Überschreiten eines Druckgrenzwertes, der u.a. vom Radius des Hohlraumes bestimmt wird, kann es zur Bildung von Rissen entlang der $\langle 100 \rangle$ -Spaltfläche kommen. Durch den entstehenden Riss können weitere Kolloidteilchen und Chlorgasblasen sofort zum Reaktionsvolumen zutreten, miteinander reagieren und somit den Prozess fortsetzen.

Die Risslänge wird schließlich durch die Geschwindigkeit von zwei konkurrierenden Reaktionen festgelegt /DUB 01b/, der Wärmeerzeugung und der Verteilung dieser Wärme im Kristallgitter. Die Wärmeerzeugung wird durch die Geschwindigkeit, in der Risslänge und Rissdicke zunehmen, bestimmt. Der Druck erhöht sich proportional zur Oberfläche des Risses, seiner Länge und Dicke sowie des Volumenanteils an Natriumkolloiden. Die Wärmeverteilung hängt im wesentlichen von der Wanderungsgeschwindigkeit der Temperaturfront ab, in der Matrixatome unter Energieaufnahme verdampfen, wodurch der Gasdruck gesenkt wird. Das Risswachstum stoppt, sobald der Druck unter den Grenzwert sinkt. Zur Sprengung des Kristalls kommt es, wenn der Prozess der Wärmeerzeugung deutlich überwiegt.

Schematisch sind die Reaktionen zwischen Punktdefekten (F- und H-Zentren) und Defektaggregaten (Na-Kolloiden, Chlorgasblasen, Hohlräumen) nach dem neuen von den Hartog und Kollegen vorgeschlagenen Modell in Abbildung 6 dargestellt. In /DUB 00a/ ist ein vollständiger Satz von Differentialgeschwindigkeitsgleichungen für die Punktdefekte und das Wachstum von Defektaggregaten abgeleitet. Gleichungen für die Zeitabhängigkeit der Rückreaktionen sind in /TUR 01/ zu finden.

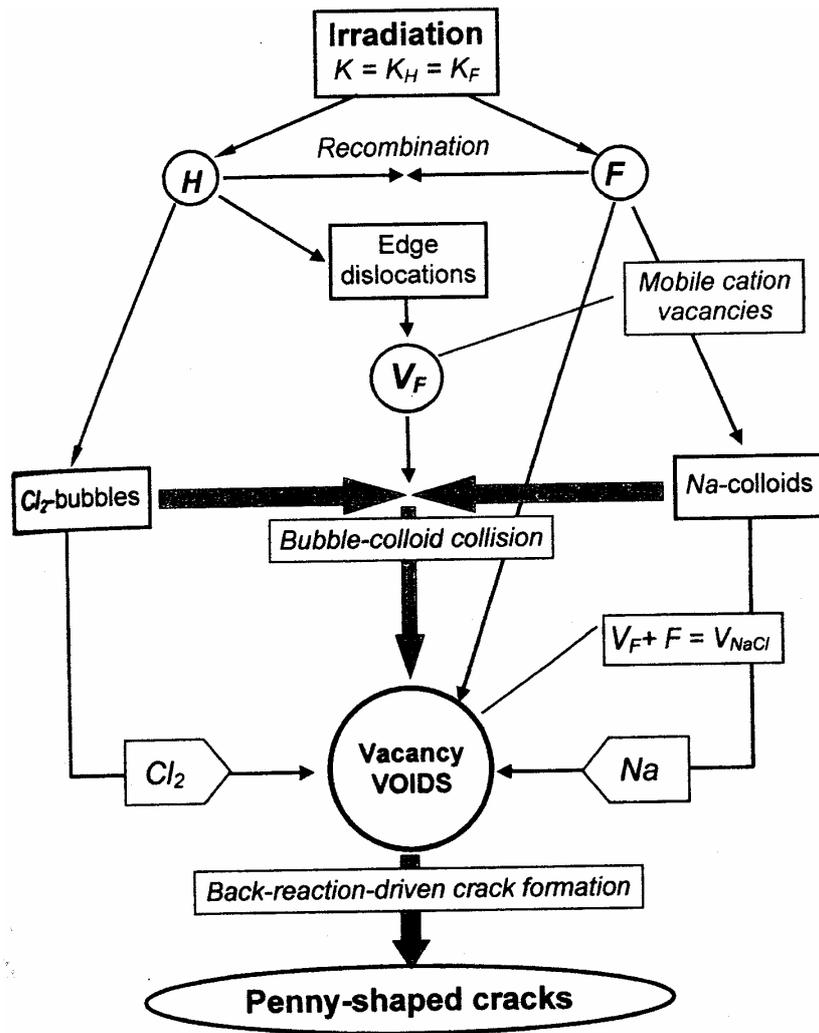


Abb. 6 Neues Reaktionsschema nach /DUB 01a/ für strahleninduzierte Reaktionen zwischen Punktdefekten und Defekttaggregaten

Nach /VOS 99/ kann der Druckgrenzwert, der überschritten werden muss damit es zur Rissbildung kommt, bei Fehlen einer externen Last berechnet werden. Der Grenzdruck nimmt mit zunehmendem Radius ab und liegt für Hohlräume mit einem Radius von 29 nm bei 238 MPa. Dieser Grenzdruck entsteht nach /TUR 01/ in einem Hohlraum erst bei einem Kolloidanteil von ca. 9 % erreicht, wenn die mittlere Dichte an Kolloidteilchen 10^{22} pro m^3 beträgt.

Inwieweit ein äußerer Einspanndruck, der sich bei der Endlagerung durch die Konvergenz des Salzes schnell aufbaut und den tiefenabhängigen Gebirgsdruck erreicht, sich auf die Rissbildung und das Risswachstum auswirkt, ist experimentell bisher nicht untersucht und theoretisch nicht betrachtet worden. Denkbar ist, dass die Rissbildung dadurch behindert wird.

Fazit: Die theoretischen Modelle werden fortlaufend verbessert, die Entwicklung ist noch nicht abgeschlossen. Das neue Modell von den Hartog und Kollegen weist gegenüber den bisherigen Modellen den großen Vorteil auf, dass es die beobachtete Rissbildung und die explosive Rückreaktion konzeptionell erklären kann. Die Prozesse sind somit berechenbar und die Resultate können mit experimentellen Daten überprüft werden. Voraussetzung für die Rissbildung ist die Entstehung von Hohlräumen durch eine lokale Rückreaktion zwischen kolloidalem Natrium und dispers verteilten Chlorgas. Für diese Reaktion sind Bestrahlungsdosen von mindestens $2 \cdot 10^8$ Gy erforderlich, was bereits nahe der maximalen γ -Dosis in einem Endlager liegt. Für die anschließende Bildung von Rissen sind um den Faktor zehn höhere γ -Dosen notwendig.

4 Zusammenfassung

Die seit dem letzten Statusbericht im Jahre 1997 veröffentlichten wissenschaftlichen Studien zur Strahlenschädenbildung in Steinsalz wurden im Hinblick auf mögliche Konsequenzen für eine Endlagerung hochradioaktiver Abfälle in Steinsalzformationen zusammenfassend bewertet. Neue Erkenntnisse zum Ausmass der Strahlenschädenbildung, die Bedeutung der explosiven Rückreaktion von molekularen Bestrahlungsprodukten und der Stand der Modellentwicklung zur Strahlenschädenbildung waren dabei zentrale Punkte. Es ergaben sich folgende Ergebnisse:

- Die neuen quantitativen Daten zur Strahlenschädigung sind in guter Übereinstimmung mit früheren Werten und Aussagen aus dem Statusbericht von 1997. Bei bestrahlten NaCl-Proben liegt die Effizienz der Energiespeicherung unterhalb von 0,7 %, unabhängig von γ -Dosis, Salztyp und Bestrahlungstemperatur.
- Explosionsartige Reaktionen, die zur Rissbildung im Kristall oder zur Sprengung des Kristalls führen, können bei bestrahlten NaCl-Proben thermisch-induziert oder spontan auftreten. Dazu sind aber relativ hohe Strahlenschädigungen notwendig, die erst bei γ -Dosen von mehr als 10^9 Gy auftreten.
- Die theoretischen Modelle werden weiter fortlaufend verbessert. Kürzlich haben den Hartog und Kollegen ein neuartiges Modell entwickelt, das in wichtigen Einzelreaktionen von den erweiterten makroskopischen Theorien nach Jain und Lidiard abweicht. Damit können – besser als mit den bisherigen Modellen – das mit zunehmender γ -Dosis beobachtete Wachstum von Hohlräumen im Kristallgitter, die Bildung von Rissen und letztlich die Sprengung der Kristalle bei hohen Strahlenschädigungen konzeptionell erklärt werden. Auslöser der Prozesse ist jeweils die Reaktion zwischen Chlorgasmolekülen und metallischen Natriumkolloiden.
- Die Vorhersagen und Schlußfolgerungen nach dem neuen Modell stimmen mit experimentellen Beobachtungen überein. Für die Bildung von Hohlräumen sind Bestrahlungsdosen von mindestens $2 \cdot 10^8$ Gy notwendig, Risse mit einer Ausdehnung von $>1 \mu\text{m}$ entstehen in bestrahlten NaCl-Proben erst bei deutlich mehr als 10^9 Gy.

Nachfolgend werden die Auswirkungen der Befunde auf eine Endlagerung von hochradioaktiven Abfällen im Salz behandelt. Als Randbedingung wird dabei die in /MOE 97/ ermittelte maximale γ -Dosis von $3 \cdot 10^8$ Gy in einem Endlager verwendet, von der 90 % in den ersten 200 Jahren nach der Einlagerung im Salz deponiert werden. In

diesem Zeitraum liegen die Temperaturen in Bohrlochnähe jeweils in der Nähe des Maximalwertes für das unterstellte Szenario und die betrachtete Längsposition und ändern sich in radialer Richtung kaum. Die Maximaldosis tritt allerdings nur am Bohrlochrand auf und nimmt mit zunehmendem radialem Abstand exponentiell ab (Abschwächungslänge = 6,5 cm, d.h. in 15 cm Abstand vom Bohrloch liegt die Dosis bei 10 % der Maximaldosis).

Eine vereinfachte Abschätzung der maximalen Strahlenschädigung bei der Endlagerung hochradioaktiver Abfälle kann auf der Basis des ermittelten Grenzwertes von 0,7 % für die Effizienz der Energiespeicherung vorgenommen werden. Damit ergibt sich eine Obergrenze für die Energiespeicherung von 210 J/g, dies entspricht einer Menge an kolloidalem Natrium von < 2,5 %. Der Wert liegt bei einem Drittel der Strahlenschädigung, die notwendig ist, um eine thermisch induzierte Explosionsreaktion auszulösen und ca. bei einem Viertel des Wertes, der für die Rissbildung als Vorläuferstufe einer spontanen Explosionsreaktion erforderlich ist.

Ein direkter Vergleich der Dosiswerte, die bei Laborbestrahlungen zur Entstehung bestimmter Effekte notwendig sind, mit der Gesamtdosis in einem Endlager liefert ein ähnliches Ergebnis. Für die Bildung von Hohlräumen sind Bestrahlungsdosen von mindestens $2 \cdot 10^8$ Gy erforderlich, für die anschließende Bildung von Rissen sind um den Faktor zehn höhere γ -Dosen notwendig.

Vor diesem Hintergrund kann gefolgert werden, dass es in unmittelbarer Nähe der Abfälle zur strahleninduzierten Bildung von Hohlräumen im Steinsalz kommen kann. Die Entstehung von Rissen im Salz oder sogar weitreichende Explosionsreaktionen sind dagegen aus heutiger Sicht nicht zu erwarten.

Unberücksichtigt bleibt bei dieser Schlußfolgerung der Einfluß der Dosisleistung auf die Bildung von Strahlenschäden, die bei der Endlagerung hochradioaktiver Abfälle um etwas mehr als drei Größenordnungen niedriger als bei den Laborbestrahlungen liegt. Modellrechnungen zeigen, dass sich bei geringerer Dosisleistung das Temperaturintervall, in dem es zur Bildung von Strahlenschäden kommt, zu tieferen Temperaturen verschiebt, die Kolloidwachstumsrate aber gleich bleibt /DUB 00b/. Der Einfluß der niedrigeren Dosisleistung auf die Strahlenschädenbildung in einem Endlager ist daher wahrscheinlich gering und verändert nicht die generellen Schlußfolgerungen in diesem Bericht. Um diese Aussage weiter zu untermauern, könnten wie in /MOE 97/ Modellrechnungen zur Strahlenschädenbildung mit dem neuen Modell von den Hartog und

Kollegen unter Berücksichtigung der zeitlichen Änderung der Temperatur und Dosisleistung durchgeführt werden, was allerdings mit einem erheblichen zusätzlichen Aufwand verbunden wäre.

Obwohl die oben angeführten Argumente gegen eine strahleninduzierte Rissbildung im Salz eines Endlagers sprechen, werden nachfolgend die möglichen Auswirkungen eines solchen Vorgangs näher betrachtet. Sollte es tatsächlich zur Entstehung eines Risses kommen, wäre die räumliche Ausdehnung sehr begrenzt. Nach den Modellvorstellungen kommt es zur Propagation eines Risses, wenn durch die Schaffung neuen Hohlraumes weitere Natriumkolloidteilchen und Chlorgasblasen zum Reaktionsvolumen hinzutreten. Voraussetzung für die Rissfortpflanzung ist, dass der Druck im Reaktionsvolumen nicht unter den Grenzwert sinkt. Die Rate der Wärmeerzeugung muss dafür ausreichend hoch sein, um dem konkurrierenden Vorgang der Abkühlung entgegenzuwirken. Dazu muss die Strahlenschädigung, d.h. die mittlere Konzentration und der Volumenanteil an Chlorgasblasen und Natriumkolloiden, ähnlich hoch sein, wie an dem Ort, an dem das Risswachstum eingesetzt hat. Da sich aber die Dosis im Salz mit zunehmendem radialen Abstand von den radioaktiven Abfällen verringert, nehmen auch die Konzentrationen der molekularen Bestrahlungsprodukte in radialer Richtung schnell ab. Das Risswachstum käme deshalb sehr bald aufgrund des mangelnden Nachschubs von molekularen Bestrahlungsprodukten zum Erliegen. Zusätzlich ist zu berücksichtigen, dass bei der Endlagerung im Salinar durch die Konvergenz des Salzes im Temperaturfeld der wärmeentwickelnden Abfälle Hohlräume schnell geschlossen werden und sich ein hoher äußerer Druck auf das Steinsalz einstellt, der hemmend auf die Rissbildung wirken sollte.

Im Ergebnis liefert die Bewertung der wissenschaftlichen Studien seit 1997 viele interessante neue Details, die zu einem vertieften Verständnis der komplexen Abläufe bei der radiolytischen Bildung von Strahlenschäden im Salz führen. Aus heutiger Sicht sind aber nach Ansicht des Autors keine Abstriche an der allgemeinen Aussage des Statusberichtes von 1997 notwendig, nach der die in einem Endlager auftretende Strahlenschädigung hinsichtlich der Langzeitauswirkungen unbedenklich ist und keine Auswirkungen auf die Integrität der geologischen Barriere zu erwarten sind.

5 Literaturverzeichnis

5.1 Neue Literatur

- /ADU 98/ Aduiev, B.P., Aluker, E.D., Belokurov, G.M. und Shvayko, V.N.: Radiation-stimulated conductivity of some alkali halides induced by 50 ps electron pulse irradiation. – *Phys. Stat. Sol.* **208**, 137 – 143, 1998.
- /CHE 98/ Cherkasov, F.G., Mustafin, R.G., Lvov, S.G., Khaibullin, R.I., den Hartog, H.W., Vainshtein, D.I. und Vitol, A.Y.: Formation of the sodium 1-D structures in doped NaCl by high energy electron irradiation. – *Vacuum* **51**, 239 - 243, 1998.
- /DON 96/ Donker, A. und García Celma, A.: Saturation of radiation damage in natural rock salt irradiated at moderate dose rate. – *Rad. Eff. Def. Solids* **139**, 241 – 252, 1996.
- /DUB 99a/ Dubinko, V.I., Turkin, A.A., Vainshtein, D.I. und den Hartog, H.W.: New formulation of the modeling of radiation-induced microstructure evolution in alkali halides. – *Radiat. Eff. Def. Solids* **150**, 145 - 149, 1999.
- /DUB 99b/ Dubinko, V.I., Turkin, A.A., Vainshtein, D.I. und den Hartog, H.W.: A new mechanism for radiation damage processes in alkali halides. – *Jour. Appl. Phys.* **86**, 5957 – 5960, 1999.
- /DUB 99c/ Dubinko, V.I., Turkin, A.A., Vainshtein, D.I. und den Hartog, H.W.: Modeling of the radiation-induced microstructural evolution in ionic crystals. – *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **153**, 163 - 166, 1999.
- /DUB 00a/ Dubinko, V.I., Turkin, A.A., Vainshtein, D.I. und den Hartog, H.W.: Theory of the late stage of radiolysis of alkali halides. – *Jour. Nucl. Materials* **277**, 184 - 198, 2000.

- /DUB 00b/ Dubinko, V.I., Turkin, A.A., Vainshtein, D.I. und den Hartog, H.W.: Effect of dose rate, temperature and impurity content on the radiation damage in the electron irradiated NaCl crystals. – *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **166-167**, 561 - 567, 2000.
- /DUB 01a/ Dubinko, V.I., Turkin, A.A., Vainshtein, D.I. und den Hartog, H.W.: New mechanism for radiation defect production and aggregation in crystalline ceramics. – *Jour. Nucl. Materials* **289**, 86 - 95, 2001.
- /DUB 01b/ Dubinko, V.I., Turkin, A.A., Vainshtein, D.I. und den Hartog, H.W.: Diffusion plus explosion mechanism of void-crack transition in irradiated NaCl. – *Radiat. Eff. Def. Solids* **156**, 27 - 31, 2001.
- /GAL 99/ Galiy, P.V.: The radiation defect accumulation in scintillative crystals of caesium halides under intense electron beam irradiation. – *Radiat. Measurements* **30**, 41 – 50, 1999.
- /GE 98/ Ge, Y-C.: Optical absorption study on the annealing behaviour of metallic colloids in KCl:K crystals. – *Spectroscopy Letters* **31**, 123 – 134, 1998.
- /HAR 96/ den Hartog, H.W., Groote, J.C. und Weerkamp, J.R.W.: Stored energy in irradiated NaCl. – *Radiat. Eff. Def. Solids* **139**, 1 - 19, 1996.
- /HAR 97/ den Hartog, H.W., Vainshtein, D.I.: Explosive phenomena in heavily irradiated NaCl. – *Mater. Sci. Forum* **239-241**, 611 - 614, 1997.
- /HAR 99/ den Hartog, H.W.: Stored energy of heavily irradiated NaCl. – *Radiat. Eff. Def. Solids* **150**, 167 - 172, 1999.
- /HUI 98/ Huisinga, M., Bouchaala, N., Bennewitz, R., Kotomin, E.A., Reichling, M., Kuzovkov, V.N., und von Niessen, W.: The kinetics of CaF₂ metallization induced by low-energy electron irradiation. – *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **141**, 79 - 84, 1998.
- /KAN 97/ Kanert, O., Schmidt, C., Kuchler, R. und den Hartog, H.W.: Study of sodium colloids in heavily irradiated NaCl crystals by nuclear magnetic resonance. – *Ber. Bunsen-Ges. Phys. Chem.* **101**, 1286 - 1290, 1997.

- /KLE 01/ Klempt, T., Schweizer, S., Schwartz, K., Kanert, O., Suter, D., Rogulis, U. und Spaeth, J.-M.: Magnetic resonance investigation of F centers in LiF caused by ionizing radiation. – *Radiat. Eff. Def. Solids* **155**, 159 – 163, 2001.
- /KOT 98/ Kotomin, E.A. und Kuzovkov, V.N.: The microscopic theory of diffusion-controlled defect aggregation. – *Comput. Mater. Sci.* **10**, 22 – 37, 1998.
- /KOT 01/ Kotomin, E.A., Kuzovkov, V.N. und Popov, A.I.: The kinetics of defect aggregation and metal colloid formation in ionic solids under irradiation. – *Radiat. Eff. Def. Solids* **155**, 113 – 125, 2001.
- /KUZ 97/ Kuzovkov, V.N. und Kotomin, E.A.: Theory of diffusion-controlled colloid formation in irradiated solids. – *Solid State Ionics* **101**, 451 - 455, 1997.
- /KUZ 98/ Kuzovkov, V.N., Kotomin, E.A. und von Niessen, W.: Discrete-lattice theory for Frenkel-defect aggregation in irradiated ionic solids. – *Phys. Rev. B* **58**, 8454 – 8463, 1998.
- /LID 98/ Lidiard, A.B.: The radiolysis of alkali halides - the nucleation and growth of aggregates. – *Z. Phys. Chem.* **206**, 219 - 248, 1998.
- /MAR 98/ Mariani, D.F., Gonzalez, F. und de Castro, M.J.: Ionizing radiation effects on the ionic conductivity of NaCl. – *Physica B*, **245**, 219 - 224, 1998.
- /TUR 01/ Turkin, A.A., Dubinko, V.I., Vainshtein, D.I. und den Hartog, H.W.: Kinetics of back reaction between radiolytic products initiated by radiation-induced voids in NaCl. – *Journal of Physics - Condensed Matter* **13**, 203 - 216, 2001.
- /VAI 96/ Vainshtein, D.I. und den Hartog, H.W.: ESR study of Na-colloids in heavily irradiated NaCl: Size effects and inter-precipitate interactions. – *Appl. Radiat. Isot.* **47**, 1503 – 1507, 1996.
- /VAI 97/ Vainshtein, D.I., Altena, C. und den Hartog, H.W.: Evidence of void formation in heavily irradiated NaCl. – *Mater. Sci. Forum* **239-241**, 607 - 610, 1997.

- /VAI 99/ Vainshtein, D.I., Dubinko, V.I., Turkin, A.A. und den Hartog, H.W.: Void formation in heavily irradiated NaCl. – *Radiat. Eff. Def. Solids* **150**, 173 - 177, 1999.
- /VAI 00a/ Vainshtein, D.I., Dubinko, V.I., Turkin, A.A. und den Hartog, H.W.: Effect of the void formation on the explosive fracture of electron irradiated NaCl crystals. – *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **166-167**, 550 - 555, 2000.
- /VAI 00b/ Vainshtein, D.I., und den Hartog, H.W.: Explosive decomposition of heavily irradiated NaCl. – *Radiat. Eff. Def. Solids* **152**, 23 - 37, 2000.
- /VAI 01/ Vainshtein, D.I., den Hartog, H.W., Dubinko, V.I. und Turkin, A.A.: Critical parameters controlling mechanical stability of NaCl under irradiation. – *Radiat. Eff. Def. Solids* **156**, 51 - 57, 2001.
- /ZHA 97/ Zhao, C.Z., Ge, Y-C. und Gao, W.G.: Optical absorption study on the annealing behaviour of alkali colloids in KCl:Na crystals. – *Spectroscopy Letters* **30**, 163 – 171, 1997.

5.2 Weitere Literatur

- /GAR 96/ Garcia Celma, A. und Donker, H.: The effects of gamma radiation in salt. – EUR Report 16743 EN, 1996.
- /GIE 93/ Gies, H., Hild, W., Kühle, Th. und Mönig, J.: Strahleneffekte im Steinsalz - Statusbericht. – GSF-Bericht 9/93, GSF Neuherberg, 1993.
- /HOB 73/ Hobbs, L.W., Hughes, A.E. und Pooley, D.: A study of interstitial clusters in irradiated alkali-halides using direct electron microscopy. – *Proc. Royal Soc. A* **332**, 167 – 185, 1973.
- /HUG 89/ Hughes, A.E. und Lidiard, A.B.: The growth of colloids in irradiated NaCl. – Harwell Report AERE-R 13319, 1989.
- /JAI 77/ Jain, U. und Lidiard, A.B.: The growth of colloid centers in irradiated alkali halides. – *Phil. Mag.*, **35**, 245-259, 1977.

- /LID 79/ Lidiard, A.B.: Energy stored in irradiated NaCl. – *Phil. Mag.*, **A39**, 647-659, 1979.
- /MOE 97/ Mönig, J.: Realistische Abschätzung der Strahlenschädigung von Steinsalz bei Einlagerung von HAW in Bohrlöchern. – GRS-142, 1997
- /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**, 325 - 339, 1992.
- /SEI 94/ Seinen, J., Weerkamp, J.R.W., Groote, J.C. und den Hartog, H.W.: Radiation damage in NaCl. III. Melting phenomena of sodium colloids. – *Phys. Rev.* **50**, 9793 - 9797, 1994.
- /SOP 93/ Soppe, W.J.: Computer simulation of radiation damage in NaCl using a kinetic rate reaction model. – *J. Phys.: Condens. Matter* **5**, 3519-3540, 1993.
- /SOP 94/ Soppe, W.J. und Prij, J.: Kinetic model calculations of colloid growth in NaCl. – *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, **B 91**, 92-96, 1994.
- /VOS 99/ Voskoboinikov, R.E.: Degradation of mechanical properties of structural reactor materials induced by formation of stress concentrators. – *Jour. Nucl. Materials* **270**, 309 – 314, 1999.

6 Anhang

Tabelle 3 Neue quantitative Daten zur Strahlenschädigung von NaCl-Proben

| γ -Dosis [MGy] | Temp. [°C] | Original-Messwert | | berechnete Strahlenschädigung Gesp. Energie [J/g] | Na-Kolloidanteil [%] | NaCl-Typ | Datenquelle |
|--------------------------|---------------|-------------------|-----------|---|-------------------------|----------------------------------|----------------------|
| | | Zahl | Messung** | | | | |
| 100* | 120 | 0,25 | LHM Na | 45,2 | 0,53 | K-dotiert(0,1%) | /SEI 94/ Abb. 1 u. 2 |
| 200* | 110 | 0,48 | | 86,8 | 1,02 | | /SEI 94/ Abb. 1 u. 2 |
| 300* | 100 | 0,63 | | 113,9 | 1,34 | | /SEI 94/ Abb. 1 u. 2 |
| 400* | 100 | 0,68 | | 123,0 | 1,45 | | /SEI 94/ Abb. 1 u. 2 |
| 500* | 100-130 | 0,70 | | 126,6 | 1,49 | | /SEI 94/ Abb. 2 |
| 600* | 100 | 0,80 | | 144,7 | 1,70 | | /SEI 94/ Abb. 1 u. 2 |
| 1200* | 100 | 1,09 | | 197,1 | 2,32 | | /SEI 94/ Abb. 1 |
| 2400* | 100 | 2,13 | | 385,2 | 4,53 | | /SEI 94/ Abb. 1 |
| 3000* | 100 | 2,80 | | 506,4 | 5,96 | | /SEI 94/ Abb. 3 |
| 100* | 120 | 0,189 | LHM Na | 34,2 | 0,40 | K-dotiert(0,1%) | /VAI 96/ Abb. 2 |
| 3000* | 120 | 5,10 | LHM Na | 922,3 | 10,85 | KBF ₄ -dotiert(0,03%) | /VAI 96/ Abb. 3 |
| 35 | 100 | 8 | SE | | 0,10 | Steinsalz, Asse | /DON 96/ Abb. 5 |
| 40 | | 6 | | | 0,07 | | |
| 100 | | 33 | | | 0,39 | | |
| 190 | | 47 | | | 0,56 | | |
| 390 | | 88 | | | 1,03 | | |
| 450 | | 104 | | | 1,23 | | |
| 900 | | 136 | | | 1,60 | | |
| 1200 | | 141 | | | 1,66 | | |
| 25 | 100 | 13 | SE | | 0,15 | reines NaCl, Harshaw | /DON 96/ Abb. 5 |
| 40 | | 28 | | | 0,33 | | |
| 100 | | 50 | | | 0,59 | | |
| 140 | | 61 | | | 0,72 | | |
| 230 | | 79 | | | 0,93 | | |

| γ-Dosis [MGy] | Temp. [°C] | Original-Messwert | | berechnete Strahlenschädigung | | NaCl-Typ | Datenquelle |
|------------------|---------------|-------------------|-----------|-------------------------------|-------------------------|-----------------------------------|----------------------------------|
| | | Zahl | Messung** | Gesp. Energie [J/g] | Na-Kolloidanteil [%] | | |
| 250 | | 74 | | | 0,87 | | |
| 480 | | 122 | | | 1,44 | | |
| 60* | ~100 | 10 | SE | | 0,12 | reines NaCl | /HAR 96/ Abb. 2 |
| 140* | | 30 | | | 0,35 | | /HAR 96/ Abb. 2, /HAR 99/ Abb. 6 |
| 184* | | 53 | | | 0,62 | | /HAR 96/ Abb. 1 |
| 270* | | 65 | | | 0,76 | | /HAR 96/ Abb. 2 |
| 60* | ~100 | 45 | SE | | 0,53 | K-dotiert(0,1%) | /HAR 96/ Abb. 3 |
| 140* | | 85 | | | 1,00 | | /HAR 96/ Abb. 3, /HAR 99/ Abb. 2 |
| 270* | | 120 | | | 1,41 | | /HAR 96/ Abb. 3 |
| 140* | 140 | 50 | SE | | 0,59 | K-dotiert | /HAR 96/ Abb. 3, /HAR 99/ Abb. 2 |
| 60* | ~105 | 50 | SE | | 0,59 | Li-dotiert(0,05%) | /HAR 96/ Abb. 4 |
| 140* | ~100 | 72 | | | 0,85 | | /HAR 96/ Abb. 4 |
| 270* | ~95 | 90 | | | 1,06 | | /HAR 96/ Abb. 4 |
| 60* | ~115 | 9 | SE | | 0,11 | Br-dotiert(0,1%) | /HAR 96/ Abb. 5 |
| 140* | ~110 | 30 | | | 0,36 | | /HAR 96/ Abb. 5 |
| 270* | ~110 | 54 | | | 0,64 | | /HAR 96/ Abb. 5 |
| 60* | ~110 | 52 | SE | | 0,61 | MnCl ₂ -dotiert(0,2%) | /HAR 96/ Abb. 6 |
| 140* | ~100 | 85 | | | 1,00 | | /HAR 96/ Abb. 6, /HAR 99/ Abb. 2 |
| 270* | ~100 | 100 | | | 1,18 | | /HAR 96/ Abb. 6 |
| 60* | ~115 | 40 | SE | | 0,47 | KBF ₄ -dotiert(0,1%) | /HAR 96/ Abb. 7 |
| 140* | ~105 | 70 | | | 0,82 | | |
| 270* | ~105 | 105 | | | 1,24 | | |
| 60* | ~115 | 30 | SE | | 0,35 | natürliches Salz | /HAR 96/ Abb. 8 |
| 140* | ~105 | 60 | | | 0,71 | | |
| 270* | ~105 | 100 | | | 1,18 | | |
| 3000* | 90 | 2,60 | LHIM Na | 470,2 | 5,53 | natürliches Salz (Niederlande) | /HAR 97/ Abb. 3 |

| γ-Dosis [MGy] | Temp. [°C] | Original-Messwert | | berechnete Strahlenschädigung | | NaCl-Typ | Datenquelle |
|------------------|---------------|-------------------|-----------|-------------------------------|-------------------------|----------------------------------|--|
| | | Zahl | Messung** | Gesp. Energie [J/g] | Na-Kolloidanteil [%] | | |
| 3000* | 70 | 2,50 | LHM Na | 452,1 | 5,32 | Steinsalz | /VAI 99/ Abb. 1 |
| 3000* | 140 | 0,80 | LHM Na | 144,7 | 1,70 | Steinsalz | /VAI 99/ Abb. 1 |
| 600* | 100 | 0,86 | LHM Na | 155,5 | 1,83 | Steinsalz | /VAI 99/ Abb. 3a |
| 900* | | 1,07 | | 193,5 | 2,28 | | |
| 1500* | | 1,72 | | 311,1 | 3,66 | | |
| 2080* | | 2,37 | | 428,6 | 5,04 | | |
| 2400* | | 2,87 | | 519,0 | 6,11 | | |
| 3000* | 3,52 | 636,6 | 7,49 | | | | |
| 912* | 100 | 1,95 | LHM Na | 352,7 | 4,15 | KBF ₄ -dotiert(0,03%) | /VAI 99/ Abb. 3a |
| 2120* | | 4,47 | | 808,4 | 9,51 | | |
| 3000* | | 5,77 | | 1043,5 | 12,28 | | |
| 3000* | | 5,60 | | 1012,8 | 11,91 | | |
| 900* | 100 | 0,88 | LHM Na | 159,2 | 1,87 | K-dotiert(0,1%) | /VAI 99/ Abb. 3a |
| 2080* | | 1,68 | | 303,8 | 3,57 | | |
| 3000* | | 2,52 | | 455,7 | 5,36 | | |
| 3000* | | 3,60 | | 651,1 | 7,66 | | |
| 600 | k.A.*** | 0,84 | LHM Na | 151,9 | 1,79 | K-dotiert(0,1%) | /VAI 00a/ Abb. 4 |
| 900 | | 1,15 | | 208,0 | 2,45 | | |
| 1800 | | 1,90 | | 343,6 | 4,04 | | |
| 2400 | | 2,90 | | 524,5 | 6,17 | | |
| 3000 | | 5,31 | | 960,7 | 11,30 | | |
| 3000 | k.A. | 2,10 | LHM Na | 379,8 | 4,47 | KBF ₄ -dotiert(0,03%) | /VAI 00a/ Abb. 4 |
| 3000 | | 5,60 | | 1012,8 | 11,91 | | |
| 3000* | 100 | 680 | SE | | 8,00 | K-dotiert | /VAI 00b/ Abb. 1 |
| 600 | 100 | 0,45 | LHM Na | 81,4 | 0,96 | Steinsalz | /VAI 00a/ Abb. 3, /TUR 01/ Abb.1 /DUB 01b/ Abb. 1 |
| 3000 | 100 | 0,80 | LHM Na | 144,7 | 1,70 | Steinsalz | /VAI 00a/ Abb. 3, /TUR 01/ Abb.1 |

| γ-Dosis [MGy] | Temp. [°C] | Original-Messwert | | berechnete Strahlenschädigung Gesp. Energie [J/g] | Na-Kolloidanteil [%] | NaCl-Typ | Datenquelle |
|------------------|---------------|-------------------|-----------|---|-------------------------|----------------------------------|--|
| | | Zahl | Messung** | | | | |
| 3000 | 100 | 1,20 | LHM Na | 217,0 | 2,55 | Steinsalz | /DUB 01b/ Abb. 1 /VAI 00a/ Abb. 3, /TUR 01/ Abb.1 /DUB 01b/ Abb. 1 |
| 3000 | 100 | 2,50 | LHM Na | 452,1 | 5,32 | Steinsalz | /VAI 00a/ Abb. 3, /TUR 01/ Abb.1 /DUB 01b/ Abb. 1 |
| 600 | 100 | 0,83 | LHM Na | 150,1 | 1,77 | K-dotiert(0,1%) | /DUB 00b/ Abb. 2 |
| 900 | | 1,05 | | 190,7 | 2,24 | | |
| 1500 | | 1,66 | | 301,0 | 3,54 | | |
| 2100 | | 2,31 | | 417,1 | 4,91 | | |
| 2400 | | 2,81 | | 508,6 | 5,98 | | |
| 3000 | 3,52 | 635,8 | 7,48 | | | | |
| 900 | 100 | 1,92 | LHM Na | 347,2 | 4,09 | KBF ₄ -dotiert(0,03%) | /DUB 00b/ Abb. 2 |
| 2100 | | 4,50 | | 813,8 | 9,57 | | |
| 3000 | | 5,81 | | 1050,7 | 12,36 | | |
| 900 | 100 | 0,57 | LHM Na | 103,1 | 1,21 | Reines NaCl | /DUB 00b/ Abb. 2 |
| 2100 | | 0,66 | | 119,4 | 1,40 | | |
| 3000 | | 0,77 | | 139,3 | 1,64 | | |

* Dosiswerte wurde um den Faktor 2 erhöht wegen Anmerkung in /DUB00a/, siehe Text

** SE = Stored energy (Gespeicherte Energie), LHM Na= latent heat of melting Na (latente Schmelzwärme des kolloidalen Natriums)

*** k.A. = keine Angabe