

**Neuberechnungen zu den Auswirkungen  
eines auslegungsüberschreitenden Lö-  
sungszutritts in der Schachanlage Asse II -  
Weiterentwicklung der radioökologischen  
Modellierung**

**Fortschreibung des Berichts vom  
16.06.2010**

**Darmstadt, 31.05. 2011**

**Im Auftrag des BMU**

**Vorhaben UM09A03205**

**Unterstützung des BMU bei der Aufsicht über Betrieb  
und Stilllegung der Asse**

**Öko-Institut e.V.**

**Geschäftsstelle Freiburg**

Postfach 17 71

79017 Freiburg, Deutschland

**Hausadresse**

Merzhauser Straße 173

79100 Freiburg, Deutschland

**Tel.** +49 (0) 761 - 4 52 95-0

**Fax** +49 (0) 761 - 4 52 95-88

**Büro Darmstadt**

Rheinstraße 95

64295 Darmstadt, Deutschland

**Tel.** +49 (0) 6151 - 81 91-0

**Fax** +49 (0) 6151 - 81 91-33

**Büro Berlin**

Schicklerstraße 5-7

10179 Berlin, Deutschland

**Tel.** +49 (0) 30 - 40 50 85-0

**Fax** +49 (0) 30 - 40 50 85-388



**Neuberechnungen zu den Auswirkungen  
eines auslegungsüberschreitenden Lö-  
sungszutritts in der Schachanlage Asse II -  
Weiterentwicklung der radioökologischen  
Modellierung**

**Fortschreibung des Berichts vom  
16.06.2010**

**Autoren:**

Dipl.-Phys.	Christian Küppers
Dr.-Ing.	Veronika Ustohalova
Dipl.-Biol.	Mathias Steinhoff

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers (Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit) übereinstimmen.

## Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung.....	1
<b>1 Anlass und Einführung .....</b>	<b>5</b>
<b>2 Überblick zur Vorgehensweise.....</b>	<b>10</b>
<b>3 Modellierung von Transport im Deckgebirge und Strahlenexposition .....</b>	<b>15</b>
3.1 Modellierung der Radionuklidmigration im Deckgebirge unter Berücksichtigung von Löslichkeitsgrenzen und verschiedenen rückhaltenden sowie verzögernden Effekten.....	15
3.1.1 Wirksamkeit von Löslichkeitsgrenzen .....	15
3.1.2 Rührkesselmodell und die Retardationswirkung der Kammern .....	16
3.1.3 Fließsysteme und Transport im Deckgebirge .....	16
3.1.3.1 Transportpfade .....	16
3.1.3.2 Für den Transport relevante Eigenschaften der geologischen Formationen .....	20
3.1.3.3 Druckverhältnisse .....	21
3.1.4 Transportgleichung .....	21
3.1.5 Grundlegende Annahmen für die Berechnungen .....	24
3.1.6 Transportparameter .....	25
3.1.6.1 Porosität und Dichte .....	25
3.1.6.2 Sorptionskoeffizienten und Retardationsfaktor .....	26
3.1.6.3 Abstandsgeschwindigkeiten und Dispersionskoeffizienten.....	29
3.1.7 Gekoppelte Migration von Radionukliden .....	30
3.2 Beschreibung des hier verwendeten Modells zur Berechnung der Strahlenexposition.....	32
3.2.1 Grundlagen .....	32
3.2.2 Expositionsszenarien und Parameter .....	33
3.2.3 Berechnung der Aktivitätskonzentration von Beregnungswasser, Boden, Fischteichwasser und Lebensmitteln.....	36
3.2.4 Berechnung der Strahlenexposition durch Verzehr von Nahrungsmitteln.....	42
3.2.5 Berechnung der Strahlenexposition durch Aufenthalt auf berechneten Flächen .....	46
3.2.6 Umsetzung der Modellierung in ein Computerprogramm .....	47
3.3 Qualitätssicherung des Modells und der Berechnungen .....	48
<b>4 Ergebnisse der Neuberechnung für das Szenario I (GRS-Szenario) .....</b>	<b>50</b>
<b>5 Strahlenexposition unter Berücksichtigung von Löslichkeitsgrenzen und Transportrechnung (Szenario II).....</b>	<b>68</b>
5.1 Variierung der Parameter .....	68

5.2	Berechnungen zum Transport im Deckgebirge - Sensitivität resultierender Aktivitätskonzentrationen bei Variierung der Abstandsgeschwindigkeiten .....	69
5.3	Grundlegende Ergebnisse der Berechnung der Strahlenexposition unter Einbeziehung der Ergebnisse der Transportrechnungen .....	75
5.4	Dosisberechnungen für ausgewählte Rechenfälle .....	78
5.4.1	Mögliche Strahlenexposition im Rechenfall 1 .....	79
5.4.2	Mögliche Strahlenexposition im Rechenfall 2 .....	85
5.4.3	Mögliche Strahlenexposition im Rechenfall 3 .....	89
<b>6</b>	<b>Möglichkeiten des Monitorings in der Umgebung der Asse .....</b>	<b>94</b>
<b>7</b>	<b>Abschätzung von Kollektivdosen nach Freisetzung von kontaminiertem Wasser in die Biosphäre und dessen Nutzung als Trinkwasser .....</b>	<b>98</b>
7.1	Faktoren für die Entwicklung von Szenarien .....	98
7.1.1	Dargebot an Grundwasser und Quellschüttungen .....	98
7.1.2	Heutige und frühere Trinkwassernutzungen .....	100
7.1.3	Abfluss von Oberflächenwasser aus dem Einzugsgebiet des Asse-Höhenzuges über Vorfluter .....	101
7.2	Beschreibung von Szenarien der Freisetzung und Trinkwassernutzung .....	102
7.3	Kollektivdosis bei den beschriebenen Szenarien der Trinkwassergewinnung .....	105
<b>8</b>	<b>Diskussion der berechneten Strahlenexpositionen .....</b>	<b>108</b>
8.1	Ergebnisse der Untersuchungen zum Szenario I .....	108
8.2	Ergebnisse der Untersuchungen zum Szenario II .....	113
<b>9</b>	<b>Diskussion der Berechnungen von Strahlenexpositionen in der früheren Untersuchung der GRS /GRS 2009/ .....</b>	<b>117</b>
	Literaturverzeichnis .....	119
<b>Anhang 1: Zusammenstellung von Daten zur wissenschaftlich belastbaren Abschätzung potentieller Strahlenexpositionen in der Umgebung der Schachanlage Asse II (erstellt vom INE)</b>		
<b>Anhang 2: Radioökologisches Modell zur Berücksichtigung der gekoppelten Migration von Tochternukliden (erstellt von FUGRO-HGN)</b>		

## Tabellenverzeichnis

Tabelle 3-1:	Typische mittlere Mächtigkeiten der hydrogeologischen Einheiten zur Ermittlung der Länge des Transportpfades I und II (basierend auf dem stilisierten Querschnitt aus /Colenco 2006a/ - siehe Abbildung 3.1) .....	19
Tabelle 3-2:	Abgleich der Differenzierung der Gesteinschichten nach /Colenco 2006a/ und /INE 2010/ .....	19
Tabelle 3-3:	Porosität der Gesteinsformationen nach /Colenco 2006a/ in Abhängigkeit von der Teufe .....	25
Tabelle 3-4:	Mittlere Porositäten und entsprechende Dichten der Gesteinsformationen nach /Prinz 1991/ .....	26
Tabelle 3-5:	Mittlere Sorptionskoeffizienten im Deckgebirge nach /INE 2010/ ....	27
Tabelle 3-6:	Berechnete Retardationsfaktoren (dimensionslos) für Gesteine im Deckgebirge .....	27
Tabelle 3-7:	Varierte Werte der aus den Filtergeschwindigkeiten abgeleiteten Abstandsgeschwindigkeiten und entsprechender longitudinaler Dispersionskoeffizienten für eine Dispersionslänge von 10 m .....	30
Tabelle 3-8:	Einteilung der Radionuklide in die Gruppen mit gekoppelter Migration (Gruppe 1) und isolierter Migration (Gruppe 2) .....	32
Tabelle 3-9:	In den Berechnungen für die Referenzpersonen verwendete Verzehrswerten (in kg/a) und Aufenthaltszeiten im Freien (in h/a) .....	35
Tabelle 4-1:	Nuklid- und pfadspezifische Strahlenexposition des Kleinkinds (Alter $\leq 1$ Jahr) in mSv/a (Pu-Inventar: 11,8 kg, Lebensgewohnheiten analog AVV zu § 47 StrlSchV) .....	52
Tabelle 4-2:	Nuklid- und pfadspezifische Strahlenexposition des Erwachsenen in mSv/a (Pu-Inventar: 11,8 kg, Lebensgewohnheiten analog AVV zu § 47 StrlSchV) .....	54
Tabelle 4-3:	Strahlenexposition der einzelnen Referenzpersonen in mSv/a (Pu-Inventar: 11,8 kg, Lebensgewohnheiten analog AVV zu § 47 StrlSchV) .....	56
Tabelle 4-4:	Strahlenexposition der einzelnen Referenzpersonen in mSv/a für die verschiedenen Varianten der Lebensgewohnheiten und des Pu-Inventars .....	57
Tabelle 4-5:	Nuklid- und pfadspezifische Strahlenexposition des Kleinkinds (Alter $\leq 1$ Jahr) in mSv/a für Plutoniumisotope (Pu-Inventar: 28 kg, Lebensgewohnheiten analog AVV zu § 47 StrlSchV) .....	58
Tabelle 4-6:	Nuklid- und pfadspezifische Strahlenexposition des Erwachsenen in mSv/a für Plutoniumisotope (Pu-Inventar: 28 kg, Lebensgewohnheiten analog AVV zu § 47 StrlSchV) .....	59
Tabelle 4-7:	Strahlenexposition der einzelnen Referenzpersonen in mSv/a (Pu-Inventar: 28 kg, Lebensgewohnheiten analog AVV zu § 47 StrlSchV) .....	60
Tabelle 4-8:	Nuklid- und pfadspezifische Strahlenexposition des Kleinkinds (Alter $\leq 1$ Jahr) in mSv/a (Pu-Inventar: 11,8 kg,	

	Lebensgewohnheiten analog Berechnungsgrundlagen Bergbau).....	61
Tabelle 4-9:	Nuklid- und pfadspezifische Strahlenexposition des Erwachsenen in mSv/a (Pu-Inventar: 11,8 kg, Lebensgewohnheiten analog Berechnungsgrundlagen Bergbau).....	62
Tabelle 4-10:	Strahlenexposition der einzelnen Referenzpersonen in mSv/a (Pu-Inventar: 11,8 kg, Lebensgewohnheiten analog Berechnungsgrundlagen Bergbau) .....	64
Tabelle 4-11:	Nuklid- und pfadspezifische Strahlenexposition des Kleinkinds (Alter $\leq 1$ Jahr) in mSv/a für Plutoniumisotope (Pu-Inventar: 28 kg, Lebensgewohnheiten analog Berechnungsgrundlagen Bergbau).....	65
Tabelle 4-12:	Nuklid- und pfadspezifische Strahlenexposition des Erwachsenen in mSv/a für Plutoniumisotope und Am-241 (Pu-Inventar: 28 kg, Lebensgewohnheiten analog Berechnungsgrundlagen Bergbau) .....	66
Tabelle 4-13:	Strahlenexposition der einzelnen Referenzpersonen in mSv/a (Pu-Inventar: 28 kg, Lebensgewohnheiten analog Berechnungsgrundlagen Bergbau) .....	67
Tabelle 5-1:	Rechnungsfälle für die Dosisberechnungen mit ihren Parametervariationen .....	79
Tabelle 6-1:	Radiologische Überwachung von Wasserproben im Einflussbereich der Asse und erreichte Nachweisgrenzen .....	95
Tabelle 7-1:	Quellschüttungen im Bereich des Asse-Höhenzuges aus /Colenco 2006/ .....	99
Tabelle 7-2:	Frühere Grundwasserentnahmen im Bereich des Asse-Höhenzuges nach /Colenco 2006/ .....	100
Tabelle 7-3:	Randbedingungen und Parameter verschiedener Szenarien der Trinkwassernutzung .....	106
Tabelle 7-4:	Kollektivdosis in Sv/a und Krebsfälle pro Jahr bei unterschiedlichen Szenarien der Trinkwassernutzung im Szenario II mit Sorptionskoeffizienten nach /INE 2009/ .....	107

## Abbildungsverzeichnis

Abbildung 3-1: Querprofil 2 durch die Asse im Gebiet des Schachts Asse II (Salzstruktur mit Grubengebäude und Deckgebirge) und den hier untersuchten Pfaden I und II .....	18
Abbildung 3-2: Stilisierter Querschnitt durch das Deckgebirgsmodell mit den hydrogeologischen Einheiten /Colenco 2006b/ .....	20
Abbildung 3-3: Schema einer Schicht mit der Linienquelle .....	24
Abbildung 3-4: Überblick über die berücksichtigten Expositionspfade .....	36
Abbildung 5-1: Zeitlicher Verlauf der Aktivitätskonzentration von Pu-239 in einzelnen Gesteinen, Pfad I, Abstandsgeschwindigkeit $u_a=0,3$ m/a, $D_x=1E-07$ m <sup>2</sup> /s .....	71
Abbildung 5-2: Zeitlicher Verlauf der Aktivitätskonzentration von Pu-239 in einzelnen Gesteinen, Pfad I, Abstandsgeschwindigkeit $u_a=1$ m/a, $D_x=1E-07$ m <sup>2</sup> /s .....	71
Abbildung 5-3: Zeitlicher Verlauf der Konzentration von Pu-240 in einzelnen Gesteinen, Pfad I, Abstandsgeschwindigkeit $u_a=1$ m/a, $D_x=1E-06$ m <sup>2</sup> /s .....	72
Abbildung 5-4: Zeitlicher Verlauf der Aktivitätskonzentration von Pu-239 in einzelnen Gesteinen, Pfad I, Abstandsgeschwindigkeit $u_a=6$ m/a, $D_x=1E-06$ m <sup>2</sup> /s .....	72
Abbildung 5-5: Zeitlicher Verlauf der Aktivitätskonzentration der im dargestellten Zeitraum dominanten Radionuklide Th-232, Tc-99, Cl-36 und Ni-63; Gestein mm2 und Abstandsgeschwindigkeit $u_a=0,03$ m/a, Pfad I, $D_x=1E-07$ m <sup>2</sup> /s .....	73
Abbildung 5-6: Zeitlicher Verlauf der Aktivitätskonzentration der im dargestellten Zeitraum dominanten Radionuklide Th-232, Tc-99, Cl-36 und Ni-63, Gestein mm2 und Abstandsgeschwindigkeit $u_a=0,3$ m/a, Pfad I, $D_x=1E-07$ m <sup>2</sup> /s .....	73
Abbildung 5-7: Zeitlicher Verlauf der Aktivitätskonzentration der im dargestellten Zeitraum dominanten Radionuklide Th-232, Tc-99, Cl-36 und Ni-63, Gestein mm2 und Abstandsgeschwindigkeit $u_a=1$ m/a, Pfad I, $D_x=1E-06$ m <sup>2</sup> /s .....	74
Abbildung 5-8: Zeitlicher Verlauf der Aktivitätskonzentration von Th-232, Tc-99, Cl-36, Ni-63, Pu-239 und Pu-240 im Zeitraum bis 40.000 Jahre für das Gestein mm2 und Abstandsgeschwindigkeit $u_a=1$ m/a, Pfad I, $D_x=1E-06$ m <sup>2</sup> /s .....	74
Abbildung 5-9: Prozentuale Anteile einzelner Expositionspfade an der maximalen effektiven Dosis, Pfad I, Lebensgewohnheiten der Referenzpersonen analog AVV zu § 47 StrlSchV .....	76
Abbildung 5-10: Prozentuale Anteile einzelner Expositionspfade an der maximalen effektiven Dosis, Pfad I, Lebensgewohnheiten der Referenzpersonen analog Berechnungsgrundlagen Bergbau .....	76
Abbildung 5-11: Prozentuale Anteile einzelner Expositionspfade an der maximalen effektiven Dosis, Pfad II, Lebensgewohnheiten der Referenzpersonen analog AVV zu § 47 StrlSchV .....	77



Abbildung 5-12: Prozentuale Anteile einzelner Expositionspfade an der maximalen effektiven Dosis, Pfad II, Lebensgewohnheiten der Referenzpersonen analog Berechnungsgrundlagen Bergbau .....	77
Abbildung 5-13: Effektive Dosen aller Altersgruppen bei einer Abstandsgeschwindigkeit von 10 m/a, ohne Sorption .....	80
Abbildung 5-14: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe $\leq 1$ Jahr, Abstandsgeschwindigkeit 10 m/a, ohne Sorption .....	80
Abbildung 5-15: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe $> 17$ Jahre, Abstandsgeschwindigkeit 10 m/a, ohne Sorption .....	81
Abbildung 5-16: Effektive Dosen aller Altersgruppen bei einer Abstandsgeschwindigkeit von 10 m/a, keine Sorption von Plutonium .....	82
Abbildung 5-17: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe $\leq 1$ Jahr, Abstandsgeschwindigkeit 10 m/a, keine Sorption von Plutonium .....	82
Abbildung 5-18: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe $> 17$ Jahre, Abstandsgeschwindigkeit 10 m/a, keine Sorption von Plutonium .....	83
Abbildung 5-19: Effektive Dosen aller Altersgruppen bei einer Abstandsgeschwindigkeit von 10 m/a, Sorption mit Sorptionskoeffizienten nach /INE 2010/ .....	83
Abbildung 5-20: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe $\leq 1$ Jahr, Abstandsgeschwindigkeit 10 m/a, Sorption mit Sorptionskoeffizienten nach /INE 2010/ .....	84
Abbildung 5-21: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe $> 17$ Jahre, Abstandsgeschwindigkeit 10 m/a, Sorption mit Sorptionskoeffizienten nach /INE 2010/ .....	84
Abbildung 5-22: Effektive Dosen aller Altersgruppen bei einer Abstandsgeschwindigkeit von 1 m/a, Sorption von Plutonium wie Sorption von Strontium .....	85
Abbildung 5-23: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe $\leq 1$ Jahr, Abstandsgeschwindigkeit 1 m/a, Sorption von Plutonium wie Sorption von Strontium .....	86
Abbildung 5-24: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe $> 17$ Jahre, Abstandsgeschwindigkeit 1 m/a, Sorption von Plutonium wie Sorption von Strontium .....	86
Abbildung 5-25: Effektive Dosen aller Altersgruppen bei einer Abstandsgeschwindigkeit von 1 m/a, Sorption mit Sorptionskoeffizienten nach /INE 2010/ .....	87
Abbildung 5-26: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe $\leq 1$ Jahr, Abstandsgeschwindigkeit 1 m/a, Sorption mit Sorptionskoeffizienten nach /INE 2010/ .....	88

Abbildung 5-27: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe > 17 Jahre, Abstandsgeschwindigkeit 1 m/a, Sorption mit Sorptionskoeffizienten nach /INE 2010/ .....	88
Abbildung 5-28: Effektive Dosen aller Altersgruppen bei einer Abstandsgeschwindigkeit von 0,3 m/a, Sorption von Plutonium wie Sorption von Strontium, Gestein mu1-3 .....	89
Abbildung 5-29: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe ≤ 1 Jahr, Abstandsgeschwindigkeit 0,3 m/a, Sorption von Plutonium wie Sorption von Strontium, Gestein mu1-3 .....	90
Abbildung 5-30: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe > 17 Jahre, Abstandsgeschwindigkeit 0,3 m/a, Sorption von Plutonium wie Sorption von Strontium, Gestein mu1-3 .....	90
Abbildung 5-31: Effektive Dosen aller Altersgruppen bei einer Abstandsgeschwindigkeit von 0,3 m/a, Sorption von Plutonium wie Sorption von Strontium, Gestein mm2 .....	91
Abbildung 5-32: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe ≤ 1 Jahr, Abstandsgeschwindigkeit 0,3 m/a, Sorption von Plutonium wie Sorption von Strontium, Gestein mm2 .....	92
Abbildung 5-33: Effektive Dosen aller Altersgruppen bei einer Abstandsgeschwindigkeit von 0,3 m/a, Sorption mit Sorptionskoeffizienten nach /INE 2010/, Gestein mu1-3.....	92
Abbildung 5-34: Effektive Dosen der Altersgruppe ≤ 1 Jahr bei der Abstandsgeschwindigkeit 0,3 m/a, Sorptionswerte nach /INE 2010/, Schicht mu1-3 .....	93
Abbildung 7-1: Überblick über die Mengen an Wasser, die den betrachteten Szenarien der Trinkwassernutzung zu Grunde liegen.....	105
Abbildung 8-1: Effektive Dosis im Szenario I.....	110
Abbildung 8-2: Beitrag der Expositionspfade zur effektiven Dosis des Kleinkinds im Alter ≤ 1 Jahr (Pu-Inventar 28 kg), 40 Jahre nach Beginn des Absaufens und mit Lebensgewohnheiten analog der AVV zu § 47 StrlSchV im Szenario I.....	111
Abbildung 8-3: Beitrag der Expositionspfade zur effektiven Dosis des Erwachsenen (Pu-Inventar 28 kg), 40 Jahre nach Beginn des Absaufens und mit Lebensgewohnheiten analog der AVV zu § 47 StrlSchV im Szenario I .....	111
Abbildung 8-4: Beitrag der Expositionspfade zur effektiven Dosis des Kleinkinds im Alter ≤ 1 Jahr (Pu-Inventar 28 kg), 40 Jahre nach Beginn des Absaufens und mit Lebensgewohnheiten analog der Berechnungsgrundlagen Bergbau im Szenario I.....	112
Abbildung 8-5: Beitrag der Expositionspfade zur effektiven Dosis des Erwachsenen (Pu-Inventar 28 kg), 40 Jahre nach Beginn des Absaufens und mit Lebensgewohnheiten analog der Berechnungsgrundlagen Bergbau im Szenario I.....	112

Abbildung 8-6: Strahlenexposition in die Rechenfällen mit zusammen fünf Varianten im Szenario II .....	115
---	-----

## Zusammenfassung

Vorbemerkung:

Der vorliegende Bericht ist eine Fortschreibung des Berichts des Öko-Instituts „Neuberechnungen zu den Auswirkungen eines auslegungsüberschreitenden Lösungszutritts in der Schachanlage Asse II“ vom 16.06.2010 /Öko-Institut 2010/ und ersetzt diesen inhaltlich. Hintergrund sind die seit dato vorgenommenen methodischen Weiterentwicklungen und zusätzlich gerechnete Szenarien, die eine Fortschreibung sinnvoll gemacht haben.

Die langfristige Freisetzung von Radioaktivität über den Grundwasserpfad kann bei nicht beherrschbaren Lösungszutritten in die Asse oder versagender Standsicherheit des Grubengebäudes der Asse nach derzeitigen Erkenntnissen nicht ausgeschlossen werden. Aus diesem Grund wurde das Öko-Institut vom Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit damit beauftragt, die möglichen radiologischen Folgen in einem Szenario der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) /GRS 2009/ - im Folgenden „Szenario I“ genannt - mit einem daran angepassten radioökologisches Modell zu bestimmen. Darüber hinaus war ein „Szenario II“ zu entwickeln, das Grenzen der Löslichkeit von Radionukliden (bei Erreichen einer Sättigung der Lösung) sowie rückhaltende und verzögernde Effekte beim Transport durch das Deckgebirge umfassen sollte. Für das Szenario II wurden beispielhaft zwei Störungen als Freisetzungspfade durch das Deckgebirge betrachtet. Eine stellt die kürzeste Verbindung zum oberflächennahen Grundwasser dar, die andere ist eine, über die sich dieser Vorgang ebenfalls abspielen könnte. Die Geschwindigkeit, mit der die Lösung durch die Gesteine des Deckgebirges dringen kann, wurde variiert, da sie insbesondere von der zukünftigen Auflockerung in der Umgebung der Schachanlage durch Setzungsprozesse abhängt.

Ein wichtiger Faktor der Modellierung der Strahlenexposition sind die angenommenen Lebensgewohnheiten der Referenzpersonen, für die die möglichen Strahlenexpositionen untersucht werden. Zum Einen wurde die Strahlenexposition mit extrem ungünstigen Lebensgewohnheiten analog der AVV zu § 47 StrlSchV /AVV 2005/ ermittelt. Dieses Vorgehen entspricht dem Vorgehen zur Berechnung der Strahlenbelastung bei der Genehmigung von kerntechnischen Anlagen in Deutschland. Für ein geplantes Endlager sollte daher ähnlich vorgegangen werden, auch um dem Grundsatz gerecht zu werden, zukünftige Generationen in gleichem Maße zu schützen wie die heute lebende. Eine zweite Berechnung erfolgte mit Lebensgewohnheiten in Anlehnung an die Berechnungsgrundlagen Bergbau /BglBb 2010/, die insbesondere eher mittlere Werte von Verzehrswerten berücksichtigen. Die Berechnungsgrundlagen Bergbau wurden für die Hinterlassenschaften aus bergbaulichen Tätigkeiten mit erhöhter natürlicher Radioaktivität entwickelt, zunächst in Zusammenhang mit der Sanierung der Hinterlassenschaften des Uranerzbergbaus in der ehemaligen DDR. Sie stellen daher ein Instrumentarium dar, das nicht bei einer geplanten Tätigkeit, sondern bei der Sanierung einer existierenden Situation angewendet wird.

Für das Szenario II wurde untersucht, ob die vollständige Lösung von Radionukliden nach dem Absaufen der Asse möglich ist, bevor eine Sättigung der Lösung erfolgt. Eine sichere Begrenzung ergab sich nur für Thorium und Uran. Durch die Variierung der Pfade des Transports durch das Deckgebirge sowie der Abstandsgeschwindigkeiten wurde dargestellt, in welchem Rahmen sich mögliche Strahlenexpositionen bewegen könnten. Die Ergebnisse stellen aber weder obere noch untere Begrenzungen dar. Insbesondere war hier nicht zu untersuchen, welchen zukünftigen Einflüssen das Deckgebirge ausgesetzt sein kann und wie sich dies auf die Transportvorgänge auswirken würde. Außerdem ist die Annahme der homogenen Vermischung der Radionuklide nach ihrer Lösung im Grubengebäude nicht notwendigerweise konservativ, da Teilmengen der Lösung höher kontaminiert sein können und so gering genutzte Grundwasserentnahmen bei Einzelpersonen zu höheren Expositionen führen könnten.

Die maximalen Strahlenexpositionen im Szenario II ergaben sich dann, wenn eine hohe Abstandsgeschwindigkeit unterstellt wird, mit der die radioaktiv kontaminierte Lösung aus dem Grubengebäude durch das Deckgebirge gedrückt wird, und die Sorption von Radionukliden vollständig vernachlässigt wird (67,5 mSv effektive Dosis im Jahr für das Kleinkind im Alter  $\leq 1$  Jahr sowie 16,9 mSv effektive Dosis im Jahr für den Erwachsenen). Bei allen Berechnungen zu Szenario II wurden einige sehr konservative Randbedingungen gewählt. Insbesondere wurde angenommen, dass der gesamte Pfad durch das Deckgebirge durch die Gesteinsschicht mit den ungünstigsten Eigenschaften im Hinblick auf die radiologischen Folgen führt. Außerdem wurden die Berechnungen mit den extrem ungünstigen Lebensgewohnheiten der Referenzpersonen analog zur AVV zu § 47 StrlSchV durchgeführt.

Werden in Szenario II geringere Abstandsgeschwindigkeiten angesetzt und die Sorption stärker berücksichtigt, so ergeben sich deutlich geringere Strahlenexpositionen. Die effektive Dosis für das Kleinkind im Alter  $\leq 1$  Jahr beläuft sich dann noch auf etwa 0,05 mSv bis 0,1 mSv im Jahr, die für Erwachsene auf etwa 0,02 mSv bis 0,04 mSv im Jahr.

Bei Lebensgewohnheiten in Anlehnung an die Berechnungsgrundlagen Bergbau sind die ermittelten Strahlenexpositionen um einen Faktor 3 bis 4 geringer. Ausgehend von den ermittelten Strahlenexpositionen kann sich ein individuelles Risiko für eine letale Krebserkrankung über die Lebenszeit in der Größenordnung von bis zu  $10^{-4}$  ergeben. Dies würde voraussetzen, dass frühere lokale Trinkwassergewinnungen wieder aufgenommen würden und das Trink- oder Beregnungswasser genutzt würde, obwohl mit einfachen Methoden dessen hohe Konzentration an radioaktiven Stoffen festzustellen wäre und daraufhin die Nutzung dieser Brunnen eingestellt werden könnte.

Für Endlager für hochradioaktive Abfälle in tiefen geologischen Formationen haben die Reaktor-Sicherheitskommission und die Strahlenschutzkommission in /RSK/SSK 2008/ als radiologischen Bewertungsmaßstab für die Langzeitsicherheit eine effektive Individualdosis von 0,1 mSv im Jahr bei wahrscheinlichen Entwicklungen und 1 mSv im Jahr bei weniger wahrscheinlichen Entwicklungen empfohlen. Auf der Basis der hier durchgeführten Berechnungen ist es möglich, dass ein

Schutzziel von 0,1 mSv im Jahr bei wahrscheinlichen Entwicklungen und 1 mSv im Jahr bei weniger wahrscheinlichen Entwicklungen nicht einzuhalten ist. Wesentliche Verbesserungen können durch technische Maßnahmen erreicht werden, die auf die Reduzierung der tatsächlichen Lösung von Radionukliden und der Erhöhung der Stabilität des Grubengebäudes im Hinblick auf mögliche neue Auflockerungszonen im umgebenden Gestein bei der Konvergenz abzielen. Jede zusätzliche Stabilisierung wirkt sich positiv auf zukünftig mögliche Kontaminationen des Grundwassers und damit auch positiv auf mögliche Strahlenexpositionen und radiologische Risiken aus. Offen bleibt hier aber zunächst die Frage der zukünftigen Entwicklung des Deckgebirges, beispielsweise durch Erosions- oder Setzungsprozesse, oder der zukünftigen Entwicklung hydrologischer Verhältnisse, beispielsweise des Grundwasserdargebots, die in einem Langzeitsicherheitsnachweis ebenfalls zu berücksichtigen wäre.

Bei geeigneter Überwachung des oberflächennahen Grundwassers sowie des Quellwassers in der Umgebung der Asse schon durch halbjährliche Messungen würde eine erhebliche Kontamination zuverlässig erkannt. Bei entsprechenden Nutzungsbeschränkungen kontaminierten Wassers könnten Strahlenexpositionen von mehr als 0,1 mSv mit Sicherheit vermieden werden. In einem Notfall – wie dem auslegungsüberschreitenden Lösungszutritt in der Asse – müsste auf diese Maßnahme zur Begrenzung der Strahlenexposition gegebenenfalls zurückgegriffen werden. Für eine geplante Stilllegung der Asse sollte dagegen nicht von zukünftigen Nutzungseinschränkungen des Grundwassers Kredit genommen werden. Dies würde dem Ziel, zukünftige Generationen in gleichem Maße zu schützen wie die heute lebende, widersprechen, da ein solches Vorgehen bei beplanten Tätigkeiten in der Kerntechnik nicht üblich ist.

Von der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) war 2009 ein Gutachten vorgelegt worden, in dem radiologische Folgen eines auslegungsüberschreitenden Lösungszutritts in der Asse untersucht worden waren /GRS 2009/. Dieses Gutachten wurde kritisiert, da es insbesondere folgende Mängel aufwies:

- Es wurden für die Berechnung von Strahlenexpositionen Dosiskonversionsfaktoren herangezogen, die für das Szenario der GRS nicht geeignet waren. Implizit wurde dadurch in der Modellierung weit mehr Radioaktivität durch Berechnung auf landwirtschaftlich genutzte Flächen aufgebracht als in der Asse vorhanden ist. Außerdem wurden dadurch für Zeiten ab 40 Jahren Strahlenexpositionen angegeben, denen implizit eine Berechnung landwirtschaftlich genutzter Flächen über 10.000 Jahre zugrunde lag.
- Es wurde nicht beachtet, dass es keine wissenschaftliche Grundlage für die vollständige Lösung von Thorium und Uran aus den Abfällen gibt.

Die hier für das Szenario I ermittelten Strahlenexpositionen sind geringer als in /GRS 2009/. Sie betragen aber auch bei Berücksichtigung von Lebensgewohnheiten analog den Berechnungsgrundlagen Bergbau noch bis zu 20 mSv im Jahr effektive Dosis für Erwachsene und bis zu 160 mSv im Jahr effektive Dosis für das Kleinkind im Alter  $\leq 1$  Jahr. Sie sind damit sehr hoch im Vergleich mit Anforderungen, die für geplante Tätigkeiten (0,3 mSv effektive Dosis im Jahr) oder die Sanierung von

Hinterlassenschaften des Uranerzbergbaus (1 mSv effektive Dosis im Jahr) gelten. Auch die Schutzziele nach /RSK/SSK2008/ wären nicht eingehalten.

Für die Einordnung der Aussage dieses Gutachtens ist zu beachten, dass hier - wie auch in /GRS 2009/ - vorausgesetzt wird, dass noch nicht vollständig verfüllte Einlagerungskammern und angrenzende Grubenbereiche verfüllt sind und Schachtverschlüsse eingebaut sind. Dies bedeutet, dass nach Beginn eines auslegungsüberschreitenden Lösungszutritts bestimmte technisch noch mögliche Maßnahmen zur Verbesserung der Rückhaltung von Radionukliden durchgeführt werden müssen. Dies wird in der Realität allerdings nur möglich sein, wenn für diese Maßnahmen noch genügend Zeit zur Verfügung steht. Ein Konzept für Notfallmaßnahmen, die bei bestimmten zukünftigen Ereignissen ergriffen werden müssen, wurde inzwischen vom BfS entwickelt.

Insgesamt zeigen die Ergebnisse, dass ein Absaufen des Grubengebäudes, bevor ein für ausreichend sicher erachteter Zustand erreicht ist (sei es durch Vollverfüllung oder durch Rückholung der Abfälle), möglichst vermieden werden muss. Kommt es dennoch zu einem vorzeitigen Absaufen, so sind technische Maßnahmen zu treffen, um die zukünftigen radiologischen Auswirkungen möglichst weitgehend zu begrenzen. Dies muss im Rahmen der Notfallmaßnahmen erfolgen.

## 1 Anlass und Einführung

Nach einem nicht beherrschbaren Lösungszutritt in die Asse oder versagender Standsicherheit des Grubengebäudes der Asse kann nach derzeitigen Erkenntnissen ein Eintrag von radioaktiven Stoffen innerhalb von einigen Jahren oder Jahrzehnten in das oberflächennahe Grundwasser nicht ausgeschlossen werden. Bei einem Eintrag in Grundwasser wäre die Strahlenexposition von Personen der Bevölkerung möglich, wenn dieses Grundwasser genutzt wird.

Im Rahmen der Stilllegung der Asse sind Erkenntnisse über die radiologischen Auswirkungen eines nicht beherrschbaren Lösungszutritts für Entscheidungen über die Erforderlichkeit und Rechtfertigung der Planung von Maßnahmen der Gefahrenabwehr notwendig, da zu hohe Strahlenexpositionen vermieden werden müssen oder wenn das nicht vollständig möglich ist, zumindest soweit als möglich zu minimieren sind. Aus solchen Kenntnissen über die Folgen eines auslegungsüberschreitenden Zutritts von Deckgebirgslösung in das Grubengebäude können verschiedene Untersuchungen abgeleitet werden, insbesondere die Folgenden:

- Eruierung relevanter Szenarien für den Ereignisablauf der Freisetzung von Radionukliden als Grundlage für die Betrachtung der Auswirkungen von Eingriffen bei der Stilllegung der Asse oder bei der Planung von Notfallmaßnahmen.

Denn Gegenmaßnahmen gegen die Freisetzung radioaktiver Stoffe müssen dort ansetzen, wo sie einen wirksamen Beitrag zur Begrenzung der Strahlenexposition bringen. Diese Beurteilung muss sich an möglichst realistischen Szenarien orientieren, damit es zu keinen Fehleinschätzungen kommt. Denn nur so ist eine möglichst weitgehende Minimierung der tatsächlichen Strahlenexposition real erreichbar.

- Ermittlung des möglichen Reduzierungspotenzials für die Strahlenexposition von Personen der Bevölkerung durch technische Maßnahmen, beispielsweise zur Verzögerung des Eintritts in nutzbares Grundwasser.

Denn Maßnahmen, die eine Verzögerung des Übergangs von Radionukliden in das oberflächennahe Grundwasser ergeben, führen auch zu einer Reduzierung der möglichen Strahlenexposition. Grund ist der immer noch relativ hohe Anteil von Radionukliden am Inventar der Asse, die über die nächsten Jahre und Jahrzehnte noch deutlich abklingen.

- Erarbeitung von Maßnahmen zur Vermeidung der Strahlenexposition von Personen (z. B. Nutzungseinschränkungen für lokale Grund- und Quellwässer) nach einem auslegungsüberschreitenden Zutritt von Deckgebirgslösung in das Grubengebäude.

Falls tatsächlich ein auslegungsüberschreitender Lösungszutritt in die Asse eintritt, bevor ausreichende Maßnahmen zur Vermeidung und Reduzierung von Freisetzungen radioaktiver Stoffe getroffen sind, müssen gegebenenfalls Maßnahmen getroffen werden, um die Strahlenexposition von Personen zu begrenzen. Dies können vor allem Nutzungseinschränkungen von kontaminiertem Wasser sein, aber auch Reinigungsmaßnahmen zur Abtrennung von Radionukliden aus hoch kontaminierten Wässern.



- Erarbeitung von Grundlagen für ein Monitoring zur frühzeitigen Detektion von Kontaminationen in der Biosphäre.

Derzeit erfolgt eine Umgebungsüberwachung der Asse, die auch die Beprobung von Grund- und Oberflächenwasser umfasst. Diese Überwachung muss zukünftig ohnehin fortgeführt werden. Diese Überwachung sollte insgesamt so angelegt sein, dass eine Kontamination von nutzbarem Grundwasser oder Oberflächenwasser erkannt wird, bevor die Nutzung zu signifikanten Strahlenexpositionen führen kann.

- Aussagen über das Risiko für Personen der Bevölkerung, dass sie aufgrund einer aus dem Absaufen der Asse resultierenden Strahlenexposition an Krebs erkranken.

Neben der individuellen Dosis ist auch das mögliche Risiko für Gesundheitsschäden für Individuen und für Gruppen von Personen ein Maßstab, an dem die Relevanz von Kontaminationen aber auch die Notwendigkeit von Gegenmaßnahmen gemessen werden können.

Das Öko-Institut wurde im Rahmen der Unterstützung des BMU bei der Aufsicht über Betrieb und Stilllegung der Asse mit der Neuberechnung der Auswirkungen eines auslegungsüberschreitenden Lösungszutritts in der Asse beauftragt.

Zur Bewertung der Strahlenexposition in Folge eines auslegungsüberschreitenden Lösungszutritts wurde vom Öko-Institut ein radioökologisches Modell entwickelt, welches die Radionuklidmigration im Deckgebirge, den Eintrag in nutzbares Grundwasser und die Strahlenexposition bei Nutzung dieses Grundwassers beschreibt (siehe Kapitel 5). Einzelne Fragestellungen, die das Löslichkeitsverhalten sowie chemisch bedingte Rückhalte-mechanismen in unterschiedlichen geologischen Schichten betreffen, wurden durch das Institut für Nukleare Entsorgung (KIT-INE) im Unterauftrag bearbeitet. Der Bericht des KIT-INE /INE 2010/ ist als Anhang 1 beigefügt. Zu speziellen Fragestellungen der Modellierung der Grundwassermigration von Nukliden in Zerfallsreihen wurde durch FUGRO-HGN GmbH, Braunschweig, ein Modellansatz im Unterauftrag erarbeitet. Der Bericht von FUGRO-HGN /FUGRO 2010/ ist als Anhang 2 beigefügt.

Die Neuberechnung erfolgt vor dem Hintergrund der durch die GRS in /GRS 2009/ und durch die Colenco AG /Colenco 2009/ vorgelegten Berechnungen der Auswirkungen eines auslegungsüberschreitenden Lösungszutritts der Asse.

Zu den Berechnungen der GRS /GRS 2009/ wurden nach deren Publikation insbesondere folgende Kritikpunkte erhoben:

- Die Löslichkeitsgrenzen der Radionuklide sind nicht berücksichtigt, so dass auf der Basis von um Größenordnungen zu hohen und hydrogeochemisch unplausiblen Nuklidkonzentrationen, beispielsweise beim Thorium-232, unplausible Beiträge zur Dosis resultieren. In der GRS-Studie wurde beispielsweise unterstellt, dass das gesamte Thorium aus den Abfällen sich in der zugetretenen

Lauge löst. Dies ist aber aus chemischen Gesetzmäßigkeiten nicht möglich, da die Löslichkeitsgrenzen von Thorium eine solche vollständige Auflösung ausschließen. Damit verbleibt ein großer Teil des Thoriums in den Abfällen, wird nicht in der Lauge aufgelöst und tritt damit auch nicht aus dem Bergwerk aus. Für die besonderes für Thorium-232 ermittelte sehr hohe Strahlenexposition gibt es daher keine wissenschaftliche Begründung.

- Die berechneten Dosen in der kritisierten Studie basierten auf Dosiskonversionsfaktoren (DKF), denen Gleichgewichtszustände bei Eintrag und Zerfall bzw. Migration der Radionuklide zugrunde liegen. Bei Anwendung dieser DKF wird von einer Berechnungszeit mit Radionukliden von bis zu 10.000 Jahren und der dadurch bewirkten Anreicherung im berechneten Boden ausgegangen, obwohl bei Abläufen wie im entsprechenden Szenario der GRS schon nach 220 Jahren sämtliche Radionuklide aus dem Bergwerk freigesetzt sind und deswegen keine weiteren Freisetzungen mehr erfolgen können. Der Dosisermittlung liegt damit in der kritisierten Studie die Annahme zugrunde, dass Radionuklide über bis zu 10.000 Jahre durch Beregnung auf einer landwirtschaftlich genutzten Fläche ausgebracht wurden. Die ermittelte Dosis soll aber schon nach zum Zeitpunkt unmittelbar nach Vollaufen des Grubengebäudes (30 Jahre) auftreten, ein unmittelbarer logischer Fehlschluss.
- Für die Berechnung wurde ein fehlerhaftes Inventar im Hinblick auf Plutonium sowie auf Tochternuklide und die Zusammensetzung von natürlichem Thorium benutzt. Das Plutoniuminventar der Asse ist in früheren Untersuchungen unterschätzt worden. Heute ist klar, dass mehr als das Doppelte der noch vor wenigen Jahren angenommenen Plutoniummenge in der Asse enthalten ist (siehe Schreiben der ESK/SSK-Ad-hoc-Arbeitsgruppe Asse vom 02.11.2009 an das Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit). Außerdem wurden Tochternuklide des Thoriums, die sich durch radioaktiven Zerfall zwangsläufig bilden, in den früheren Angaben zum Inventar der Asse zum Teil nicht berücksichtigt.

Die durch die Colenco AG /Colenco 2009/ durchgeführte Abschätzung der Trinkwasserdosis bei einem unterstellten Absaufen der Asse wurde durch das Öko-Institut in /Öko-Institut 2009/ geprüft. Hierbei wurden folgende Kritikpunkte festgestellt:

- Eine detaillierte Modellierung liegt der Studie der Colenco /Colenco 2009/ nicht zugrunde. Es wird ausschließlich die aus dem Verzehr von Trinkwasser resultierende Dosis berücksichtigt. Alle anderen Pfade sind unberücksichtigt. Damit wurde die mögliche Strahlenexpositionen zwar für einen wichtigen Pfad ermittelt. Weitere Pfade, die erfahrungsgemäß Strahlenexpositionen in ähnlicher Höhe verursachen können, wurden aber nicht betrachtet.
- Die Löslichkeitseigenschaften einzelner Radionuklide sowie die Gasbildung sind nicht berücksichtigt. Dies führt vor allem zu einer deutlichen Überschätzung der Strahlenexposition durch Thorium- und Uran-Isotope, da das Inventar der Asse an Thorium und Uran nur zu einem geringen Teil in Lösung gehen

kann. Die Lösung ist dann an Thorium und Uran gesättigt und die Lösung der verbliebenen Mengen nicht mehr möglich.

- Eine Rückhaltung der Radionuklide ist pauschal berücksichtigt (100 Jahre Rückhaltung für LAW, 50 Jahre Rückhaltung für MAW). Dabei wurde pauschal davon ausgegangen, dass VBA-Gebinde unzerstört vorliegen. Diese Annahmen zur Rückhaltung für einen bestimmten Zeitraum führen zu einer geringeren ermittelten Strahlenexposition, da einige relevante Radionuklide (z. B. Strontium-90, Cäsium-137) über diese Zeit deutlich abklingen. Diese Annahmen sind aber nicht zwingend, insbesondere nicht, wenn die Löslichkeit einzelner Radionuklide oder die räumliche Verteilung in Betracht gezogen wird. Der genaue Zustand der Gebinde ist heute nicht bekannt. Auch bei VBA-Gebinden muss nach derzeitigem Kenntnisstand davon ausgegangen werden, dass sie möglicherweise zerstört oder teilzerstört sind. Der Ansatz in der Colenco-Studie kann daher zu einer Unterschätzung der möglichen Strahlenexpositionen führen.

Ziel der hier vorgenommenen Neuberechnung ist es, Fehler der bisherigen Berechnungen zu eliminieren und - soweit derzeit möglich - plausible Annahmen zu treffen bzw. die Sensitivität einiger relevanter Parameter darzulegen. In die Neuberechnungen gehen insbesondere folgende Sachverhalte und Randbedingungen ein:

- Es gibt in der Realität für den betrachteten Zeitraum kein Gleichgewicht zwischen Neueinträgen an Radionukliden auf berechneten Flächen und der Migration der Radionuklide in Bodenbereiche, in denen sie nicht mehr pflanzenverfügbar sind. Deswegen werden die radiologischen Folgen im Folgenden ausgehend von Neueinträgen jedes Einzeljahrs sowie den noch vorhandenen Alteinträgen ermittelt; Dosiskonversionsfaktoren werden dabei nicht verwendet. Die mit der Dosisermittlung anhand der Dosiskonversionsfaktoren verbundenen Probleme werden damit vollständig vermieden. Der Dosisermittlung zu einem bestimmten Zeitpunkt liegt nur die bis zu diesem Zeitpunkt in die Biosphäre eingetragene Menge an radioaktiven Stoffen zugrunde.
- In dem in die Berechnung eingeflossenen Quellterm wurden ausgehend aus den letzten Ermittlungen zum Inventar (Schreiben der ESK/SSK-Ad-hoc-Arbeitsgruppe Asse vom 02.11.2009) Korrekturen bezüglich des Plutoniums vorgenommen. Das Plutoniuminventar beläuft sich dann auf 28 kg.
- In einer ersten Berechnung werden Annahmen und Parameter in Anlehnung an den Entwurf der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift (AVV) zu § 47 StrlSchV /AVV 2005/ getroffen. In einer zweiten Berechnung parallel dazu erfolgt eine Anlehnung an die Annahmen und Parameter der Berechnungsgrundlagen Bergbau /BglBb 2010/. Daraus ergeben sich beispielsweise jeweils Unterschiede in den angenommenen Verzehraten lokal angebauter Nahrungsmittel und Aufenthaltszeiten auf berechneten Flächen. Die AVV dient der Dosisberechnung bei der Planung von Tätigkeiten und nimmt extreme Lebensgewohnheiten der Referenzpersonen an, um im Ergebnis auf der sicheren Seite zu sein. Mit den BglBb wird ermittelt, in welchem Umfang Sanierungsmaßnahmen von Hinterlassenschaften des Uranerzbergbaus in der ehemaligen DDR erforderlich sind.

Diese Berechnungen gehen von weniger extremen Lebensgewohnheiten der Referenzpersonen aus.

- Löslichkeitsgrenzen für Radionuklide und deren Sorption sowie Retardation bei ihrem Transport in die Biosphäre werden berücksichtigt. Durch die Berücksichtigung von Löslichkeitsgrenzen wird vermieden, dass die Folgen mit einem Ansatz ermittelt werden, bei dem sich Radionuklide in einer Menge lösen, die völlig ausgeschlossen ist. Sorption und Retardation sind zwangsläufig beim Durchdringen des Deckgebirges stattfindende Prozesse, die zu einer Reduzierung möglicher Strahlenexposition führen. Durch Ablagerungen sowie erneute Lösung von Radionukliden ergibt sich beim Transport eine Verzögerung, so dass es zu einer gewissen „Rückhaltung“ durch radioaktiven Zerfall kommt, so weit der radioaktive Zerfall vor dem Eintrag in die Nahrungskette erfolgt.
- Berücksichtigung plausibler räumlicher und zeitlicher Randbedingungen für die Freisetzung von Aktivität in die Biosphäre. Dabei werden zwei geologische Störungen als mögliche Freisetzungswege betrachtet. Der Einfluss der Geschwindigkeit austretender Lösungen und unterschiedlicher Dispersionskoeffizienten werden diskutiert. Da Sorptionsprozesse sowohl von Eigenschaften der Radionuklide als auch von Eigenschaften des Deckgebirges abhängen, wird der Nuklidtransport im Folgenden beispielhaft auf zwei möglichen Pfaden untersucht, deren besondere Eigenschaften in die Berechnung einfließen.
- Möglichkeiten eines Monitorings auf Basis realistischer Annahmen der Ausbreitung von Radionukliden in der Biosphäre sowie bezogen auf die möglicherweise freigesetzten Radionuklide (siehe Kapitel 6). Die zukünftige Überwachung von Grund- und Oberflächenwasser auf den Gehalt von Radionukliden, die bei einem Absaufen aus der Asse freigesetzt worden sein können, ist ein wichtiges Instrument zum Schutz der Bevölkerung. Zur Beurteilung der Messbarkeit relevanter Radionuklide werden deren mögliche Konzentrationen untersucht.
- Diskussion der Risiken für die Bevölkerung, auch unter Berücksichtigung des real möglichen Umfangs von Trinkwassergewinnung aus dem Einflussbereich der Asse, der möglichen Größe mit kontaminiertem Wasser beregneter Flächen (siehe Kapitel 7). Die möglichst realistische Einschätzung von Risiken ist wichtig, um die Optimierung von Maßnahmen zur Vermeidung oder Reduzierung von Freisetzungen der Radionuklide aus der Asse durchführen zu können.

Die Berechnung der Strahlenexposition für das Szenario I erfolgt in Kapitel 4, für das Szenario II in Kapitel 5.4. In Kapitel 8 werden die Ergebnisse bei der Szenarien diskutiert. In Kapitel 9 werden die Ergebnisse noch in Zusammenhang mit denen der GRS in /GRS 2009/ bewertet.

## 2 Überblick zur Vorgehensweise

Die Auswirkungen eines auslegungsüberschreitenden Lösungszutritts in die Asse resultieren aus folgenden Vorgängen:

- **Szenario des Absaufens** durch Lösungszutritt, Ereignisse im Grubengebäude (z. B. Umlösungsprozesse, Konvektion) und Austritt von Flüssigkeiten in das umgebende Gestein. Der Austritt in das umgebende Gestein erfolgt durch Auspressung aufgrund des Gebirgsdrucks auf die flüssigkeitsgefüllten Hohlräume des Grubengebäudes (Konvergenz).
- **Mobilisierung und Freisetzung** der Radionuklide in das Grubengebäude sowie chemische Reaktion zwischen den eingelagerten Stoffen und der Zutrittslösung (z. B. Gasbildung). Hierbei sind insbesondere die Löslichkeitsgrenzen von Radionukliden zu berücksichtigen.
- **Transport der Radionuklide** innerhalb geologischer Schichten zur Biosphäre. Für diesen Transportvorgang können die Verzögerung durch Sorptionsprozesse und die Phänomene der Migration von Nukliden in Zerfallreihen berücksichtigt werden.
- **Strahlenexposition und ggf. Anreicherung** in der Biosphäre über die Nutzung von Wasser, den Verzehr von Nahrungsmitteln und den Aufenthalt auf Flächen.

Die genannten Vorgänge wirken sich auf die Folgen eines auslegungsüberschreitenden Lösungszutritts unterschiedlich stark aus. Die Ergebnisse der Modellierung werden von den für diese Vorgänge getroffenen Annahmen und Szenarien wesentlich bestimmt.

Bestimmte Ausgangsbedingungen des **Szenarios des Absaufens** sind vom BMU so festgelegt worden, dass eine Vergleichbarkeit mit früheren Untersuchungen (insbesondere /GRS 2009/) gewährleistet ist. Daher werden die folgenden Annahmen getroffen:

- Es wird von einem initialen Porenvolumen von  $1,3 \cdot 10^6 \text{ m}^3$  und einem nach der Umlösung des Carnallitits vorliegenden Gesamtporenvolumen von  $2,2 \cdot 10^6 \text{ m}^3$  ausgegangen. Aus dem Gesamtporenvolumen von  $2,2 \cdot 10^6 \text{ m}^3$  ergibt sich die Flüssigkeitsmenge, in der die in der Asse eingelagerten Radionuklide gelöst werden. Der Lösungszutritt erfolgt mit einer konstanten Rate von  $200 \text{ m}^3/\text{d}$  und füllte das Grubengebäude bei dem o. g. Porenvolumen nach 30 Jahren.
- Der Lösungszutritt erfolgt wie in /GRS 2009/ in die Südflanke im Teufenbereich zwischen 574 m und 500 m. Der Austritt der kontaminierten Lösung in das umgebende Gebirge erfolgt auf der 500 m Teufe der Südflanke.
- Es wird analog zu /GRS 2009/ von einem „Rührkesselmodell“ ausgegangen, d. h. Konzentrationsgradienten sowie zeitlich unterschiedliche Konzentrationen von Radionukliden während des sich mit Zutrittsflüssigkeit füllenden Grubengebäudes werden nicht berücksichtigt. Diese Modell führt zu einer Überschätzung der Freisetzung von Radionukliden, da es unterstellt, dass alle gelösten Radio-

nuklide sofort in das Deckgebirge freigesetzt werden und nicht erst innerhalb des Salzes dorthin transportiert werden müssen.

- Es wird wie in /GRS 2009/ davon ausgegangen, dass noch nicht vollständig verfüllte Einlagerungskammern und angrenzende Grubenbereiche verfüllt sind und Schachtverschlüsse eingebaut sind. Die Annahmen zur Durchführung einer Firstspaltverfüllung entsprechen denen in /GRS 2009/. Dies bedeutet, dass nach Beginn eines auslegungsüberschreitenden Lösungszutritts bestimmte technisch noch mögliche Maßnahmen zur Verbesserung der Rückhaltung von Radionukliden erfolgen sollen. Dies wird in der Realität allerdings nur möglich sein, wenn für diese Maßnahmen noch genügend Zeit zur Verfügung steht.

Auf der Basis des „Szenarios des Absaufens“ variieren die Annahmen zur „Mobilisierung und Freisetzung“, zum „Transport der Radionuklide“ und zur „Anreicherung und Strahlenexposition“. Für die Modellierung werden zwei grundlegende Szenarien unterschieden:

- **Szenario I:** Instantane Mobilisierung, keine Berücksichtigung von Löslichkeitsgrenzen, keine Sorption und Retardation im Deckgebirge, uneingeschränkte Nutzung kontaminierten Grundwassers,
- **Szenario II:** Berücksichtigung von Löslichkeitsgrenzen sowie von Sorption und Retardation im Deckgebirge, uneingeschränkte Nutzung kontaminierten Grundwassers.

Innerhalb der Szenarien werden einzelne Annahmen und Parameter variiert.

### **Szenario I: Instantane Mobilisierung, keine Berücksichtigung von Löslichkeitsgrenzen, keine Sorption und Retardation im Deckgebirge, uneingeschränkte Nutzung kontaminierten Grundwassers**

Dieses Szenario orientiert sich im Hinblick auf die Mobilisierung und Freisetzung der Radionuklide an den Annahmen in /GRS 2009/. Die Radionuklide werden unmittelbar nach Lösungszutritt ohne zeitliche Verzögerung mobilisiert. Das gesamte Inventar radioaktiver Stoffe geht in die zugetretene Lösung über. Es erfolgt eine homogene Verteilung der Radionuklide innerhalb des Lösungsvolumens (Rührkesselmodell).

Unmittelbar nach Volllaufen des Grubengebäudes, d. h. nach etwa 30 Jahren, wird in Szenario I die Lösung durch den Gebirgsdruck in das Deckgebirge ausgepresst. Die Auspressrate beträgt dabei entsprechend der Annahme in /GRS 2009/ 10.000 m<sup>3</sup> im Jahr. Die ausgepresste Lösung erreicht innerhalb eines Jahres das genutzte Grundwasser. Aufgrund des Salzgehaltes erfüllt diese Lösung nicht die Anforderungen der Trinkwasserverordnung und kann auch nicht als Beregnungswasser verwendet werden. Ebenso ist sie als Zufluss eines Fischteichs nicht in Betracht zu ziehen. Es wird daher wie in /GRS 2009/ unterstellt, dass diese Lösung sich im Verhältnis 1:1100 mit nicht salzhaltigem Wasser vermischt. Nach dieser

Vermischung wären die Anforderungen der Trinkwasserverordnung erfüllt. Die Annahme der Vermischung des Wassers ist insofern konservativ, als ohne diese eine Nutzung nicht erfolgen würde und es damit auch zu keiner Strahlenexposition über die entsprechenden Pfade käme. Die Frage, ob Grundwasser zur entsprechenden Vermischung in ausreichender Menge zur Verfügung steht, wird für das Szenario I nicht erörtert.

Entsprechend wie in /GRS 2009/ wird die Sorption und Retardation von Radionukliden in geologischen Schichten des Deckgebirges nicht berücksichtigt. Dies trifft ebenfalls für die Gasbildung und die mögliche Ausbreitung der Radionuklide Tritium, Kohlenstoff-14, Iod-129 und Radon-222 über den Gaspfad zu.

Die hier vorgenommenen Berechnungen der aus diesem Szenario resultierenden Strahlenexposition ermöglichen eine Aussage darüber, wie sich realistische Annahmen zur Anreicherung der Radionuklide und zur Strahlenexposition, die von den Annahmen der GRS abweichen, auf die Folgen eines auslegungsüberschreitenden Lösungszutritts auswirken. Es soll mit Szenario I letztendlich nur untersucht werden, welche radiologischen Folgen sich bei Anwendung eines geeigneten radioökologischen Modells anstelle der Dosiskonversionsfaktoren ergeben. Die anderen Faktoren werden aus diesem Grund gegenüber /GRS 2009/ nicht variiert, mit Ausnahme des in /GRS 2009/ zu niedrig angesetzten Plutoniuminventars. Da dieses sich deutlich auf die Höhe der Dosis in Szenario I auswirkt werden zum Vergleich Berechnungen für zwei Inventare vorgenommen:

- Plutoniuminventar wie in /GRS 2009/ (11,8 kg),
- korrigiertes Plutoniuminventar (28 kg).

Eine weitere Variierung betrifft die Berechnung der Strahlenexposition:

- einerseits mit Lebensgewohnheiten analog der AVV zu § 47 StrlSchV /AVV 2005/ (extrem ungünstige Lebensgewohnheiten),
- andererseits mit Lebensgewohnheiten analog den Berechnungsgrundlagen Bergbau /BglBb 2010/ (eher mittlere Lebensgewohnheiten).

## **Szenario II: Berücksichtigung von Löslichkeitsgrenzen sowie von Sorption und Retardation im Deckgebirge, uneingeschränkte Nutzung kontaminierten Grundwassers**

Eine Modellierung der Freisetzung in einem Detaillierungsgrad, wie er für einen Langzeitsicherheitsnachweis erforderlich wäre, ist nicht Aufgabe der hier durchgeführten Untersuchung. Es waren daher an den Stellen, an denen dies im Rahmen der hier durchgeführten Untersuchung machbar war, Verbesserungen der Modellierung gegenüber dem auf /GRS 2009/ basierenden Szenario I einzuführen.

Das Szenario II berücksichtigt deshalb zusätzlich, dass bei Uran und Thorium Löslichkeitsgrenzen wirksam werden, da das Inventar der Asse an diesen Stoffen größer ist als die Menge, die theoretisch in der zugelaufenen Lösung lösbar wäre. Ansonsten wird aber wie in Szenario I davon ausgegangen, dass sämtliche anderen

Radionuklide in Lösung gehen und homogen in der das Grubengebäude füllenden Lösung verteilt werden.

Im Szenario II wird von einer Auspressung der Lösung in das Deckgebirge nach Volllaufen des Grubengebäudes über konkrete Wege ausgegangen. In Szenario I war dagegen willkürlich eine Auspressrate von 10.000 m<sup>3</sup> im Jahr – und unabhängig von einem konkreten Pfad - angesetzt. Die beiden Wege, über die die Freisetzung in das genutzte Grundwasser untersucht wird, sind:

- Störung mit kürzestem Weg durch das Deckgebirge (Pfad I),
- Störung entlang der geologischen Trennfläche S3/D9 als präferentieller Weg (Pfad II).

Damit ist sowohl ein wahrscheinlicher als auch ungünstigerer Pfad in die Untersuchungen einbezogen. Diese – wie auch weitere unten beschriebene – Variationen tragen bestehenden Unsicherheiten bezüglich des Freisetzungspfades etc. Rechnung. Diese Unsicherheiten lassen sich nicht verringern, solange keine ausreichenden Erkenntnisse vorliegen, die eine konkretere Vorhersage ablaufender Prozesse erlauben.

Da Sorptionsprozesse zwangsläufig beim Transport durch das Deckgebirge wirksam werden, werden auch diese berücksichtigt. Die Annahmen basieren auf publizierten Sorptionsdaten im Deckgebirge der Asse, die für die beiden ausgewählten Pfade I und II und ihre spezifischen Gesteinsschichten verwendet werden. Dieser Teil stützt sich auf den von INE gelieferten Grundlagen (/INE 2010/, siehe Anhang 1).

Eine wesentliche Einflussgröße für die mit der Sorption verbundenen Verzögerung des Transports von Radionukliden durch das Deckgebirge ist die Geschwindigkeit, mit der die Lösung die einzelnen Schichten des Deckgebirges durchdringt. Diese wurde für aktuelle Verhältnisse untersucht, kann sich aber bei zusätzlicher Auflockerung von Bereichen im Deckgebirge, beispielsweise durch Einstürzen von Hohlräumen des Grubengebäudes, wesentlich verändern. Diese Geschwindigkeit wird daher in Szenario II variiert, um auch ungünstigere Entwicklungen abzudecken. Die Auswahl der herangezogenen Geschwindigkeiten basiert auf bisherigen Untersuchungen zur Asse II. Sie sind nicht mit der von der GRS unterstellten Auspressrate von 10.000 m<sup>3</sup> im Jahr kompatibel, da ansonsten eine Freisetzung über eine unplausibel große Fläche erfolgen müsste. Bei dem in diesem Gutachten gewählten Modellansatz kann Abstandsgeschwindigkeit nicht zeitlich oder räumlich variiert werden, sondern muss entlang des gesamten Freisetzungspfades konstant gehalten werden. Die Richtung des Geschwindigkeitsvektoren ist durch den Pfad vorgegeben, die Dichteunterschiede zwischen der Salzlösung und dem Grundwasser werden vernachlässigt. Der unter realen Bedingungen erfolgte Transport im Deckgebirge findet räumlich und unter nicht stationären Bedingungen statt. Dabei kommt es real zur Strömungsverlangsamung in Richtung Grundwasserspiegel und Veränderungen der Strombahnen. Die hohe Dichte der ausgepressten Salzlösung wirkt zusätzlich dem Transport in Richtung Biosphäre entgegen. Eine vertiefte Analyse der Strömungsverhältnisse kann nur im Rahmen weiterführender Arbeiten erfolgen.



Im vorliegenden Gutachten werden die möglichen Konsequenzen anhand einer Variierung von Parametern dargestellt.

Der Ermittlung der Strahlenexposition wird in Szenario II ausschließlich das korrigierte Plutoniuminventar (28 kg) zugrunde gelegt, da die Berechnungen mit dem geringeren Plutoniuminventar in Szenario I nur der Vergleichbarkeit mit Ergebnissen aus /GRS 2009/ dienen.

Eine weitere Variierung betrifft, wie schon in Szenario I, die Berechnung der Strahlenexposition:

- einerseits mit Lebensgewohnheiten analog der AVV zu § 47 StrlSchV /AVV 2005/ (extrem ungünstige Lebensgewohnheiten),
- andererseits mit Lebensgewohnheiten analog den Berechnungsgrundlagen Bergbau /BglBb 2010/ (eher mittlere Lebensgewohnheiten).

Als **Nuklidinventar** wird – mit Ausnahme des Plutoniuminventars (siehe oben) - das Inventar aus /GSF 2002/ verwendet. Um den Einfluss dieser Korrektur auf das Gesamtergebnis zu zeigen, werden für das Szenario I auch Berechnungen mit dem ursprünglichen Nuklidinventar nach /GSF 2002/ vorgenommen.

Das inzwischen erfolgte Abklingen von Nukliden aus dem Inventar wird berücksichtigt, ebenso die Bildung von relevanten Tochternukliden, insbesondere von Americium-241 und Neptunium-237 sowie der Nuklide in der Thorium-Zerfallsreihe, denn diese erhöhen wiederum das radioaktive Inventar.

### **3 Modellierung von Transport im Deckgebirge und Strahlenexposition**

Das im Rahmen dieses Gutachtens entwickelte radioökologische Modell umfasst zwei Teile:

- Modellteil der Radionuklidmigration im Deckgebirge. Dieser Teil hat die zeitliche Entwicklung der Konzentration von Radionukliden im oberflächennahen Grundwasser als Ergebnis (Kapitel 3.1).
- Modellteil zur Beschreibung des durch eine Grundwassernutzung stattfindenden Transfers von Radionukliden und der möglichen Strahlenexposition von Personen (Kapitel 3.2).

Die zwei Modellteile wurden in ein Berechnungsprogramm implementiert.

#### **3.1 Modellierung der Radionuklidmigration im Deckgebirge unter Berücksichtigung von Löslichkeitsgrenzen und verschiedenen rückhaltenden sowie verzögernden Effekten**

Die Ergebnisse der Untersuchungen des Instituts für Nukleare Entsorgung (KIT-INE) zu den Löslichkeitsgrenzen sind in Kapitel 3.1.1 zusammengefasst. In Kapitel 3.1.2 wird das „Rührkesselmodell“ beschrieben, das für die Ermittlung der Konzentration von Radionukliden in der Lösung im Grubengebäude angesetzt wird. Die Auswahl von zwei kritischen Transportpfaden erfolgt in Kapitel 3.1.3. Für die Modellierung der Bewegung der Radionuklide im Grundwasser wird eine Transportgleichung herangezogen (siehe Kapitel 3.1.4), mit der der zeitliche Verlauf der in die Exfiltrationszone austretenden Radionuklide gewonnen wird und die Zeitpunkte der maximalen Aktivitätskonzentrationen im oberflächennahen Grundwasser bestimmt werden. Für die Berechnungen getroffene grundlegende Annahmen sind in Kapitel 3.1.5 zusammengestellt. Die detaillierten Angaben zu Transportparametern finden sich in Kapitel 3.1.6. Auf die Notwendigkeit der für einzelne Radionuklide zu berücksichtigenden gekoppelten Migration wird in Kapitel 3.1.7 eingegangen.

##### **3.1.1 Wirksamkeit von Löslichkeitsgrenzen**

Durch KIT-INE wurde untersucht, ob die vollständige Lösung von Radionukliden nach dem Absaufen der Asse möglich ist, bevor eine Sättigung der Lösung erfolgt. Die entsprechenden Untersuchungsergebnisse finden sich im Anhang 1.

Die Löslichkeit wird auch von Komplexbildnern beeinflusst, die mit den Abfällen ebenfalls eingelagert wurden. Hierzu zählen komplexierende Stoffgruppen wie beispielsweise Acetate, Oxalate, Tartrate und EDTA. Die eingelagerten Mengen belaufen sich auf 46,4 kg EDTA und etwa 40,5 Mg andere Komplexbildner. Die Gesamtmenge dieser Komplexbildner beläuft sich auf  $1,4 \cdot 10^5$  mol. Die Untersuchungen von

KIT-INE haben ergeben, dass die daraus resultierenden maximalen Konzentrationen in den Lösungen keine Auswirkungen auf die Löslichkeitsgrenzen haben.

Insgesamt führen die Untersuchungen von KIT-INE zum Ergebnis, dass die maximal gelösten Thorium- und Uran-Konzentrationen um einen Faktor 170 (für Thorium) bzw. 195 (für Uran) unter den Konzentrationen liegen, die sich rein rechnerisch aus den Inventaren und Volumina ergeben würden. Die Konzentrationen der anderen Radionuklide sind in dem unterstellten Lösungsvolumen durch das Inventar und nicht durch die Löslichkeit fester Phasen bestimmt.

### 3.1.2 Rührkesselmodell und die Retardationswirkung der Kammern

Für die Berechnungen wurde auftragsgemäß analog /GRS 2009/ von einer homogenen Verteilung der aus den Abfällen gelösten Radionuklide im Grubengebäude ausgegangen (Rührkesselmodell), um die Vergleichbarkeit mit den früheren Untersuchungen zu gewährleisten. Dieses Modell geht davon aus, dass die radioaktiven Stoffe homogen im gesamten Flüssigkeitsvolumen der Asse verteilt vorliegen (ein Zustand, wie er im Labor mit Hilfe eines sogenannten Rührkessels erreicht würde, in dem durch ständiges Rühren die Homogenisierung erreicht und aufrechterhalten wird).

Für die Berechnungen im Szenario II wird davon ausgegangen, dass die radioaktiven Stoffe homogen über ein Lösungsvolumen von  $1,3 \cdot 10^6 \text{ m}^3$  verteilt vorliegen. Dieses Volumen entspricht dem Initialvolumen vor dem Zeitpunkt der Carnallitumlösung. Den Berechnungen in Szenario I liegt die homogene Verteilung über ein Volumen von  $2,2 \cdot 10^6 \text{ m}^3$  nach Auflösung des Carnallitits zugrunde. Von der Auflösung des Carnallitits ist auszugehen, allerdings ist die homogene Vermischung nicht zwingend. Zur genaueren Untersuchung müssten zeitliche Abläufe und Inventare auch bezogen auf einzelne Einlagerungskammern einbezogen werden. In ausgepresster Lösung könnten dann auch höhere Konzentrationen auftreten als sie hier zugrunde liegen. Dies ist derzeit nicht ausreichend sicher zu beurteilen und es ist daher derzeit auch nicht möglich, sicher zu entscheiden, ob die hier getroffenen Annahmen insgesamt in jedem Fall konservativ sind. Allerdings gehen die weiteren Berechnungen von sehr langen Zeiträumen aus, über die Lösung mit entsprechender Radionuklidkonzentration in das Deckgebirge gepresst wird. Für Prozesse, die zu einer relativ homogenen Verteilung der gelösten Radionuklide im gesamten Lösungsvolumen führen, steht dann auch ein entsprechend langer Zeitraum zur Verfügung. Die homogene Verteilung kann daher als gute Näherung real zu erwartender Verhältnisse angesehen werden.

### 3.1.3 Fließsysteme und Transport im Deckgebirge

#### 3.1.3.1 Transportpfade

In /Colenco 2006b/ wurden Rechenfälle für den Transport der aus den Aquiferen des Deckgebirges austretenden Lösung in das Grubengebäude während der Be-

triebsphase und der aus dem gefluteten Grubengebäude ausgepressten Lösung in die Aquifer des Deckgebirges in der Nachbetriebsphase durchgeführt. Den für den Transport bestimmenden Druckverhältnissen im abgesoffenen Grubengebäude entsprechen die Bedingungen des zweitgenannten Rechenfalls.

Ausgehend aus diesen Ermittlungen wurden für die weiteren Untersuchungen zum Austrag der Radionuklide aus dem Grubengebäude durch das Deckgebirge zwei kritische Fließpfade – bevorzugte Wegsamkeiten für Radionuklidtransport – ausgewählt (Quelle: /FB Asse 2001/ aufgeführt in /Colenco 2006a/):

- **Pfad I:** Dieser Pfad verläuft angrenzend an verstütztes Deckgebirge durch den Röttaquitard und die Schichten des Muschelkalks entlang der Störung S5 und S4c (siehe Markierung Pfad I in Abbildung 3.1). Die Quelle der Radionuklidtransports aus dem Grubengebäudes heraus ist hier an den Ort des Übergangs zum Hutgestein verlagert. So ergibt sich der Pfad I als der Pfad mit der **kürzesten Distanz**, über die die aus dem Grubengebäude ausgepresste Lösung bis zu der Exfiltrationszone gelangen kann. Die Länge dieses Pfades beträgt etwa 240 m.
- **Pfad II:** Dieser Fad verläuft durch den Röttaquitard (Buntsandstein su) und die Schichten des Muschelkalks entlang der geologischen Trennfläche S3/D9 (Scherdeformationsbereich) an der Südflanke (siehe Markierung Pfad II in Abbildung 3.1). Der bergbaubedingt aufgelockerte Bereich der S3/D9 (Röttaquitard so) zusammen mit dem bergbaubedingt aufgelockerten Rötanhydrit so1Ab tragen aktuell die zulaufende Lösung zur Übertrittsstelle in etwa 500 m Teufe. Der Pfad über die Übertrittsstelle entlang der Trennfläche S3/D9 kann als möglicher **präferentieller Weg** für die aus dem Grubengebäude ausgepresste Lösung angesehen werden. Die Länge dieses Pfades beläuft sich auf etwa 420 m.

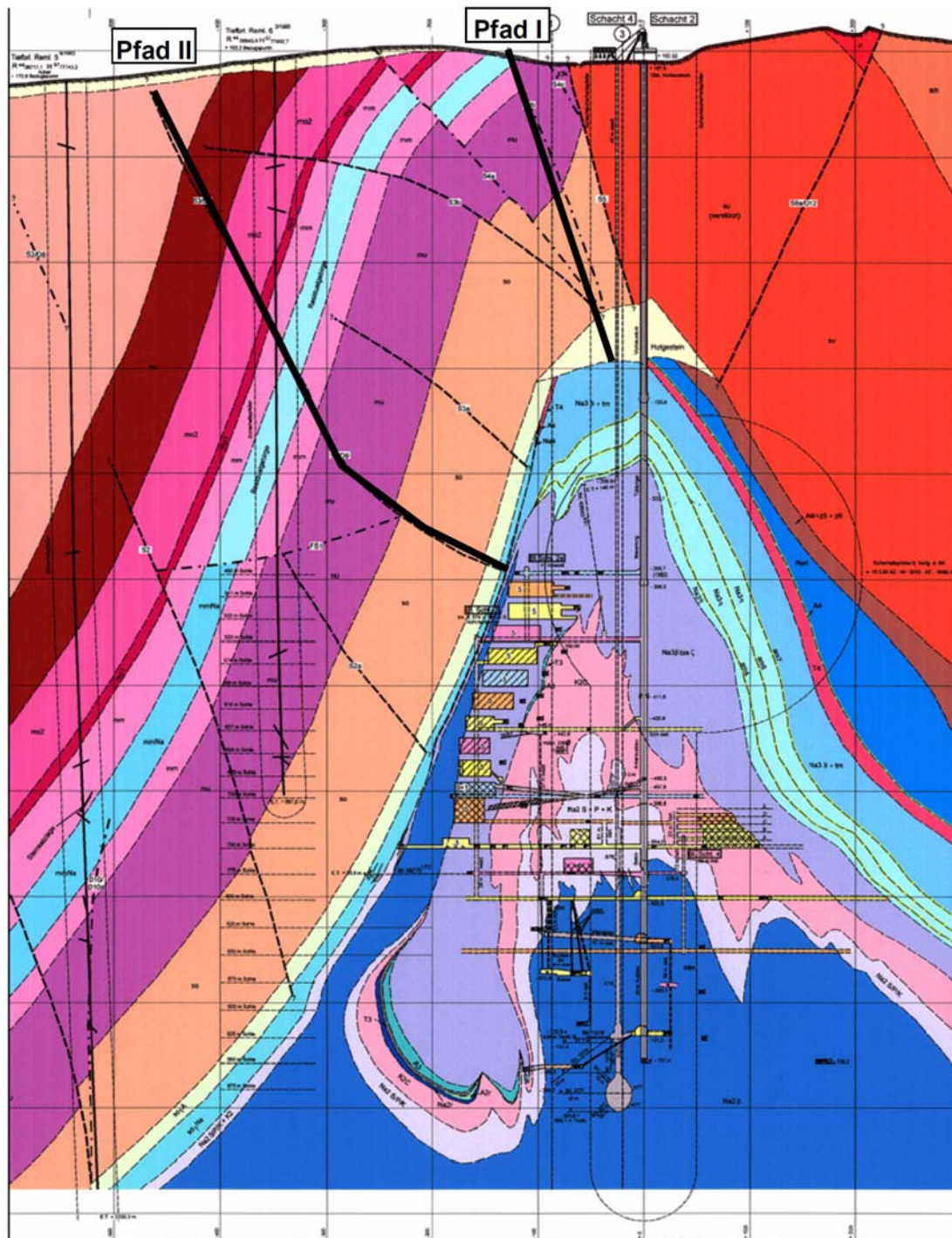


Abbildung 3-1: Querprofil 2 durch die Asse im Gebiet des Schachts Asse II (Salzstruktur mit Grubengebäude und Deckgebirge) und den hier untersuchten Pfaden I und II

Die bei diesen beiden Pfaden zu passierenden Gesteinsschichten und deren Mächtigkeiten sind in Tabelle 3.1 im Überblick zusammengestellt.

Tabelle 3-1: Typische mittlere Mächtigkeiten der hydrogeologischen Einheiten zur Ermittlung der Länge des Transportpfades I und II (basierend auf dem stilisierten Querschnitt aus /Colenco 2006a/ - siehe Abbildung 3.1)

Gestein	so	mu	mm	Rmm	mo1	mo2	ku
<b>Mächtigkeit [m]</b>	120	100	40	30	7,5	53	70
<b>Pfad I (so, mu)</b>	←	ca. 240 m	→	-			
<b>Insgesamt Pfad II</b>	←			ca. 420 m			→

so: Oberer Buntsandstein  
mu: Unterer Muschelkalk  
mm: Mittlerer Muschelkalk  
Rmm: Residualgebirge Mittlerer Muschelkalk  
mo1: Trochitenkalk  
mo2: Ceratiten-Schichten  
ku: Untere Kreide

Die Differenzierung der Schichten in /INE 2010/ weicht in einigen Fällen von dem Schlüssel von /Colenco 2006a/ ab. Der Abgleich der Differenzierung und der Bezeichnungen nach /Colenco 2006a/ und /INE 2010/ ist der Tabelle 3-2 zu entnehmen:

Tabelle 3-2: Abgleich der Differenzierung der Gesteinsschichten nach /Colenco 2006a/ und /INE 2010/

Gesteinsschicht	/Colenco 2006a/	in /INE 2010/ K <sub>d</sub> ermittelt für
<b>Oberer Buntsandstein</b>	so	so
<b>Unterer Muschelkalk - Wellenkalk</b>	mu (mu1-4)	mu
		mu1-3
<b>Mittlerer Muschelkalk</b>	mm	mm
<b>Residualgebirge Mittlerer Muschelkalk</b>	Rmm	
<b>Bez. für mm der Dolomit-Mergel-Serie</b>		mm2
<b>Trochitenkalk</b>	mo1	mo*
<b>Ceratiten-Schichten</b>	mo2	mo*
<b>Untere Kreide</b>	ku	K <sub>d</sub> nicht ermittelt

\*in /INE 2010/ nicht differenziert

Im Folgenden werden die hydraulischen Verhältnisse ausgehend von /Colenco 2006a, Colenco 2006b/ in den einzelnen geologischen Formationen der Pfade – Buntsandstein, Muschelkalkschichten und Trennflächen bzw. Störungen - beschrieben. Basierend auf diesen Überlegungen werden in Kapitel 3.1.5 die An-

nahmen bezüglich der zum Transport beitragenden Fließverhältnisse nach dem Absaufen des Grubengebäudes abgeleitet.

### 3.1.3.2 Für den Transport relevante Eigenschaften der geologischen Formationen

#### Buntsandstein

Die Struktur des Rötanhydrits so1A und des Rötquitards so1-so4 (siehe Abbildungen 3.1 und 3.2) in der Südwestflanke der Schachtanlage Asse ist sowohl tektonisch als auch durch geogene, bergbaubedingte Aktivitäten gestört /Colenco 2006a/. Die Durchlässigkeiten sind von der Tiefe abhängig. Bis zur Teufe von 650 m werden durch bergbaubedingte Grubenkonvergenz stark erhöhte Durchlässigkeiten angenommen /Colenco 2006a/.

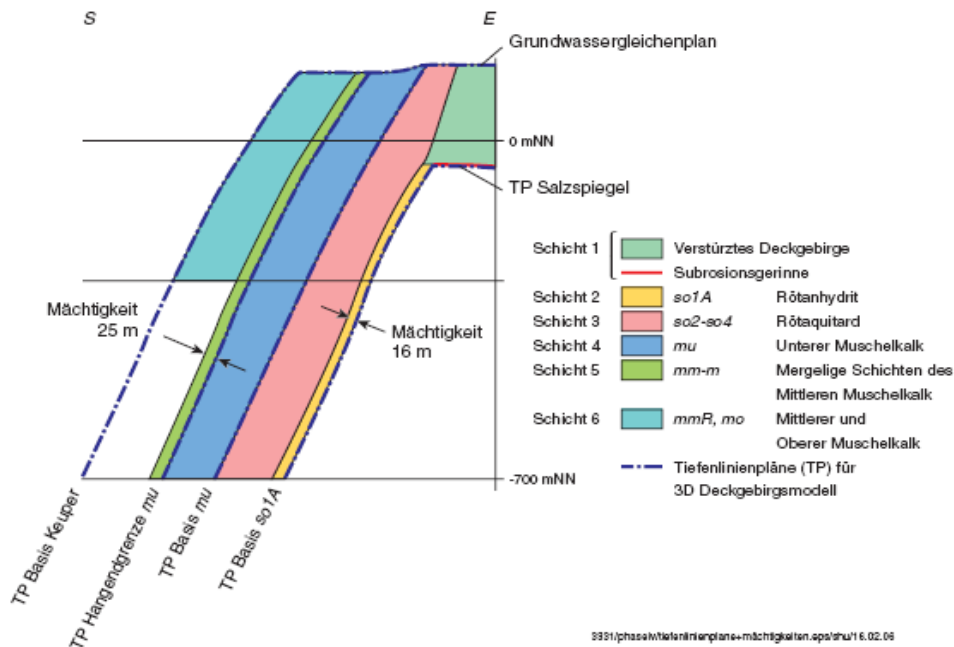


Abbildung 3-2: Stilisiertes Querschnittsdiagramm durch das Deckgebirgsmodell mit den hydrogeologischen Einheiten /Colenco 2006b/

#### Kluft- und Matrixströmung im Muschelkalk

Der Muschelkalk des Deckgebirges der Asse ist ein Kluftgrundwasserleiter /Colenco 2006a/. Die Bewegung des Gebirgswassers erfolgt bevorzugt über Wegsamkeiten wie Klüfte, Risse etc. Im Porenraum zwischen den Wegsamkeiten (Matrix) ist die Wasserbewegung stark eingeschränkt. Über die Diffusionsvorgänge an der Grenze Kluft-Matrix kommt es zu einem Übergang der gelösten Stoffe in die Matrix. Die Diffusionsvorgänge in der Matrix bewirken eine Verringerung der Konzentration mit zunehmendem Abstand zur Quelle.

### **Trennfläche S3/D9 und Störungen**

In der als präferentieller Weg wirkenden Trennfläche S3/D9 ist bergbaubedingt eine aufgelockerte Zone entstanden, die als Scherdeformationsbereich S3/D9 bezeichnet wird /Colenco 2006b/.

#### **3.1.3.3 Druckverhältnisse**

Nach dem Absaufen des Grubengebäudes erfolgt eine Auspressung der Lösung in Richtung der Erdoberfläche. Dabei leistet das Grundwasser des Deckgebirges einen hydraulischen Widerstand gegen die Auspressung der Lösung aus dem Grubengebäude. In /Colenco 2006b/ wird als Folge eine Steigerung des Lösungsdrucks vor der Übertrittszone Grubengebäude/Deckgebirge im Rötanhydrit so1 (siehe Abbildung 3.1) erwartet, die in ihrer Rückwirkung die Konvergenzrate des Grubengebäudes beeinflusst. Somit wären gegenüber dem in /GRS 2009/ gewählten Ansatz sowohl niedrigere Auspressraten als die 10.000 m<sup>3</sup> im Jahr in /GRS 2009/ als auch niedrigere Strömungsgeschwindigkeiten zu erwarten. Bei der Modellierung werden hier die Verhältnisse innerhalb eines plausiblen Bereichs variiert.

#### **3.1.4 Transportgleichung**

Eine genaue Berechnung des Transports und der Verbreitung der Radionuklide im Deckgebirge würde ausreichende Erkenntnisse bezüglich aller relevanten Eigenschaften des Deckgebirges voraussetzen und ist bislang nicht möglich. Für die hier durchgeführten Modellberechnungen wurden analytische Lösungen der 2D- und 1D-Dipersions-Konvektions-Transportgleichung herangezogen, auf deren Basis sich für die Aufgabenstellung des vorliegenden Gutachtens ausreichende Schlussfolgerungen ziehen lassen.

Die 2D-Berechnungen erfolgten ausgehend von der analytischen Lösung der Transportgleichung für eine Linienquelle für einen instantanen Schadstoffeintrag nach /Bonka 2004/. Die Parameter in der für die 2D-Berechnung abgeleiteten Gleichung wurden so gewählt, dass der Transport in longitudinaler Richtung (x-Richtung) dominiert, indem der y-Wert bei der Berechnung auf sein Minimum gesetzt wurde. Die transversale Dispersion (y-Richtung) ist dann gering und entspricht 1/60 der longitudinalen Dispersion.

Die 1D-Berechnungen wurden ausgehend aus der analytischen Lösung der Transportgleichung nach /Beims 1997/ für eine Punktquelle sowie für einen instantanen Schadstoffeintrag durchgeführt. Der Radionuklidtransport setzt an einer Punktquelle an und erfolgt ausschließlich in der longitudinalen (x-Richtung) entlang des Transportpfades. Dabei spielt nur die longitudinale Dispersion eine Rolle.

Durch aufeinander folgende Berechnungen mit immer neuen Schadstoffeinträgen und der Addition der Beiträge an einem bestimmten Ort und in einem bestimmten Jahr wird die zeitliche Entwicklung der Kontamination in Gestein und Wasser ermit-



telt. Die sich daraus ergebende Konzentration in einem bestimmten Jahr wird dann nach Gleichung (3.0) errechnet.

$$c(t_N) = \sum_{n=1}^N c(t_{N-(n-1)}, A(t_{n-1})) \quad (3.0)$$

(Erklärung der Symbole siehe nach Gleichungen (3.1) und (3.2))

Nachfolgend sind die Transportgleichungen für die 2D-Modellierung (Gleichung (3.1)) und für die 1D-Modellierung (Gleichung (3.2)). Auf einzelne Parameter wird in Kapitel 3.1.6 eingegangen.

$$c^{2D} = \frac{E_0}{4\pi \cdot t \cdot h \cdot (D'_x \cdot D'_y)^{\frac{1}{2}}} \cdot \exp\left[-\frac{(x - u'_a \cdot t)^2}{4D'_x \cdot t} - \lambda \cdot t\right] \cdot \exp\left[-\frac{y^2}{4D'_y \cdot t}\right] \quad (3.1)$$

$$c^{1D} = \frac{E_0}{2 \cdot An_f \cdot (\pi \cdot t \cdot D'_x)^{\frac{1}{2}}} \cdot \exp\left[-\frac{(x - u'_a \cdot t)^2}{4D'_x \cdot t} - \lambda \cdot t\right] \quad (3.2)$$

dabei sind (siehe auch Abbildung 3-3):

$$u'_a = \frac{u_a}{R} \quad (3.3)$$

$$D'_x = \frac{D_x}{R} \quad (3.4)$$

$$D'_y = \frac{D_y}{R} \quad (3.5)$$

$$R = 1 + \frac{1 - \varepsilon}{\varepsilon} \cdot \rho_B \cdot K_d \quad (3.6)$$

$$D_x = a_x \cdot u_a \quad (3.7)$$

$$D_y = \frac{D_x}{60} \quad (3.8)$$

$$u_a = \frac{u_f}{\varepsilon} \quad (3.9)$$

$$a_x = 0,03 \cdot X^{0,3+} \cdot X^{-0,075} \quad (3.10)$$

In den Gleichungen (3.0), (3.1) und (3.2) bedeuten:

$A(t_{n-1})$  Aktivitätseintrag [Bq/a] im Jahr  $t_{n-1}$

$c^{1D/2D}$  Aktivitätskonzentration im Zielbereich für 1D- bzw. 2D-Modellierung [Bq/m<sup>3</sup>]

$E_0$  pulsförmiger Eintrag durch eine Aktivitätskonzentration an der Quelle [Bq]  
(bei einem über mehrere Jahre andauernden Eintrag erfolgt eine entsprechende Überlagerung)

---

$D_x$	longitudinaler Dispersionskoeffizient (in x-Richtung) als Summe aus den Dispersionskoeffizienten und molekularen Diffusionskoeffizienten (molekulare Diffusion vernachlässigt) [ $\text{m}^2/\text{a}$ ]
$D'_x$	longitudinaler Dispersionskoeffizient unter Mitberücksichtigung der Retardation durch Sorptionsprozesse [ $\text{m}^2/\text{a}$ ]
$D_y$	transversaler Dispersionskoeffizient (in y-Richtung) als Summe aus den Dispersionskoeffizienten und molekularen Diffusionskoeffizienten (molekulare Diffusion vernachlässigt) [ $\text{m}^2/\text{a}$ ]
$D'_y$	transversaler Diffusionskoeffizient unter Berücksichtigung der Retardation durch Sorptionsprozesse [ $\text{m}^2/\text{a}$ ]
$a_x$ bzw. $a_y$	longitudinale bzw. transversale Dispersionslänge (Dispersivität) [m]
$u_a$	Abstandsgeschwindigkeit (Geschwindigkeit, mit der das betrachtete Radionuklid ohne Dispersion und Diffusion transportiert würde) [m/a]
$u'_a$	Abstandsgeschwindigkeit unter Berücksichtigung der Retardation [m/a]
$u_f$	Filtergeschwindigkeit [m/a]
$\lambda$	Zerfallskonstante (für den radioaktiven Zerfall) [ $1/\text{a}$ ]
$h$	Linienquelle über die Höhe $h$ (1 m) [m]
$t$	Zeit [a]
$x$	transversale Wegstrecke [m]
$y$	longitudinale Wegstrecke [m]
$R$	Retardationsfaktor [-]
$\varepsilon$	mittlere effektive Porosität (Porenvolumen) [-]
$\rho_B$	Dichte der Schicht [kg/l]
$K_d$	mittlerer Sorptionskoeffizient [ml/g] (Verhältnis zwischen der Konzentration des Elements in der festen Phase und Konzentration des Elements in der flüssigen Phase)
$An_f$	durchströmbare Punktquelle von Fläche $A$ in $\text{m}^2$ mit fiktivem Hohlraumanteil $n_f$ [-]

Abbildung 5.3 zeigt schematisch eine Schicht mit der Linienquelle.

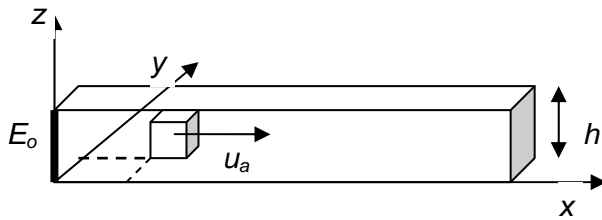


Abbildung 3-3: Schema einer Schicht mit der Linienquelle

### 3.1.5 Grundlegende Annahmen für die Berechnungen

Es werden folgende grundlegende Annahmen getroffen:

- Der Haupttransport erfolgt entlang der x-Achse bzw. des Pfades (Störung).
- Daraus resultiert der Vektor der Abstandsgeschwindigkeit und eine dominierende Verschmierung bzw. Verringerung der Konzentration der Transportfront durch longitudinale Dispersion in dieser Richtung. In der 2D-Berechnung wurde für die transversale Dispersion ein möglichst kleiner Wert ausgewählt (siehe Kapitel 3.1.4 und Gleichung (3.2)). Die Bereiche der Werte der Dispersionskoeffizienten wurden entsprechend den Gesteinen und den Geschwindigkeiten ausgehend aus /FUGRO 2010/ und /Colenco 2006a/ ermittelt (siehe Kapitel 3.1.6.3). Dabei wurde die Bedeutung der Skalenabhängigkeit der longitudinalen Dispersionslänge in Zusammenhang mit der longitudinalen Dispersion geprüft und so gewählt, dass möglichst hohe Konzentrationsmaxima resultieren (siehe Kapitel 3.1.6.3).
- Für die jeweiligen Abschnitte der durchströmten Schichten des Muschelkalks und Buntsandsteins wurde ein konstanter Wert der Abstandsgeschwindigkeit angenommen (siehe Kapitel 3.1.6.3).
- Eine Punktquelle (1D-Berechnung) bzw. eine Linienquelle (2D-Berechnung, Höhe 1 m) befindet sich jeweils am Anfang des Pfades, d. h. am Übergang vom Grubengebäude in das Hutgestein/Deckgebirge (siehe auch Abbildung 5.1).
- Der Quelle ist die Aktivitätskonzentration der Radionuklide in einem Kubikmeter der Lösung aus dem Rührkesselmodell zum Zeitpunkt des Austrags aus dem Grubengebäude zugeordnet.
- Der Zeitpunkt  $t=0$  bezieht sich auf das Jahr 2011.
- Wird eine reale Ausbreitung der Salzlösung unterstellt, kommt es zu einer starken Veränderung des geochemischen Milieus, so dass Radionuklide aus dem Gesteinsvolumen mobilisiert werden könnten. In diesem Zusammenhang wird in /FUGRO 2010/ auf die „induzierte Mobilisierung“ aufmerksam

gemacht, die allerdings eine gesonderte Betrachtung und Modellierung erfordern würde. Diese Fragenstellung ist nicht Gegenstand dieses Berichtes.

- Die Konzentration ist im Porenraum – sowohl in der mobilen als auch in der Haftwasserphase – homogen und der gesamte Porenraum wird für die Migration mitberücksichtigt. Diese Betrachtung ist für die Aufgabestellung dieses Gutachtens hinreichend. Der in /FUGRO 2010/ angesprochene Effekt der „scheinbaren Retardation“, wo nur die mobile Phase durchgeströmt wird, würde eine tiefer greifende Betrachtung erfordern.

### 3.1.6 Transportparameter

#### 3.1.6.1 Porosität und Dichte

Die für die Berechnung der Retardationsfaktoren (Gleichung (3.6)) erforderlichen Werte der Porositäten in Abhängigkeit von der Tiefe wurden aus /Colenco 2000b/ übernommen (siehe Tabelle 3-2). Hierbei handelt es sich um die fluidzugänglichen bzw. transportwirksamen Porositäten des für die Migration zu berücksichtigenden Porenraumes.

Eine Analyse der Strömungsverhältnisse in der aufgelockerten Störungszone (Scherdeformationsbereich) als einer eigenständigen transportwirksamen Struktur und in den vorkommenden Kluftstrukturen des Muschelkalks ist im Rahmen dieser Studie und der vorgestellten Ansätze nicht möglich. Für die relevanten Gesteinsschichten wurden Porenzahlen eingeführt, die den Transport begünstigen. Für die Bereiche des Röttaquitards so2-so4 wurde der Wert von 10 % aus /Colenco 2006b/ übernommen. /FUGRO 2010/ empfiehlt in diesem Zusammenhang für diese Bereiche größere Werte der Porenzahl einzusetzen.

Die Porosität der Gesteinsformationen nach /Colenco 2006a/ ist teufenabhängig in Tabelle 3-3 zusammen gestellt. Die für die transportwirksamen Schichten typischen Dichten – entsprechend den Porenzahlen - sind aus /Prinz 1991/ entnommen und in Tabelle 3.3 aufgeführt.

Tabelle 3-3: Porosität der Gesteinsformationen nach /Colenco 2006a/ in Abhängigkeit von der Teufe

Teufe [m]	mo	Rmm*	mm	mu	mu 1-3*	so
0-200	0,06	0,075	0,05	0,06	0,06	0,1
200 - 400	0,04	0,075	0,05	0,04	0,04	0,1
400-600	0,04	0,075	0,05	0,04	0,04	0,075
> 600	0,03	0,075	0,05	0,03	-	-

\* Da für das Residualgebirge keine Werte der Sorptionskoeffizienten ermittelt wurden, sind diese in der Retardationsberechnung nicht berücksichtigt

Tabelle 3-4: Mittlere Porositäten und entsprechende Dichten der Gesteinsformationen nach /Prinz 1991/

<b>Muschelkalk mo</b>		<b>Buntsandstein so</b>	
Porenzahl $\epsilon$	Dichte $\rho$	Porenzahl $\epsilon$	Dichte $\rho$
[%/100]	[kg/l]	[%/100]	[kg/l]
0,06	2,65	0,15	2,3

### 3.1.6.2 Sorptionskoeffizienten und Retardationsfaktor

Der dem Transport maßgebend entgegenwirkende Parameter ist die Sorption der Radionuklide an der Oberfläche des durchströmten Gesteins, ausgedrückt als Sorptionskoeffizient  $K_d$ . Diese Eigenschaft fließt in die Berechnung des Transportes in der Form des Retardationsfaktors ein (siehe Gleichung (3.6)). Bei der Strömung durch den aufgelockerten Buntsandstein und Scherdeformationsbereich ist durch höhere Durchlässigkeiten und somit kürzere Kontaktzeiten sowie kleinere Kontaktfläche eine Reduktion der Retardation zu erwarten.

Die von KIT-INE ermittelten Sorptionskoeffizienten wurden für Gesteinsschichten untersucht, in denen die Porenzahlen zwischen 25 % und 0,3 % variierten. In den Schichten, die hohen Porenzahl aufweisen (wie Bereiche des Röttaquitards – siehe Kapitel 3.1.6.1) wurde nach /INE 2010/ allerdings auch bei den meisten Radionukliden ein hoher Sorptionskoeffizient  $K_d$  festgestellt, so dass trotz einer höheren Porenzahl auch die nach der Gleichung (3.6) berechnete Retardation eher größer ist. (In /Colenco 2006b/ wurden die Transportberechnungen grundsätzlich für einen Tracer ohne Sorption durchgeführt, was zu unterschiedlichen Ergebnissen führt.)

Die  $K_d$ -Werte sind in Tabelle 3-5 ausgehend von den Untersuchungen der Bohrungen R5 und R6 zusammengefasst (siehe Anhang 1 /INE 2010/). Diese Bohrungen wurden im Bereich der transportwirksamen Schichten des Pfades II durchgeführt und können auch für den Pfad I übernommen werden. Nach Gleichung (3.6) wurden die Retardationsfaktoren für alle Schichten (Muschelkalk, Buntsandstein) und Teufen je Element berechnet und bei der Migrationsberechnung angesetzt (siehe Tabelle 3-6). Beim Transport entlang einer Störung muss die Sorption nicht der im homogenen Gestein entsprechen, sondern kann geringer sein. Außerdem sind, insbesondere bei Aktiniden, kolloidale Transportmechanismen bekannt. Um die Wirkung der Sorption insgesamt nicht zu überschätzen wurden daher für Plutonium in den Berechnungen die niedrigen  $K_d$ -Werte des Strontiums angesetzt.

Tabelle 3-5: Mittlere Sorptionskoeffizienten im Deckgebirge nach /INE 2010/

<b>Mittlere Sorptionskoeffizienten im Deckgebirge der Schachanlage Asse (Kd) [mg/l]</b>						
<b>Gestein</b>	<b>mo</b>	<b>mm2</b>	<b>mm</b>	<b>mu</b>	<b>mu 1-3</b>	<b>so</b>
<b>CO32-</b>	3	2	1,5	9	8	1,8
<b>Se</b>	0,04	0,4	0,05	0,1	0,08	0,3
<b>Sr</b>	7	3	1,3	1,5	1	49
<b>Tc</b>	1,4	0,1	0,5	1,3	1,5	1
<b>I</b>	12,6	1	3	0,6	0,5	1,4
<b>Cs</b>	1500	120	540	870	280	339
<b>Pb</b>	140	50	70	75	75	74
<b>Ra</b>	138	39	50	60	125	5830
<b>Ac</b>	2000	311	140	227	400	676
<b>Pa</b>	10000	4000	3000	4000	4000	12718
<b>U</b>	15	0,5	4	3,5	3	2,4
<b>Np</b>	1500	120	540	870	280	339
<b>Pu</b>	6000	361	3000	2000	1000	5866
<b>Am</b>	10000	900	10000	10000	5000	13182
<b>Cm</b>	1000	217	4000	438	500	125

Tabelle 3-6: Berechnete Retardationsfaktoren (dimensionslos) für Gesteine im Deckgebirge

<b>Tiefe [m]</b>	<b>Gestein</b>					
	<b>mo*</b>	<b>mm2**</b>	<b>mm</b>	<b>mu</b>	<b>mu 1-3</b>	<b>so</b>
<b>CO32-</b>						
<b>0-200</b>	125,6	66,4	76,5	374,7	333,1	43,9
<b>200 - 400</b>	191,8	66,4	76,5	573,4	509,8	43,9
<b>400-600</b>	191,8	66,4	76,5	573,4	509,8	59,8
<b>&gt; 600</b>	258,1	66,4	76,5	772,2		
<b>Se</b>						
<b>0-200</b>	2,7	14,1	3,5	5,2	4,3	8,2
<b>200 - 400</b>	3,5	14,1	3,5	7,4	6,1	8,2
<b>400-600</b>	3,5	14,1	3,5	7,4	6,1	10,8
<b>&gt; 600</b>	4,4	14,1	3,5	9,6		
<b>Sr</b>						
<b>0-200</b>	291,6	99,1	66,5	63,3	42,5	1169,7
<b>200 - 400</b>	446,2	99,1	66,5	96,4	64,6	1169,7
<b>400-600</b>	446,2	99,1	66,5	96,4	64,6	1602,5
<b>&gt; 600</b>	600,8	99,1	66,5	129,5		
<b>Tc</b>						
<b>0-200</b>	59,1	4,3	26,2	55,0	63,3	24,9
<b>200 - 400</b>	90,0	4,3	26,2	83,7	96,4	24,9
<b>400-600</b>	90,0	4,3	26,2	83,7	96,4	33,7
<b>&gt; 600</b>	121,0	4,3	26,2	112,4		

Tabelle 3-6 - Fortsetzung

Teufe [m]	Gestein					
	mo*	mm2**	mm	mu	mu 1-3	so
<b>I</b>						
<b>0-200</b>	524,1	33,7	152,1	25,9	21,8	34,4
<b>200 - 400</b>	802,4	33,7	152,1	39,2	32,8	34,4
<b>400-600</b>	802,4	33,7	152,1	39,2	32,8	46,8
<b>&gt; 600</b>	1080,6	33,7	152,1	52,4		
<b>Cs</b>						
<b>0-200</b>	62276,0	3923,0	27190,0	36120,5	11625,7	8086,2
<b>200 - 400</b>	95401,0	3923,0	27190,0	55333,0	17809,0	8086,2
<b>400-600</b>	95401,0	3923,0	27190,0	55333,0	17809,0	11080,7
<b>&gt; 600</b>	128526,0	3923,0	27190,0	74545,5		
<b>Pu</b>						
<b>0-200</b>	249101,0	11799,7	151051,0	83034,3	41517,7	139905,1
<b>200 - 400</b>	381601,0	11799,7	151051,0	127201,0	63601,0	139905,1
<b>400-600</b>	381601,0	11799,7	151051,0	127201,0	63601,0	191721,4
<b>&gt; 600</b>	514101,0	11799,7	151051,0	171367,7		
<b>Am</b>						
<b>0-200</b>	415167,7	29416,0	503501,0	415167,7	207584,3	314391,7
<b>200 - 400</b>	636001,0	29416,0	503501,0	636001,0	318001,0	314391,7
<b>400-600</b>	636001,0	29416,0	503501,0	636001,0	318001,0	430832,7
<b>&gt; 600</b>	856834,3	29416,0	503501,0	856834,3		
<b>U</b>						
<b>0-200</b>	623,8	17,3	202,4	146,3	125,6	58,2
<b>200 - 400</b>	955,0	17,3	202,4	223,6	191,8	58,2
<b>400-600</b>	955,0	17,3	202,4	223,6	191,8	79,4
<b>&gt; 600</b>	1286,3	17,3	202,4	300,9		
<b>Np</b>						
<b>0-200</b>	62276,0	3923,0	27190,0	36120,5	11625,7	8086,2
<b>200 - 400</b>	95401,0	3923,0	27190,0	55333,0	17809,0	8086,2
<b>400-600</b>	95401,0	3923,0	27190,0	55333,0	17809,0	11080,7
<b>&gt; 600</b>	128526,0	3923,0	27190,0	74545,5		
<b>Ra</b>						
<b>0-200</b>	5730,3	1275,7	2518,5	2492,0	5190,6	139046,5
<b>200 - 400</b>	8777,8	1275,7	2518,5	3817,0	7951,0	139046,5
<b>400-600</b>	8777,8	1275,7	2518,5	3817,0	7951,0	190544,8
<b>&gt; 600</b>	11825,3	1275,7	2518,5	5142,0		
<b>Pb</b>						
<b>0-200</b>	5813,3	1635,2	3525,5	3114,8	3114,8	1765,9
<b>200 - 400</b>	8905,0	1635,2	3525,5	4771,0	4771,0	1765,9
<b>400-600</b>	8905,0	1635,2	3525,5	4771,0	4771,0	2419,6
<b>&gt; 600</b>	11996,7	1635,2	3525,5	6427,3		

\* Gleiche Porosität wie mu

\*\* Porosität von mo übernommen

### 3.1.6.3 Abstandsgeschwindigkeiten und Dispersionskoeffizienten

In die Berechnung der zeitlichen Konzentrationsentwicklung entlang der Pfade I und II mit Hilfe der Gleichungen (3.1) und (3.2) fließt der Wert der Abstandsgeschwindigkeit  $u_a$  in Transporthauptrichtung ein. Die Transporthauptrichtung ist durch den jeweiligen Pfad I bzw. Pfad II gegeben.

Für die Berechnung wurden im **ersten Schritt** Werte der Filtergeschwindigkeiten aus dem Berechnungsfall „Nachbetriebsphase“ aus /Colenco 2006b/ übernommen, und zwar die ungünstigsten Maxima von bis zu 0,3 m/a, die im Scherdeformationsbereich auftreten würden. Daraus wurden die entsprechenden möglichen Werte der Abstandsgeschwindigkeiten je Gestein bzw. Porosität nach Gleichung (3.9) abgeleitet.

Um zu beurteilen, wie sich beispielsweise durch stärkere Auflockerungen im Bereich größerer Konvergenz erhöhte Abstandsgeschwindigkeiten auf den Transport der Radionuklide auswirken können, wurde im **zweiten Schritt** die Sensitivität gegenüber einer Erhöhung der Abstandsgeschwindigkeiten analysiert. Ausgehend von der Berechnung im ersten Schritt wurde die Sensitivitätsanalyse für die dosisrelevanten Radionuklide C-14, Cl-36, Se-79, Tc-99, I-129, U-234, Np-237, Pu-239 und Am-241 und für die in der Tabelle 3.6 aufgeführten Abstandsgeschwindigkeiten für die Pfade I und II bestimmt.

Da nach /Colenco 2006a/ eine extrem hohe Variabilität des Transportraumes und der Durchlässigkeitskoeffizienten, teils verursacht durch bergbaubedingte Aktivität, ermittelt wurde, ist es angemessen, auch höhere Werte der Abstandsgeschwindigkeiten über längere Distanzen (entlang des ganzen Pfades I) konstant anzunehmen.

#### **Skalenabhängigkeit der Dispersionslänge und der Dispersionskoeffizienten**

Die größeren Dispersionskoeffizienten führen zu einem schnelleren Eintreten des Maximums bei einer stärkeren Verschmierung der Front, was zu niedrigeren maximale Konzentrationen bei einem früheren Eintreten in das oberflächennahe Grundwasser führt. Mit einer Reduktion des Dispersionskoeffizienten wird das Maximum der Konzentrationen höher, tritt aber mit einer deutlichen zeitlichen Verschiebung ein. Für die Berechnung ist daher die Wahl eines niedrigeren Dispersionskoeffizienten konservativ. Ein Vergleich der ausgehend von Gleichung (3.10) berechneten Dispersionslängen /FUGRO 2010/ und von mit Gleichung (3.7) berechneten Dispersionskoeffizienten mit den Ergebnissen in /Colenco 2006b/ ergab, dass die Dispersionskoeffizienten etwas niedriger sind als nach /Colenco 2006b/, aber in der gleichen Größenordnung liegen. Nach /Colenco 2006b/ wurde für die Dispersionslänge ein Wert von 15 m angesetzt. Die Dispersionslänge wurde als globaler Parameter verwendet, das heißt als Parameter, für den in allen hydrogeologischen Einheiten gleiche Werte angenommen werden /Colenco 2006b/. Berechnungen nach Gleichung (3.10) ergaben Werte für die Dispersionslänge von bis zu 8,5 m.

Für die weiteren Berechnungen wurde hier ein Wert von 10 m für die Dispersionslänge angesetzt, welcher für die betrachtete Distanz als konstant angenommen



werden kann. Anschließend wurden für die Abstandsgeschwindigkeiten die entsprechenden Dispersionskoeffizienten berechnet. Die von /Colenco 2006b/ ermittelte Dispersionslänge von 100 m für die Klufftströmung im Muschelkalk war für diesen Spezialfall angenommen worden und wurde für die Betrachtungen im Rahmen dieser Studie nicht mitberücksichtigt.

Der Einfluss der Richtungen der Grundwasserströmung (Geschwindigkeitsvektoren) konnte im Rahmen der hier durchgeführten Untersuchungen nicht berücksichtigt werden. Die Werte der Abstandsgeschwindigkeiten und der entsprechenden Dispersionskoeffizienten sind in Tabelle 3-7 zusammengefasst.

Tabelle 3-7: Variierte Werte der aus den Filtergeschwindigkeiten abgeleiteten Abstandsgeschwindigkeiten und entsprechender longitudinaler Dispersionskoeffizienten für eine Dispersionslänge von 10 m

Abstandsgeschwindigkeit $u_a$ [m/a]	Dispersionskoeffizient $D_x$ [m <sup>2</sup> /a]	
	berechneter Wert	gerundeter Wert für die weiteren Berechnungen
0,03	9,51294E-09	1E-08
0,3	9,51294E-08	1E-07
0,5	1,58549E-07	1E-07
0,8	2,53678E-07	1E-07
1	3,17098E-07	1E-07
2	6,34196E-07	1E-07
3*	9,51294E-07	1E-06
4	1,26839E-06	1E-06
5	1,58549E-06	1E-06
6	1,90259E-06	1E-06
10	3,17098E-06	1E-06

\* max. Geschwindigkeitserhöhung im Nahbereich der Zutrittstelle – Scherdeformationsbereich

### 3.1.7 Gekoppelte Migration von Radionukliden

Zur Berücksichtigung der gekoppelten Migration von Radionukliden in Zerfallsreihen wurde im Unterauftrag von FUGRO-HGN /FUGRO 2010/ (siehe Anhang 2) ein Ansatz erarbeitet, der direkt in das bestehende Berechnungsverfahren implementiert werden konnte und mit dessen Hilfe der Dosisbeitrag von während des Transportes entstandenen Tochternukliden ermittelt werden kann. Die Annahmen zur Festlegung des Geltungsbereichs dieses Ansatzes sind /FUGRO 2010/ zu entnehmen. Lösungen des Ansatzes für Radionuklide, die über migrierende Mutternuklide nicht nachgebildet werden, beschreiben eine „isolierte Migration“. Bei Lösungen, die die Nachbildung von Tochternukliden (auch in der sorbierten Phase) berücksichtigen, handelt es sich um eine „gekoppelte Migration“.

Für welche Radionuklide bzw. Zerfallsreihen die Berücksichtigung der gekoppelten Migration erforderlich ist, ergibt sich aus der den Transport bestimmenden Parameterkombination.

Je nach der Länge der Distanz zwischen Quellort und Entnahmeort und dem Verhältnis zwischen der mittleren Abstandsgeschwindigkeit, dem Retardationsfaktor und der Zerfallskonstante des jeweiligen Radionuklids, kann die radioaktive Umwandlung den Migrationsprozess dominieren. Die maßgebende Entscheidungsgröße ist die Migrationslänge  $L_i$  für das Nuklid  $i$ , die wie folgt über Abstandsgeschwindigkeit  $u_a$ , Retardationsfaktor  $R$  und Zerfallskonstante  $\lambda$  definiert wird /FUGRO 2010/:

$$L_i = \frac{u_a}{R_i \cdot \lambda_i} \quad (3.11)$$

Die Migrationslänge beschreibt die Abnahme der Konzentration im Peak (Scheidepunkt) vollständig. Zur Entscheidung, ob die gekoppelte Migration für die Ermittlung der Strahlenexposition relevant ist, ist Folgendes zu berücksichtigen:

- Ist die Migrationslänge sehr viel kleiner als die gesamte Migrationsstrecke, so dominiert die Umwandlung durch radioaktiven Zerfall die Migration.
- Diejenigen Radionuklide, deren Anfangsaktivität so groß ist, dass die Konzentration am Entnahmeort bei isolierter Migration relevant sein kann, sind auch Bezugsnuklide für die gekoppelte Migration.
- Das Aktivitätsverhältnis von Mutter- und Tochternukliden im Grundwasser wird durch das Verhältnis der Retardationsfaktoren bestimmt (siehe Gleichung (3.12)).

$$C_i(X) = \frac{R_{i-1}}{R_i} \cdot C_{i-1}(X) \quad (3.12)$$

Ob und welche Radionuklide der Zerfallsreihen relevant sind, wurde ausgehend aus der Bestimmung von deren Migrationslängen und dem Verhältnis zur Länge des jeweiligen Pfades vom Eintritt in das Deckgebirge bis ins oberflächennahe Grundwasser ermittelt. Die Radionuklide wurden in zwei Gruppen unterteilt:

- Gruppe 1 – Radionuklide mit gekoppelter Migration
- Gruppe 2 – Radionuklide mit isolierter Migration

Für alle variierten Werte der Abstandsgeschwindigkeiten (ab 1 m/a bis 6 m/a) sowie für die beiden Pfade I und II ergeben sich identische Eingruppierungen, die in Tabelle 3-8 aufgeführt sind. Die Zerfallsreihen der der Gruppe 1 zugehörigen Radionuklide wurden als mögliche Systeme der gekoppelten Migration geprüft.

Tabelle 3-8: Einteilung der Radionuklide in die Gruppen mit gekoppelter Migration (Gruppe 1) und isolierter Migration (Gruppe 2)

Radionuklide der Gruppe 1	Radionuklide der Gruppe 2
C-14	Se-79
Sr-90	Tc-99
Cs-137	I-129
Pu-241	Th-232*
Pu-240	Th-230*
Pu-239	Th-229*
Pu-238	U-238
Th-228	Np-237
Am-241	
Ra-226	
Ra-228	
Ra-225	
Ra-224	
Pb-210	
Pa 231	

\* Da für Thorium in /INE 2010/ kein Sorptionskoeffizient untersucht wurde, ist der Retardationsfaktor gleich 1.

## 3.2 Beschreibung des hier verwendeten Modells zur Berechnung der Strahlenexposition

Im nachfolgenden Kapitel wird der Teil der radioökologischen Modellierung beschrieben, mit dem die möglichen Strahlenexpositionen für die Szenarien I und II ermittelt werden. Dieser Teil des radioökologischen Modells setzt dort an, wo ein Eintrag radioaktiver Stoffe in nutzbares Wasser beginnt. Vorgänge bis zum Eintrag in das nutzbare Wasser werden in Kapitel 3.1 behandelt.

### 3.2.1 Grundlagen

Die aus den Expositionsszenarien resultierende Strahlenexposition wird als Organ-dosis der jeweils betroffenen Organe pro Jahr berechnet. Die effektive Dosis ist die Summe der gewichteten Organdosen gemäß Anlage VI Teil C StrlSchV.

Die Referenzpersonen sind Einzelpersonen der Bevölkerung der Altersgruppen  $\leq 1$  Jahr,  $> 1$  bis  $\leq 2$  Jahre,  $> 2$  bis  $\leq 7$  Jahre,  $> 7$  bis  $\leq 12$  Jahre,  $> 12$  bis  $\leq 17$  Jahre und  $> 17$  Jahre. Daher sind alle Altersgruppen der Strahlenschutzverordnung enthalten.

### 3.2.2 Expositionsszenarien und Parameter

Für die Berechnung der Strahlenexposition von Einzelpersonen der Bevölkerung werden folgende gemäß Kapitel 5 des Entwurfs der AVV zu § 47 StrlSchV /AVV 2005/ für die innere Strahlenexposition bei Ableitungen mit Wasser relevanten Expositionspfade berücksichtigt:

- Trinkwasser,
- Wasser – Fisch,
- Viehtränke – Kuh – Milch,
- Viehtränke – Tier – Fleisch,
- Beregnung – Pflanze,
- Beregnung – Futterpflanze – Tier – Milch,
- Beregnung – Futterpflanze – Tier – Fleisch,
- Muttermilch infolge der Aufnahme radioaktiver Stoffe durch die Mutter über alle o. g. Ingestionspfade sowie über die Inhalation resuspendierter Bodenpartikel.

Bei der Anwendung auf Freisetzungen aus einem Endlager ist es sinnvoll, zusätzlich die Inhalation von resuspendierten Bodenpartikeln auf beregneten Flächen zu berücksichtigen, da dieser Expositionspfad insbesondere bei langlebigen Alphastrahlern relevant werden könnte. Analog /Pröhl 2002/ wird von einer Konzentration von  $2 \cdot 10^{-5}$  g/m<sup>3</sup> Staubgehalt der Atemluft bei einer Anreicherung der Radionuklide in den inhalierten Partikeln gegenüber dem Mittelwert in den oberen 10 cm Boden von einem Faktor 5 ausgegangen.

Ebenfalls berücksichtigt wird der Verzehr von Boden, da auch dieser bei langlebigen Alphastrahlern als Beitrag zur Dosis relevant werden könnte. Analog den Berechnungsgrundlagen Bergbau wird von einer Verzehrsmenge von 50 g im Jahr bei Kindern im Alter von 1 bis 2 Jahren, von 30 g im Jahr bei Kindern im Alter von 2 bis 7 Jahren und von 6 g im Jahr bei Kindern ab dem Alter von 7 Jahren bis hin zu Erwachsenen ausgegangen. Beim Verzehr von kontaminiertem Weidegras durch Vieh und der Anreicherung von Radioaktivität in Milch und Fleisch wird zusätzlich zu den Verzehrsmengen für Vieh nach AVV die unbeabsichtigte Ingestion von beregneten Boden von 500 g/d nach /Pröhl 2002/ berücksichtigt.

Darüber hinaus wird als relevanter Expositionspfad für die äußere Strahlenexposition der Aufenthalt auf beregneten landwirtschaftlichen Flächen betrachtet.

Der Expositionspfad „Aufenthalt auf Ufersediment“ wurde nicht berücksichtigt, da in der Nähe der Asse keine größeren Flüsse existieren, über die Radionuklide auf Ufersedimenten, in Überschwemmungsgebieten oder auf Spülfeldern in hoher Konzentration abgelagert werden können. Auch die in /Pröhl 2002/ unterstellte Verwendung von Boden als Baumaterial wird nicht modelliert, da diese für den hier zu untersuchenden Zeithorizont nicht anzunehmen ist. Aufgrund der geringen Bedeutung der Direktstrahlung ist aber auch nicht zu erwarten, dass diese Pfade wesentlich zur Gesamtstrahlenexposition beitragen könnten.

Die in dieser Berechnung analog der AVV /AVV 2009/ berücksichtigten Lebensgewohnheiten der Referenzperson entsprechen den altersspezifischen Verzehrsmengen der AVV /AVV 2009/. Zur Berücksichtigung des 95. Perzentils der jährlichen Verzehrsmengen werden die Faktoren des Anhangs 5 Tabelle 1 Spalte 8 Tabelle 1 der AVV berücksichtigt.

Beim Verzehr von Fisch wird die Deckung der jährlich verzehrten Menge an Fischfleisch durch ausschließlichen Verzehr von Süßwasserfisch berücksichtigt, der im radioaktiv kontaminierten Fischteichwasser lebt. Ansonsten könnte nicht davon ausgegangen werden, dass beim Eintreten des Szenarios „Speisung eines Fischteichs mit kontaminiertem Grundwasser“ die ermittelte Dosis nicht unterschätzend ist.

Die analog der Berechnungsgrundlagen Bergbau zugrunde gelegten Lebensgewohnheiten entsprechen den darin festgelegten Verzehrsmengen einschließlich der jeweiligen Anteile lokal erzeugter Lebensmittel sowie den entsprechenden Aufenthaltszeiten im Freien. In Tabelle 3-9 sind die Lebensgewohnheiten der Einzelpersonen der Bevölkerung im Überblick dargestellt.

Tabelle 3-9: In den Berechnungen für die Referenzpersonen verwendete Verzehrsmenü (in kg/a) und Aufenthaltszeiten im Freien (in h/a)

	Altersgruppe					
	≤1 Jahr	>1 - ≤2 Jahre	>2 - ≤7 Jahre	>7 - ≤12 Jahre	>12 - ≤17 Jahre	> 17 Jahre
<b>Lebensgewohnheiten analog AVV zu § 47 StrlSchV</b>						
Trinkwasser	110*	200	200	300	400	700
Muttermilch, Milchfertigprodukte mit Trinkwasser	320	-	-	-	-	-
Milch, Milchprodukte	135	480	480	510	510	390
Fisch	2,5	15	15	22,5	25	37,5
Fleisch, Fleischprodukte	10	26	100	130	160	180
Blattgemüse	9	18	21	27	33	39
Sonstige pflanzliche Produkte	204	366	580	655	670	610
Aufenthalt im Freien	8760	8760	8760	8760	8760	8760
<b>Lebensgewohnheiten analog Berechnungsgrundlagen Bergbau</b>						
Trinkwasser	55**	100	100	150	200	350
Muttermilch, Milchfertigprodukte mit Trinkwasser	200	-	-	-	-	-
Milch, Milchprodukte	22,5	80	80	85	85	65
Fisch	0,25	1,5	1,5	2,25	2,5	3,75
Fleisch, Fleischprodukte	2,5	6,5	25	32,5	40	45
Blattgemüse	1,5	3	3,5	4,5	5,5	6,5
Sonstige pflanzliche Produkte	30	51	70	77,5	75	65
Boden (Direktverzehr)	0	0,05	0,03	0,006	0,006	0,006
Aufenthalt im Freien	1000	1000	1000	1000	1000	1000

\* alternativ bei Ernährung ohne Muttermilch: 430 l/a

\*\* alternativ bei Ernährung ohne Muttermilch: 215 l/a

Alle verwendeten Nutzungsparameter sowie Parameter und Koeffizienten zur Quantifizierung von chemischen, physikalischen und biologischen Prozessen wie z. B. Berechnungsraten, Futtermenge von Tieren, Migrationsraten von Radionukliden in Acker- und Weideboden, pflanzenverfügbare Wurzelraum von Acker und Weideboden, Koeffizienten zur Anreicherung von Radionukliden in Lebensmitteln und in Muttermilch, Atemraten, Flächentrockenmasse für Acker- und Weideboden, Ertragsmengen für Pflanzen und Weidegras entsprechen den Parametern der AVV zu § 47 StrlSchV /AVV 2005/. Die einzige Abweichung besteht darin, dass entsprechend /Pröhl 2002/ für Chlor die gleiche Migrationsrate wie für Technetium und für Kalzium die gleiche Migrationsrate wie für Strontium verwendet wird. Dies entspricht auch eher den real zu erwartenden Gegebenheiten.

Die Expositionspfade sind im Überblick in Abbildung 3-4 dargestellt.

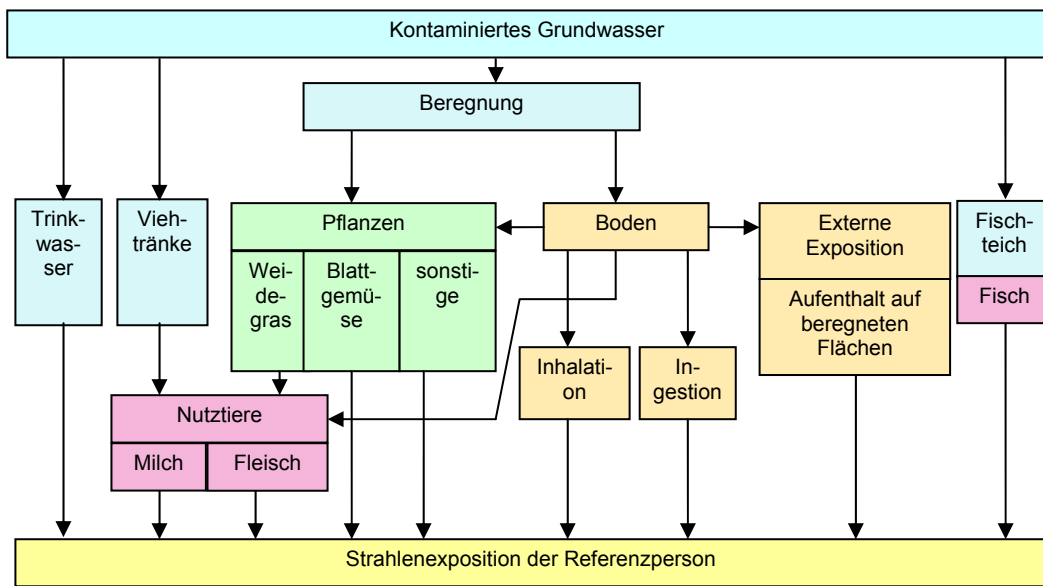


Abbildung 3-4: Überblick über die berücksichtigten Expositionspfade

### 3.2.3 Berechnung der Aktivitätskonzentration von Beregnungswasser, Boden, Fischteichwasser und Lebensmitteln

In diesem Kapitel wird die Berechnung der Aktivitätskonzentration von Nutzwasser, beregnetem Boden und Lebensmitteln erläutert, die sich bei einer Freisetzung von radioaktiv kontaminiertem Grundwasser durch ein Absaufen der Asse gemäß diesem Modellansatz ergibt. Die Aktivitätskonzentrationen im Nutzwasser, Boden und in Lebensmitteln sind Ausgangsgrößen für die nachfolgende Berechnung der Strahlenexposition des Menschen. Zugleich können diese Ergebnisse in den weiteren Untersuchungen im Hinblick auf die Möglichkeiten eines Monitorings zur Überwachung der Freisetzung von Radionukliden in die Biosphäre bewertet werden.

#### Zeitabhängige Nuklidkonzentration im Grundwasser, Fischteichwasser, Beregnungswasser und Tränkwasser

Die zeitabhängige Nuklidkonzentration im Grundwasser ist einerseits Eingangsgröße zur Berechnung der Strahlenexposition über den Pfad Trinkwasserkonsum und andererseits Eingangsgröße zur Berechnung der Aktivitätskonzentration von Fischteichwasser sowie von Boden, der beregnet wird und auf dem Lebensmittel erzeugt werden oder sich Menschen aufhalten.

Darüber hinaus ist die zeitabhängige Nuklidkonzentration im Grundwasser und für andere Zwecke genutztem Wasser eine wichtige Größe für ein Monitoring zur Überwachung der Freisetzung von Radioaktivität in die Biosphäre.

Es wird wie in /GRS 2009/ davon ausgegangen, dass die Asse über einen Zeitraum von 30 Jahren vollläuft. Ohne Berücksichtigung von Wechselwirkungen zwischen

Salzlauge, eingelagerten Stoffen und Radionukliden und ohne Berücksichtigung von Löslichkeitsgrenzen ergibt sich als Ausgangsmenge an Flüssigkeit für die Berechnung der Nuklidkonzentration das Gesamtporenvolumen von  $2,2 \cdot 10^6 \text{ m}^3$  nach dem Ende aller Umlösungsprozesse im Grubengebäude. Bis zur Nutzung des kontaminierten Wassers wird in /GRS 2009/ eine Verdünnung mit dem Faktor 1100 angesetzt, da sonst wegen des Salzgehalts keine Trinkwasserqualität erreicht wird. In Szenario I wird hier ebenfalls dieser Verdünnungsfaktor angesetzt. Dies ist auch in Szenario II der Fall, da in der 1D-Modellierung die Salzlösung konzentriert ausgepresst wird und daher am Ende der Wegstrecke im Deckgebirge ein nicht als Trink- oder Beregnungswasser nutzbares Wasser vorliegt. Die Nutzung ist erst möglich, wenn sich durch eine Vermischung mit anderem Wasser die Salzkonzentration reduziert hat, was dann auch in Szenario II wiederum eine Vermischung im Verhältnis 1:1100 voraussetzt.

Für den Fischteichpfad ist im Szenario I Cäsium-137 dosisrelevant. Der Konzentrationsfaktor für Fisch kann nach /AVV 2005/ als Festwert oder als auf den Kaliumgehalt des Wassers bezogener Wert angesetzt werden, da bei zunehmendem Kaliumgehalt im Wasser Cäsium von Süßwasserfisch weniger stark angereichert wird (Kalium und Cäsium können sich bei der Aufnahme wechselseitig ersetzen). Abschätzungen der im als Trinkwasser geeigneten Grundwasser enthaltenen Kaliumkonzentration haben ergeben, dass ein mindestens um den Faktor 9 reduzierter Konzentrationsfaktor für Cäsium-137 in Fisch angesetzt werden kann. Der Einfluss auf die Gesamtstrahlenexposition wird weiter unten angegeben. Dies bedeutet auch, dass die Annahme einer größeren Verdünnung der Salzlösung mit anderem Wasser bis zum Zulauf in einen Fischteich, nur begrenzte Auswirkungen auf die Strahlenexposition über den Fischteichpfad hat, da Cäsium-137 dann wieder stärker von Fisch aufgenommen werden kann. Es wird in den Berechnungen davon ausgegangen, dass Beregnungswasser, Tränkwasser für Vieh und Fischteichwasser ebenfalls auf das Niveau von Trinkwasser verdünnt ist.

Die Aktivitätskonzentration im Grundwasser wird in Szenario I wie folgt berechnet (in Szenario II ergibt sie sich aus Gleichung (3.2) mit anschließender Verdünnung um den Faktor 1100):

$$C_{GW,r}(t) = \frac{A_r(t=0)}{V_G \cdot 1100} \cdot e^{(-\lambda_r \cdot t - 3,15576E+7)} \quad (3.13)$$

Dabei bedeuten

$C_{GW,r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  im Grundwasser zur Zeit  $t$  [Bq/l]

$A_r$ : Gesamtaktivität des Nuklids  $r$  [Bq]

$V_G$ : Gesamtvolumen nach Umlösung von Carnallit [l]

1100: Faktor für die Verdünnung zu Trinkwasser [-]

$\lambda_r$ : Zerfallskonstante des Nuklids  $r$  [ $\text{s}^{-1}$ ]

$t$ : Zeit vor dem ersten Jahr, in dem die Strahlenexposition auftritt [a]

3,15576E+7: Umrechnungsfaktor von Jahren in Sekunden [-]



Die Aktivitätskonzentration des ersten Tochternuklids zwischen dem Bezugszeitpunkt des Nuklidinventars des Mutternuklids (01.01.2003) und dem Jahr, für das die Strahlenexposition ermittelt wird, wird wie folgt berechnet:

$$C_{GW,TN}(t) = C_{MN}(t=0) \cdot \lambda_{TN} \cdot \frac{e^{-\lambda_{MN} \cdot t \cdot 3,15576E+7} - e^{-\lambda_{TN} \cdot t \cdot 3,15576E+7}}{(\lambda_{TN} - \lambda_{MN})} \quad (3.14)$$

Dabei bedeuten

$C_{GW,TN}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Tochternuklids im Grundwasser zur Zeit  $t$  [Bq/l]

$C_{MN}(t=0)$ : Aktivitätskonzentration des Mutternuklids zum Zeitpunkt  $t=0$  [Bq/l]

$\lambda_{MN}$ : Zerfallskonstante des Mutternuklids [ $s^{-1}$ ]

$\lambda_{TN}$ : Zerfallskonstante des Tochternuklids [ $s^{-1}$ ]

$t$ : Zeit vor dem ersten Jahr, in dem die Strahlenexposition auftritt [a]

3,15576E+7: Umrechnungsfaktor von Jahren in Sekunden [-]

Bei Radionukliden in Zerfallsketten, die im Gleichgewicht stehen, wird in Szenario I vom Fortbestand des Gleichgewichts ausgegangen, in Szenario II wird ggf. die gekoppelte Migration berücksichtigt.

## Berechnung der Bodenkontamination von Beregnungsflächen

Die Berechnung der Aktivitätskonzentration des Bodens ist Voraussetzung für die Berechnung der Strahlenexposition bei Aufenthalt auf Flächen sowie Grundlage für alle weiteren Berechnungen zur Aufnahme von Radionukliden aus dem Boden durch Pflanzen und zur Ingestion von Boden durch Tiere und durch Menschen.

Im ersten Schritt wird die Kontamination des beregneten Bodens als Aktivität pro Bodenfläche berechnet. Diese ergibt sich aus dem Produkt der Aktivitätskonzentration des Beregnungswassers, der Beregnungsrate pro Vegetationsperiode, der Anzahl der Tage im Jahr, an denen beregnet wird, sowie dem Umrechnungsfaktor von Tagen in Sekunden:

$$K_{Boden,r}(t) = C_{BW,r}(t) \cdot W \cdot t_R \cdot 8,64E+4$$

(3.15)

Dabei bedeuten

$K_{Boden,r}(t)$ : Kontamination der Bodenoberfläche für das Nuklid  $r$  zur Zeit  $t$  [Bq/m<sup>2</sup>]

$C_{BW,r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Beregnungswassers zur Zeit  $t$  [Bq/l]

$W$ : Beregnungsrate [l m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>]

$t_R$ : Anzahl der Tage im Jahr, an denen beregnet wird [d]

8,64E+4: Faktor zur Umrechnung von Tagen in Sekunden [-]

Im zweiten Schritt erfolgt die Berechnung der Aktivitätskonzentration des Bodens. Diese wird auf den Wurzelraum für Pflanzen bezogen und ist als pflanzenverfügbare Kontamination des berechneten Ackers bzw. der berechneten Weide Eingangsgröße für die Berechnung der Radionuklidaufnahme durch die Pflanzen, die von Menschen verzehrt oder von Nutztieren gefressen werden. Der Zerfall der jährlich auf den Boden einer berechneten Fläche aufgetragenen Radionuklide und der Verlust von Radionukliden durch Migration in tiefere Schichten werden berücksichtigt. Ackerboden und Weideboden unterscheiden sich im Hinblick auf die Nutzung und Bearbeitung, so dass nach /AVV 2005/ jeweils unterschiedliche Migrationsraten und Massenbelegungen der Bodenfläche (Bodenmassen des Wurzelbereichs der Pflanzen, bezogen auf 1 m<sup>2</sup> Bodenflächen) angesetzt werden. Die Aktivitätskonzentration im pflanzenverfügbaren Wurzelraum des Ackers ergibt sich in Szenario I (in dem die Nuklidkonzentration mit der Zeit nur über den radioaktiven Zerfall variiert) aus:

$$K_{\text{Acker},r}(t) = \sum_{n=1}^t \frac{K_{\text{Boden},r}(t)}{p_A} \cdot e^{-(\lambda_r + \lambda_{M,A,r})} \cdot 3,14476\text{E}+7 \cdot (t - n) \quad (3.16)$$

Dabei bedeuten

$K_{\text{Acker},r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  zur Zeit  $t$  im pflanzenverfügbaren Wurzelraum des Ackers [Bq/kg]

$K_{\text{Boden},r}(t)$ : Kontamination der Bodenoberfläche für das Nuklid  $r$  zur Zeit  $t$  [Bq/m<sup>2</sup>]

$p_A$ : Flächentrockenmasse des Ackerbodens [kg/m<sup>2</sup>]

$\lambda_r$ : physikalische Zerfallskonstante des Nuklids  $r$  [s<sup>-1</sup>]

$\lambda_{M,A,r}$ : Migrationsrate des Nuklids  $r$  für Acker [s<sup>-1</sup>]

3,14476E+7: Faktor zum Umrechnung von Jahren in Sekunden [-]

$t$ : Zeitraum, über den der Eintrag in den Boden erfolgt [a]

Die Berechnung der pflanzenverfügbaren Kontamination von berechneten Weideflächen erfolgt analog.

In Szenario II werden für jedes Jahr die resultierenden Radionuklidkonzentrationen im genutzten Grundwasser ermittelt und die gleiche Fläche über 100 aufeinander folgende Jahre berechnet. In der Modellierung wird in jedem Jahr auch mit der Berechnung einer weiteren Fläche begonnen, so dass jährlich bis zu 100 verschiedene Flächen, die mit Wasser unterschiedlicher Konzentrationen berechnet wurden, vorliegen. Aus diesen Flächen wurde dann die Fläche ausgewählt, deren Nutzung zur maximalen Strahlenexposition führen würde.

Durch die Ernte von Pflanzen und das Abgrasen durch Weidevieh wird ein Teil der Radioaktivität wieder von der kontaminierten Fläche entfernt. Dies wird in der Modellierung berücksichtigt, indem die entsprechenden Aktivitätsmengen der Pflanzen in den Berechnungen für die Folgejahre abgezogen werden. Dieser Effekt wird hier berücksichtigt; er ist nicht in den Modellen nach /AVV 2005/ und /BglBb 2010/ implementiert. Die Berechnung erfolgt mit Gleichung (3.17).

$$A_{Acker,r}^A(t) = K_{Acker,r}(t) \cdot TF_{Pf,r} \cdot \frac{Y_{Bl} + Y_{Pf}}{2 \cdot p_A} \quad \text{und} \quad A_{Weide,r}^A(t) = K_{Weide,r}(t) \cdot TF_{Wd,r} \cdot \frac{Y_{Wd}}{p_{Wd}} \quad (3.17)$$

Dabei bedeuten (bezogen auf Ackerflächen, Weideflächen entsprechend)

$A_{Acker,r}^A(t)$ : Aktivitätsaustrag des Nuklids  $r$  im Jahr  $t$  aus einer Ackerfläche [Bq/kg]

$K_{Acker,r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  im Jahr  $t$  im pflanzenverfügbaren  
Wurzelraum des Ackers [Bq/kg]

$TF_{Pf,r}$ : Transferfaktor Boden-Ackerpflanzen des Nuklids  $r$  (Bq/kg Feuchtmasse  
Pflanze)/(Bq/kg Trockenmasse Boden) [-]

$Y_{Bl}$ : jährlicher Ertrag an Blattgemüse (Frischmasse) [kg/m<sup>2</sup>]

$Y_{Pf}$ : jährlicher Ertrag an sonstigen pflanzlichen Produkten (Frischmasse) [kg/m<sup>2</sup>]

$p_A$ : Flächentrockenmasse des Ackerbodens [kg/m<sup>2</sup>]

$t$ : Zeitraum, über den der Austrag erfolgt [a]

## Berechnung der Aktivitätskonzentration von Pflanzen

Ausgangsgröße für die Berechnung der Aktivitätskonzentration von Pflanzen sind die Aktivitätskonzentration des Beregnungswassers, mit welchem die Pflanzen oberirdisch kontaminiert werden, und die Aktivitätskonzentration des Ackers bzw. des Weidebodens im pflanzenverfügbaren Wurzelbereich. Es wird zwischen Blattgemüse, pflanzlichen Produkten ohne Blattgemüse auf Ackerflächen sowie Weidegras auf Weideflächen unterschieden. Unterschiede in der Aktivitätskonzentration von Pflanzen ergeben sich vor allem durch für diese drei Gruppen unterschiedliche angenommene Bewuchsdichten (entsprechend /AVV 2005/), da mit dem auf die Fläche bezogenen Menge an Beregnungswasser dann eine unterschiedliche Pflanzenmasse kontaminiert wird.

Die Aktivitätskonzentration von Blattgemüse auf Ackerflächen wird wie folgt berechnet:

$$C_{Bl,r}(t) = C_{Bw,r}(t) \cdot \frac{W \cdot f_w}{Y_{Bl}(\lambda_r + \lambda_v)} \cdot (1 - e^{-(\lambda_r + \lambda_v)t_{e,Bl}}) + K_{Acker,r}(t) \cdot TF_{Bl} \quad (3.18)$$

Dabei bedeuten

$C_{Bl,r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  für Blattgemüse zur Zeit  $t$  [Bq/l]

$C_{Bw,r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  im Beregnungswasser zur Zeit  $t$  [Bq/l]

$W$ : Beregnungsrate [l m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>]

$f_w$ : Anteil der auf der Pflanze bei der Beregnung abgelagerten Aktivität [-]

$Y_{Bl}$ : Ertrag an Blattgemüse (Frischmasse) [kg/m<sup>2</sup>]

$\lambda_r$ : physikalische Zerfallskonstante des Nuklids  $r$  [s<sup>-1</sup>]

$\lambda_v$ : Verweilkonstante für den Verbleib des Radionuklids auf der Vegetation [s<sup>-1</sup>]

$t_{e,Bl}$ : Kontaminationszeit während der Wachstumsperiode für Blattgemüse [s]

$K_{Acker,r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  zur Zeit  $t$  im pflanzenverfügbaren  
Wurzelraum des Ackers [Bq/kg]

$TF_{Bl}$ : Transferfaktor Boden-Blattgemüse (Bq/kg Feuchtmasse Pflanze)/(Bq/kg Trockenmasse Boden) [-]

Die Berechnung der Aktivitätskonzentration für andere pflanzliche Produkte außer Blattgemüse und für Weidegras erfolgt analog.

## Berechnung der Aktivitätskonzentration von Milch und Fleisch

Die Berechnung der Aktivitätskonzentration in Milch und Fleisch ist für die Berechnung der aus dem Verzehr dieser Nahrungsmittel resultierenden Strahlenexposition der Referenzperson erforderlich.

Die Berechnung der Kontamination von Milch und Fleisch ergibt sich aus der über das Futter aufgenommenen Aktivität. Dabei wird die Aufnahme von Radionukliden über den Verzehr von Weidegras mit jeweils darauf abgelagerten und darin eingelagerten Radionukliden, den Verzehr von radioaktiv kontaminiertem Tränkwasser sowie der Aufnahme von Weideboden, der durch radioaktiv kontaminiertes Wasser berechnet wurde, berücksichtigt.

Die Konzentration in Milch wird wie folgt berechnet:

$$C_{Mi,gesamt,r}(t) = \left[ C_{Wd,direkt,r}(t) \cdot \dot{M}_{Fu} + C_{Wd,Transfert,r}(t) \cdot \dot{M}_{Fu} + K_{Weide,r}(t) \cdot \dot{M}_{Bo} + C_{TraenkW,r}(t) \cdot \dot{M}_{Tr} \right] \cdot TF_{Mi} \quad (3.19)$$

Dabei bedeuten

$C_{Mi,gesamt,r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  in Milch durch Verzehr von berechnetem Weidegras, Tränkwasser und Boden zur Zeit  $t$  [Bq/kg]

$C_{Wd,direkt,r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  in Weidegras durch direkte Ablagerung bei der Berechnung zur Zeit  $t$  [Bq/kg]

$C_{Wd,Transfert,r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  in Weidegras durch Bodentransfer zur Zeit  $t$  [Bq/kg]

$K_{Weide,r}(t)$ : pflanzenverfügbare Kontamination der berechneten Weide mit dem Nuklid  $r$  zur Zeit  $t$  [Bq/kg]

$C_{TraenkW,r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  in Tränkwasser zur Zeit  $t$  [Bq/l]

$\dot{M}_{Fu}$ : tägliche Futtermasse der Weidetiere (Feuchtmasse) [kg/d]

$\dot{M}_{Bo}$ : tägliche Masse an aufgenommenem Boden durch Weidetiere [kg/d]

$\dot{M}_{Tr}$ : täglicher Wasserkonsum der Tiere [l/d]

$TF_{Mi}$ : Transferfaktor Futter/Wasser-Milch [d/kg Milch]

Die Berechnung der Kontamination in Fleisch erfolgt analog unter Verwendung des Transferfaktors für Futter in Fleisch.

## Berechnung der Aktivitätskonzentration von Fischfleisch

Die Berechnung der Aktivitätskonzentration von Fischfleisch ist Ausgangsgröße für die weitere Berechnung der Strahlenexposition durch Verzehr von Fisch. Die Aktivi-

tätskonzentration in Fisch ergibt sich unmittelbar aus der Nuklidkonzentration im Wasser des Fischteichs.

Die Aktivitätskonzentration in Fisch wird wie folgt berechnet:

$$C_{\text{Fisch},r}(t) = C_{\text{Fischteich},r}(t) \cdot TF_{\text{Fisch}} \quad (3.20)$$

Dabei bedeuten

$C_{\text{Fisch},r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  in Fisch zur Zeit  $t$  [Bq/kg]

$C_{\text{Fischteich},r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  im Wasser des Fischteichs zur Zeit  $t$  [Bq/l]

$TF_{\text{Fisch}}$ : Konzentrationsfaktor Wasser-Fisch [l/kg]

### 3.2.4 Berechnung der Strahlenexposition durch Verzehr von Nahrungsmitteln

In diesem Abschnitt wird die Berechnung der Strahlenexposition auf Basis der zuvor ermittelten Aktivitätskonzentrationen für Nahrungsmittel dargestellt. Als weiterer Beitrag zur inneren Strahlenexposition kommt der unabsichtliche Verzehr von Boden durch Kleinkinder hinzu.

#### Berechnung der Dosis durch Trinkwasserkonsum

Die Dosis durch Trinkwasserkonsum wird wie folgt berechnet:

$$H_{T_w,T,R,r}(t) = C_{T_w,r}(t) \cdot U_{T_w,R} \cdot g_{T,R,r} \quad (3.21)$$

Dabei bedeuten

$H_{T_w,T,R,r}(t)$ : Dosis durch Trinkwasserkonsum des Organs  $T$  der Referenzperson  $R$  durch das Nuklid  $r$  zur Zeit  $t$  [Sv/a]

$C_{T_w,r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  im Trinkwasser zur Zeit  $t$  [Bq/l]

$U_{T_w,R}$ : Trinkwasserkonsum pro Jahr für die Referenzperson  $R$  [l/a]

$g_{T,R,r}$ : Dosiskoeffizient für Ingestion für das Organ  $T$ , die Referenzperson  $R$  und das Nuklid  $r$  [Sv/Bq]

#### Berechnung der Dosis durch Verzehr von auf beregneten Flächen erzeugten Nahrungsmitteln

Die Berechnung der Dosis aus dem Verzehr von Nahrungsmittel, die auf beregneten Flächen erzeugt wurden, berücksichtigt den anteiligen Verzehr von Blattgemüse, pflanzlichen Produkten ohne Blattgemüse, Milch und Fleisch. In die Berechnung gehen jeweils die Aktivitätskonzentrationen im Nahrungsmittel, die Verzehrsgeschwindigkeit für das Nahrungsmittel durch die jeweilige Referenzperson und der Dosiskoeffizient für die Ingestion für das betroffene Organ ein. Es wird der unbeabsichtigte Verzehr von Boden durch das Kleinkind berücksichtigt.

Die Strahlenexposition wird wie folgt berechnet:

$$\begin{aligned}
 H_{Ing,T,R,r}(t) = & [C_{Bl,gesamt,r}(t) \cdot U_{Bl,R} \cdot KF_{Bl,R} + C_{Pf,gesamt,r}(t) \cdot U_{Pf,R} \cdot KF_{Pf,R} + \\
 & C_{Mi,gesamt,r}(t) \cdot U_{Mi,R} \cdot KF_{Mi,R} + C_{Fl,gesamt,r}(t) \cdot U_{Fl,R} \cdot KF_{Fl,R} + \\
 & K_{Weide,r}(t) \cdot U_{Bo,R}] \cdot g_{T,R,r}
 \end{aligned} \tag{3.22}$$

Dabei bedeuten

$H_{Ing,T,R,r}(t)$ : Dosis durch Ingestion des Organs  $T$  der Referenzperson  $R$  durch das Nuklid  $r$  zur Zeit  $t$  [Sv/a]

$C_{Bl,gesamt,r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  durch direkte Kontamination von Blattgemüse und durch Bodentransfer in Blattgemüse zur Zeit  $t$  [Bq/kg]

$C_{Pf,gesamt,r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  durch direkte Kontamination von pflanzlichen Produkten ohne Blattgemüse und durch Bodentransfer in pflanzliche Produkte ohne Blattgemüse zur Zeit  $t$  [Bq/kg]

$C_{Mi,gesamt,r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  in Milch durch Verzehr von beregnetem Weidegras, Tränkwasser und Boden zur Zeit  $t$  [Bq/kg]

$C_{Fl,gesamt,r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  in Fleisch durch Verzehr von beregnetem Weidegras, Tränkwasser und Boden zur Zeit  $t$  [Bq/kg]

$U_{Bl,R}$ : Verzehrrate von Blattgemüse durch die Referenzperson  $R$  [kg/a]

$U_{Pf,R}$ : Verzehrrate für andere pflanzliche Produkte außer Blattgemüse durch die Referenzperson [kg/a]

$U_{Mi,R}$ : Verzehrrate für Milch durch die Referenzperson [kg/a]

$U_{Fl,R}$ : Verzehrrate für Fleisch durch die Referenzperson [kg/a]

$U_{Bo,R}$ : Ingestionsrate von Boden durch Kleinkinder [kg/a]

$KF_{Bl,R}$ : „Konservativitätsfaktor“ für Blattgemüse [-]

$KF_{Pf,R}$ : „Konservativitätsfaktor“ für pflanzliche Produkte außer Blattgemüse [-]

$KF_{Mi,R}$ : „Konservativitätsfaktor“ für Milch [-]

$KF_{Fl,R}$ : „Konservativitätsfaktor“ für Fleisch [-]

$K_{Weide,r}(t)$ : pflanzenverfügbare Kontamination der beregneten Weidefläche mit dem Nuklid  $r$  zur Zeit  $t$  [Bq/kg]

$g_{T,R,r}$ : Dosiskoeffizient für Ingestion für das Organ  $T$ , die Referenzperson  $R$  und das Nuklid  $r$  [Sv/Bq]

## Berechnung der Dosis durch Verzehr von Fisch

Die Berechnung der Dosis durch den Verzehr von Fisch ergibt sich aus der Aktivitätskonzentration im Fischfleisch zum Zeitpunkt des Konsums, der Verzehrsmenge und dem Dosiskoeffizient für Ingestion für das jeweilige Organ der Referenzperson:

$$H_{Fisch,T,R,r}(t) = C_{Fisch,r}(t) \cdot U_{Fisch,R} \cdot KF_{Fisch,R} \cdot g_{T,R,r} \quad (3.23)$$

Dabei bedeuten

$H_{Fisch,T,R,r}$ : Dosis durch Fischverzehr für das Organ  $T$  der Referenzperson  $R$  durch das Nuklid  $r$  zur Zeit  $t$  [Sv/a]

$C_{Fisch,r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  in Fisch zur Zeit  $t$  [Bq/kg]

$U_{Fisch,R}$ : Fischkonsum im Jahr der Referenzperson  $R$  [kg/a]

$KF_{Fisch,R}$ : „Konservativitätsfaktor“ für Fisch [-]

$g_{T,R,r}$ : Dosiskoeffizient für Ingestion für das Organ  $T$ , die Referenzperson  $R$  und das Nuklid  $r$  [Sv/Bq]

## Berechnung der Dosis durch den Verzehr von Muttermilch

Die Berechnung der Dosis des Säuglings aus dem Verzehr von Muttermilch berücksichtigt die Aufnahme von Radionukliden durch die Mutter über

- die Inhalation von Staub bei Aufenthalt auf berechneten Flächen,
- den Verzehr von Nahrungsmitteln (Blattgemüse, pflanzliche Produkte ohne Blattgemüse, Milch und Fleisch), die auf berechneten Flächen erzeugt wurden,
- den Verzehr von Trinkwasser und Fisch.

Die Dosis wird wie folgt berechnet:

$$H_{Ing,T,r}(t) = \{ K_{Weide,r}(t) \cdot C_{Staub} \cdot f_{Staub} \cdot V \cdot 3,15576E + 7 \cdot TF_{MM,Inh,r} + [ C_{Bl,gesamt,r}(t) \cdot U_{Bl} \cdot KF_{Bl} + C_{Pf,gesamt,r}(t) \cdot U_{Pf} \cdot KF_{Pf} + C_{Mi,gesamt,r}(t) \cdot U_{Mi} \cdot KF_{Mi} + C_{Fl,gesamt,r}(t) \cdot U_{Fl} \cdot KF_{Fl} + C_{Fisch,r}(t) \cdot U_{Fisch} \cdot KF_{Fisch} + C_{Tw,r}(t) \cdot U_{Tw} \cdot KF_{Tw} + K_{Weide,r}(t) \cdot U_{Bo} ] \cdot TF_{MM,Ing,r} \} \cdot \frac{U_{MM} \cdot KF_{MM} \cdot g_{T,R,r}}{365} \quad (3.24)$$

Dabei bedeuten:

$H_{Ing,T,r}(t)$ : Dosis des Organs  $T$  bei Säuglingen durch den Verzehr von Muttermilch durch das Nuklid  $r$  zur Zeit  $t$  [Sv/a]

$K_{Weide,r}(t)$ : pflanzenverfügbare Kontamination der berechneten Weidefläche mit dem Nuklid  $r$  zur Zeit  $t$  [Bq/kg]

- $C_{\text{Staub}}$  : Staubkonzentration in der bodennahen Luft [kg/m<sup>3</sup>]
- $f_{\text{Staub}}$  : Konzentrationsfaktor der Aktivität im resuspendierten Staub gegenüber der Konzentration im Boden [-]
- 3,14476E+7: Faktor zur Umrechnung von Jahren in Sekunden (365,25 d/a) [-]
- $TF_{MM,Inh,r}$  : Transferfaktor in die Muttermilch des Nuklids  $r$  bei Inhalation durch die Mutter [d/kg Muttermilch]
- $TF_{MM,Ing,r}$  : Transferfaktor in die Muttermilch des Nuklids  $r$  bei Ingestion durch die Stillende [d/kg Muttermilch]
- $C_{Bl,gesamt,r}(t)$  : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  durch direkte Kontamination von Blattgemüse und durch Bodentransfer in Blattgemüse zur Zeit  $t$  [Bq/kg]
- $C_{Pf,gesamt,r}(t)$  : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  durch direkte Kontamination von pflanzlichen Produkten ohne Blattgemüse und durch Bodentransfer in pflanzliche Produkte ohne Blattgemüse zur Zeit  $t$  [Bq/kg]
- $C_{Mi,gesamt,r}(t)$  : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  in Milch durch Verzehr von beregnetem Weidegras, Tränkwasser und Boden zur Zeit  $t$  [Bq/kg]
- $C_{Fl,gesamt,r}(t)$  : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  in Fleisch durch Verzehr von beregnetem Weidegras, Tränkwasser und Boden zur Zeit  $t$  [Bq/kg]
- $C_{Fisch,r}(t)$  : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  in Fisch zur Zeit  $t$  [Bq/kg]
- $C_{Tw,r}(t)$  : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  in Trinkwasser zur Zeit  $t$  [Bq/l]
- $U_{Bl,R}$  : Verzehrrate der Stillenden an Blattgemüse [kg/a]
- $U_{Pf,R}$  : Verzehrrate der Stillenden an pflanzliche Produkten außer Blattgemüse [kg/a]
- $U_{Mi,R}$  : Verzehrrate der Stillenden an Milch [kg/a]
- $U_{Fl,R}$  : Verzehrrate der Stillenden an Fleisch [kg/a]
- $U_{Fisch,R}$  : Verzehrrate der Stillenden an Fisch [kg/a]
- $U_{Tw,R}$  : Verzehrrate der Stillenden an Trinkwasser [l/a]
- $U_{Bo,R}$  : Verzehrrate von Milchvieh an Boden [kg/a]
- $U_{MM,R}$  : Verzehrrate des Säuglings an Muttermilch [kg/a]
- $KF_{Bl}$  : „Konservativitätsfaktor“ für Blattgemüse [-]
- $KF_{Pf}$  : „Konservativitätsfaktor“ für pflanzliche Produkte außer Blattgemüse [-]
- $KF_{Mi}$  : „Konservativitätsfaktor“ für Milch [-]
- $KF_{Fl}$  : „Konservativitätsfaktor“ für Fleisch [-]
- $KF_{Fisch}$  : „Konservativitätsfaktor“ für Fisch [-]
- $KF_{Tw}$  : „Konservativitätsfaktor“ für Trinkwasser [-]
- $KF_{MM}$  : „Konservativitätsfaktor“ für Muttermilch [-]
- $K_{Weide,r}(t)$  : pflanzenverfügbare Kontamination der beregneten Weidefläche mit dem Nuklid  $r$  zur Zeit  $t$  [Bq/kg]
- $g_{T,R,r}$  : Dosiskoeffizient für Ingestion für das Organ  $T$ , die Referenzperson < 1 Jahr und das Nuklid  $r$  [Sv/Bq]
- $V_R$  : Atemrate der Referenzperson > 17 Jahre [m<sup>3</sup>/s]



365: Faktor zur Umrechnung auf die Jahresdosis [-]

### 3.2.5 Berechnung der Strahlenexposition durch Aufenthalt auf berechneten Flächen

Die Dosis durch Aufenthalt auf berechneten Flächen resultiert aus äußerer Exposition durch Gammastrahler sowie der inneren Exposition durch das Einatmen von aufgewirbeltem Staub. Die direkte Aufnahme von Boden durch Kinder wird bereits beim Verzehr von auf berechneten Flächen erzeugten Nahrungsmitteln berücksichtigt.

#### Berechnung der Dosis durch innere Exposition bei Inhalation resuspendierter Bodenpartikel

Die Berechnung der Dosis durch Inhalation resuspendierter Bodenpartikel erfolgt analog /Pröhl 2002/ und berücksichtigt die Inhalation von Staub bei Aufenthalt auf berechneten Flächen:

$$H_{Inh,T,R,r}(t) = K_{Weide,r}(t) \cdot C_{Staub} \cdot f_{Staub} \cdot V_R \cdot 3,15576E+7 \cdot g_{T,R,r} \quad (3.25)$$

Dabei bedeuten

$H_{Inh,T,R,r}(t)$ : Dosis durch Inhalation des Organs  $T$  der Referenzperson  $R$  durch das Nuklid  $r$  zur Zeit  $t$  [Sv/a]

$K_{Weide,r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  zur Zeit  $t$  im pflanzenverfügbaren Wurzelraum der Weide [Bq/kg]

$C_{Staub}$ : Staubkonzentration in der bodennahen Luft [kg/m<sup>3</sup>]

$f_{Staub}$ : Konzentrationsfaktor der Aktivität im resuspendierten Staub gegenüber der Konzentration im Boden [-]

$V_R$ : Atemrate der Referenzperson  $R$  [m<sup>3</sup> a<sup>-1</sup>]

3,14476E+7: Faktor zum Umrechnung von Jahren in Sekunden (365,25 Tagen/a) [-]

$g_{T,R,r}$ : Dosiskoeffizient für Inhalation für das Organ  $T$ , die Referenzperson  $R$  und das Nuklid  $r$  [Sv/Bq]

#### Berechnung der Dosis durch äußere Exposition bei Aufenthalt auf berechneten Flächen

Die Dosis durch äußere Exposition bei Aufenthalt auf berechneten Flächen wird wie folgt berechnet:

$$H_{GB,T,R,r}(t) = K_{Weide,r}(t) \cdot b \cdot p_A \cdot t_{A,R} \cdot 3600 \cdot g_{T,R,r} \quad (3.26)$$

Dabei bedeuten

$H_{GB,T,R,r}(t)$  (t): Dosis durch Gamma-Bodenstrahlung des Organs  $T$  der Referenzperson  $R$  durch das Nuklid  $r$  zur Zeit  $t$  [Sv/a]

$K_{Weide,r}(t)$ : Aktivitätskonzentration des Nuklids  $r$  zur Zeit  $t$  im pflanzenverfügbaren Wurzelraum der Weide [Bq/kg]

$b$  : Korrekturfaktor für Bodenrauhigkeit etc. [-]

$p_A$  : Flächentrockenmasse des Weidebodens (10 cm) [kg/m<sup>2</sup>]<sup>1</sup>

$t_{A,R}$  : Aufenthaltszeit der Referenzperson  $R$  im Freien auf der berechneten Fläche  
[h/a]

3600: Faktor zur Umrechnung von Stunden in Sekunden [-]

$g_{T,R,r}$  : Dosiskoeffizient für Gamma-Bodenstrahlung (inkl.  $c_{geo}$ ) für das Organ  $T$ , die  
Referenzperson  $R$  und das Nuklid  $r$  [(Sv/a)/(Bq/m<sup>2</sup>)]

### 3.2.6 Umsetzung der Modellierung in ein Computerprogramm

Die in den Kapiteln 3.1 und 3.2 beschriebene Modellierung wurde in ein Computerprogramm umgesetzt. Das Programm besteht aus zwei Haupttools mit einer unabhängigen Ergebnisausgabe: Berechnung der Transportvorgänge im Deckgebirge und Ermittlung der Strahlenexposition. Der im ersten Tool berechnete Radionuklid-eintrag in das nutzbare Grundwasser kann als Input in das zweite Tool zu Berechnung der Strahlenexposition übernommen werden oder es können direkt – falls bekannt – Aktivitätskonzentrationen als Anfangsbedingung bei der Berechnung des Expositionspfades eingegeben werden.

Die Transportvorgänge werden im Programmtool Migration berechnet, wahlweise mit den Gleichungen (3.1) oder (3.2). Die Gestaltung der Eingabe erlaubt die erforderliche Variation der Parameterwerte, die in diese Gleichung einfließen. Die bei dem Transport passierten Schichten werden durch Angaben über die Mächtigkeit, Dichte und Porosität charakterisiert, sowie auch durch die ermittelten Sorptionskoeffizienten einzelner Radionuklide. Weiterhin wird den einzelnen Schichten in der Eingabedatei die Abstandgeschwindigkeit und die skalenabhängige Dispersionslänge zugeordnet. Die somit gebildete Inputdatei dient dann der Berechnung der Aktivitätskonzentration im Zielbereich. Für die einzelnen genutzten Wasserströme (Trinkwasser, Beregnungswasser, Tränkwasser, Fischteichwasser) können unterschiedliche Verdünnungsfaktoren angesetzt werden.

Die Strahlenexposition wird für alle Referenzpersonen der Strahlenschutzverordnung im Tool Strahlenexposition berechnet. Es werden die effektive Dosis und alle Organdosen ermittelt.

Die Ergebnisausgabe erlaubt auch die Auswertung von Kontaminationen (z. B. einzelner Lebensmittel, Boden, Wasser etc.). Maximale Strahlenexpositionen und der Zeitpunkt, zu dem sie ermittelt wurden, werden ausgegeben, ebenfalls die prozentualen Anteile der Expositionspfade an der höchsten Dosis.

Über die direkte Ansicht von Diagrammen lässt sich ein schnellerer Überblick über die Ergebnisse erlangen. Diagramme können darüber hinaus abgespeichert werden.

---

<sup>1</sup> Die Multiplikation mit der Flächentrockenmasse dient der Berechnung der flächenbezogenen Aktivität aus der massenbezogenen Aktivität, um auch die in die massenbezogene Aktivität bereits eingeflossene Migration in tiefere Bodenschichten etc. zu berücksichtigen. Über den Bezug auf die flächenbezogene Aktivität können die Dosisleistungskoeffizienten der Strahlenschutzverordnung verwendet werden, was ansonsten nicht möglich wäre.

In einem Rechenlauf können bis zu 100 Radionuklide, bis zu 100 Zeitpunkte der Dosisausgabe (über beliebige Zeiträume), bis zu 10 Variationen von Gesteinseigenschaften und alle Referenzpersonen verarbeitet werden.

### 3.3 Qualitätssicherung des Modells und der Berechnungen

Die vorliegenden Ergebnisse der Neuberechnungen zu den Auswirkungen eines auslegungsüberschreitenden Lösungszutritts in der Asse wurden einer intensiven Qualitätssicherung durch das Öko-Institut unterzogen. Dies diente der Sicherstellung, dass das Vorgehen und die Durchführung der Neuberechnung dem Stand der Wissenschaft entsprechen. Folgende Aspekte wurden überprüft:

- Berücksichtigung aller relevanten Pfade für die Strahlenexposition eines auslegungsüberschreitenden Lösungszutritts in der Asse.

Die Modellierungen und Berechnungen umfassen auch Pfade, die relativ wenig zur Gesamtexposition beitragen (z. B. Aufenthalt auf Flächen, Inhalation resuspendierter Bodenpartikel). Anhand der Berechnungsergebnisse für diese Pfade ließ sich überprüfen, ob weitere Pfade (z. B. solche mit externer Exposition) vernachlässigt werden können oder einzubeziehen wären.

- Berücksichtigung aller relevanten Radionuklide.

Die Berechnungen erfolgten für das Szenario I unter Berücksichtigung aller Radionuklide des Asse-Inventars. Aus diesen Berechnungen ließ sich ableiten, welche Radionuklide für das Szenario II in Anbetracht von jeweiliger Halbwertszeit und Sorptionsverhalten im Detail untersucht werden müssen.

- Verwendung der Nutzungsparameter nach dem Stand von Wissenschaft und Technik.

Die verschiedenen zu verwendenden Parameterwerte wurden entsprechend /AVV 2005/ und /BglBb 2010/ ausgewählt. Sie entsprechen daher dem Stand von Wissenschaft und Technik und der aktuellen Genehmigungspraxis in Deutschland.

- Verwendung der Faktoren zur Beschreibung von chemischen, physikalischen und biologischen Prozessen der Anreicherung von Radionukliden nach dem Stand von Wissenschaft und Technik.

Auch diese hier verwendenden Parameterwerte wurden entsprechend /AVV 2005/ und /BglBb 2010/ ausgewählt, so dass sie dem Stand von Wissenschaft und Technik und der aktuellen Genehmigungspraxis in Deutschland entsprechen.

- Plausibilität und Verifizierung der erzielten Ergebnisse der durchgeführten Rechengänge.

Um die Richtigkeit der Berechnungsergebnisse zu prüfen, wurden für relevante Radionuklide Berechnungen sowohl mit dem Programm als auch durch manuelle Nachrechnungen für die einzelnen Expositionspfade durchgeführt.

Darüber hinaus wurde die Plausibilität der Ergebnisse überprüft, indem Ergebnisse für verschiedene Nuklide und Pfade gegeneinander abgeglichen wurden, beispielsweise:

- Langfristige Dosisentwicklung auf den verschiedenen Pfaden (Effekt der Anreicherung im Boden versus Migration),
- Zeitpunkt des Erreichens einer „Sättigung“ des Dosisbeitrags durch ein Nuklid als Zusammenwirken insbesondere von Halbwertszeit und Migration.

Zur detaillierten Prüfung wurden auch Parameterwerte so variiert, dass sie sich zwar außerhalb des plausiblen Bereich bewegen, aber die Beurteilung erlauben, ob das Modell in der erwarteten Weise reagiert.

Schließlich wurden sowohl durch die Berechnungen mit dem Programm als auch durch manuelle Nachrechnungen Dosiskonversionsfaktoren zur Berechnung der Strahlenexposition in der Nachbetriebsphase von Endlagern nach /Pröhl 2002/ nachvollzogen<sup>2</sup>.

---

<sup>2</sup> Bezogen auf das Nuklid Th-232 ergab sich allerdings, dass der in /Pröhl 2002/ angegebene Dosiskonversionsfaktor deutlich zu hoch ist und auch mit der Modellierung in /Pröhl 2002/ nicht nachvollzogen werden kann. Durch Anwendung dieses Dosiskonversionsfaktors war in /GRS 2009/ Th-232 das Radionuklid mit der höchsten Folgedosis.

## 4 Ergebnisse der Neuberechnung für das Szenario I (GRS-Szenario)

Nachfolgend werden Ergebnisse der Berechnungen dargestellt, bei denen nicht mit Dosiskonversionsfaktoren gerechnet wurde, sondern das in Kapitel 3.2 beschriebene Modell zur Berechnung von Strahlenexpositionen aus Grundwasserkontaminationen angewendet wurde. Die Strahlenexpositionen werden für die Zeiten angegeben, für die auch in /GRS 2009/ Dosen angegeben wurden, nämlich 40 Jahre, 80 Jahre und 130 Jahre. Nach /GRS 2009/ läuft das Grubengebäude über 30 Jahre mit Lösung voll und anschließend beginnt das Auspressen aufgrund des Gebirgsdrucks. „40 Jahre“ bedeutet daher: 40 Jahre seit dem Beginn des auslegungsüberschreitenden Lösungszutritts bzw. 10 Jahre nach Beginn des Auspressens der Lösung mit den darin gelösten Radionukliden. In Zusammenhang mit den Anreicherungseffekten im radioökologischen Modell bedeutet dies, dass bei „40 Jahren“ eine Berechnung mit kontaminiertem Berechnungswasser über 10 Jahre stattgefunden hat. Bei „80 Jahren“ wurde 50 Jahre berechnet und bei „130 Jahren“ über einen Zeitraum von 100 Jahren.

Hinsichtlich der Strahlenexposition des Kleinkinds im Alter  $\leq 1$  Jahr wurde die ungünstigere der beiden Ernährungsvarianten zugrunde gelegt. Dies ist die Ernährungsvariante ohne den Verzehr von Muttermilch, wobei aber dann das kontaminierte Trinkwasser zur Zubereitung entsprechender Mengen an Säuglingsnahrung verwendet wird (siehe auch Tabelle 3-9).

Anders als in /GRS 2009/ wurden die Tochternuklide des Th-232 in vollem Umfang in die Berechnung einbezogen.

Die durchgeführten Berechnungen umfassen:

1. Strahlenexposition (effektive Dosis) aller Referenzpersonen bei Berechnung mit Lebensgewohnheiten in Anlehnung an die AVV zu § 47 StrlSchV /AVV 2005/<sup>3</sup> für ein Plutoniuminventar nach /GSF 2002/ von 11,8 kg, wie es in /GRS 2009/ zugrunde gelegt wurde.

Die nuklidspezifisch ermittelten Strahlenexpositionen sind für die Radionuklide, bei denen bei mindestens einer Referenzperson eine höhere Dosis als 0,1 mSv im Jahr ermittelt wurde, angegeben. Die höchsten Werte ergeben sich stets für das Kleinkind im Alter  $\leq 1$  Jahr (Tabelle 4-1). Zusätzlich wird die Dosis Erwachsener aufgeführt (Tabelle 4-2). Die pfadspezifischen Summen der Dosis über alle Radionuklide sind in Tabelle 4-3 aufgelistet. Die Gesamtdosis ist für alle Referenzpersonen in Tabelle 4-4 zusammengestellt.

2. Strahlenexposition (effektive Dosis) aller Referenzpersonen bei Berechnung mit Lebensgewohnheiten in Anlehnung an die AVV zu § 47 StrlSchV /AVV 2005/ für das korrigierte Plutoniuminventar von 28 kg.

Die nuklidspezifisch ermittelten Strahlenexpositionen sind in Tabelle 4-5 für die Plutoniumisotope sowie Am-241 für das Kleinkind im Alter  $\leq 1$  Jahr als höchst-

---

<sup>3</sup> Zu Details siehe die Ausführungen in Kapitel 3.2.2.

exponierte Referenzperson angegeben sowie in Tabelle 4.6 für den Erwachsenen. Die pfadspezifischen Summen der Dosis über alle Radionuklide sind in Tabelle 4-7 aufgelistet. Die Gesamtdosis ist für alle Referenzpersonen in Tabelle 4-4. zusammengestellt.

3. Strahlenexposition (effektive Dosis) aller Referenzpersonen bei Berechnung mit Lebensgewohnheiten in Anlehnung an die Berechnungsgrundlagen Bergbau /BglBb 2010/ für das Plutoniuminventar von 11,8 kg.

Die nuklidspezifisch ermittelten Strahlenexpositionen sind für die Radionuklide, bei denen bei mindestens einer Referenzperson eine höhere Dosis als 0,1 mSv im Jahr ermittelt wurde, angegeben. Die höchsten Werte ergeben sich stets für das Kleinkind im Alter  $\leq 1$  Jahr (Tabelle 4-8). Zusätzlich wird die Dosis Erwachsener aufgeführt (Tabelle 4-9). Die pfadspezifischen Summen der Dosis über alle Radionuklide sind in Tabelle 4-10 aufgelistet. Die Gesamtdosis ist für alle Referenzpersonen in Tabelle 4-4. zusammengestellt.

4. Strahlenexposition (effektive Dosis) aller Referenzpersonen bei Berechnung mit Lebensgewohnheiten in Anlehnung an die Berechnungsgrundlagen Bergbau /BglBb 2010/ für das Plutoniuminventar von 28 kg.

Die nuklidspezifisch ermittelten Strahlenexpositionen sind in Tabelle 4-11 für die Plutoniumisotope sowie Am-241 für das Kleinkind im Alter  $\leq 1$  Jahr als höchstexponierte Referenzperson angegeben sowie in Tabelle 4-12 für den Erwachsenen. Die pfadspezifischen Summen der Dosis über alle Radionuklide sind in Tabelle 4-13 aufgelistet. Die Gesamtdosis ist für alle Referenzpersonen in Tabelle 4-4. zusammengestellt.

Die Diskussion der Ergebnisse erfolgt in Kapitel 8.

Tabelle 4-1: Nuklid- und pfadspezifische Strahlenexposition des Kleinkinds (Alter ≤ 1 Jahr) in mSv/a (Pu-Inventar: 11,8 kg, Lebensgewohnheiten analog AVV zu § 47 StrlSchV)

Zeit ab Beginn des Absaufens	Expositionspfad						
	Trinkwasser	Ingestion nach Beregnung	Bodenstrahlung	Inhalation	Viehtränke	Fischverzehr	Summe
<b>C-14</b>							
40 Jahre	9,5E-04	1,0E-02	0,0E+00	0,0E+00	5,2E-04	4,4E-02	5,6E-02
80 Jahre	9,5E-04	1,0E-02	0,0E+00	0,0E+00	5,1E-04	4,4E-02	5,6E-02
130 Jahre	9,4E-04	1,0E-02	0,0E+00	0,0E+00	5,1E-04	4,4E-02	5,5E-02
<b>Ni-63</b>							
40 Jahre	1,5E-01	2,1E-01	0,0E+00	1,9E-06	3,7E-02	9,0E-02	4,9E-01
80 Jahre	1,2E-01	1,9E-01	0,0E+00	6,9E-06	2,8E-02	6,8E-02	4,0E-01
130 Jahre	8,3E-02	1,6E-01	0,0E+00	9,6E-06	2,0E-02	4,8E-02	3,1E-01
<b>Sr-90</b>							
40 Jahre	4,3E+00	1,0E+01	0,0E+00	2,5E-05	2,1E-01	7,6E-01	1,6E+01
80 Jahre	1,7E+00	7,6E+00	0,0E+00	1,9E-05	8,0E-02	2,9E-01	9,6E+00
130 Jahre	5,1E-01	2,6E+00	0,0E+00	5,9E-06	2,4E-02	8,8E-02	3,2E+00
<b>Cs-137</b>							
40 Jahre	7,1E-01	1,0E+00	2,5E-05	1,5E-05	1,2E-01	7,0E-01	2,5E+00
80 Jahre	2,8E-01	5,7E-01	4,7E-05	2,6E-05	4,8E-02	2,8E-01	1,2E+00
130 Jahre	8,9E-02	2,4E-01	2,7E-05	1,4E-05	1,5E-02	8,8E-02	4,3E-01
<b>Pb-210</b>							
40 Jahre	4,0E-02	5,2E-02	1,7E-11	3,5E-07	3,1E-04	1,4E-02	1,1E-01
80 Jahre	1,2E-02	1,6E-02	2,4E-11	5,0E-07	9,0E-05	4,0E-03	3,2E-02
130 Jahre	2,5E-03	3,7E-03	1,0E-11	2,1E-07	1,9E-05	8,5E-04	7,0E-03
<b>Ra-226</b>							
40 Jahre	1,6E-01	2,1E-01	3,1E-10	4,7E-06	1,2E-02	9,5E-03	3,9E-01
80 Jahre	1,6E-01	2,2E-01	1,5E-09	2,3E-05	1,2E-02	9,4E-03	4,0E-01
130 Jahre	1,6E-01	2,2E-01	3,0E-09	4,4E-05	1,1E-02	9,2E-03	4,0E-01
<b>Ra-228</b>							
40 Jahre	1,9E+00	2,4E+00	3,1E-12	1,2E-05	1,4E-01	1,1E-01	4,5E+00
80 Jahre	1,9E+00	2,4E+00	3,1E-12	1,2E-05	1,4E-01	1,1E-01	4,5E+00
130 Jahre	1,9E+00	2,4E+00	3,1E-12	1,2E-05	1,4E-01	1,1E-01	4,5E+00
<b>Th-228</b>							
40 Jahre	2,3E-01	2,9E-01	0,0E+00	4,0E-05	1,1E-04	4,1E-02	5,7E-01
80 Jahre	2,3E-01	2,9E-01	0,0E+00	4,0E-05	1,1E-04	4,1E-02	5,7E-01
130 Jahre	2,3E-01	2,9E-01	0,0E+00	4,0E-05	1,1E-04	4,1E-02	5,7E-01
<b>Th-232</b>							
40 Jahre	2,9E-01	3,7E-01	4,6E-11	5,8E-05	1,4E-04	5,0E-02	7,0E-01
80 Jahre	2,9E-01	3,7E-01	2,3E-10	2,8E-04	1,4E-04	5,0E-02	7,1E-01
130 Jahre	2,9E-01	3,7E-01	4,5E-10	5,6E-04	1,4E-04	5,0E-02	7,1E-01
<b>U-234</b>							
40 Jahre	8,7E-02	1,1E-01	2,3E-10	3,1E-05	1,1E-03	1,0E-03	2,0E-01
80 Jahre	8,7E-02	1,1E-01	1,1E-09	1,5E-04	1,1E-03	1,0E-03	2,0E-01
130 Jahre	8,7E-02	1,2E-01	2,2E-09	3,0E-04	1,1E-03	1,0E-03	2,1E-01

Tabelle 4-1 - Fortsetzung

Zeit ab Beginn des Absaufens	Expositionspfad						Summe
	Trink- wasser	Ingestion nach Bereg- nung	Boden- strahlung	Inhalati- on	Vieh- tränke	Fisch- verzehr	
<b>U-238</b>							
40 Jahre	7,6E-02	9,7E-02	1,6E-10	2,6E-05	9,5E-04	8,9E-04	1,8E-01
80 Jahre	7,6E-02	1,0E-01	7,9E-10	1,3E-04	9,5E-04	8,9E-04	1,8E-01
130 Jahre	7,6E-02	1,0E-01	1,5E-09	2,5E-04	9,5E-04	8,9E-04	1,8E-01
<b>Pu-238</b>							
40 Jahre	1,8E+01	2,3E+01	4,6E-09	3,6E-03	9,5E-03	8,4E-01	4,2E+01
80 Jahre	1,3E+01	1,7E+01	1,7E-08	1,3E-02	6,9E-03	6,1E-01	3,1E+01
130 Jahre	8,9E+00	1,1E+01	2,2E-08	1,7E-02	4,7E-03	4,1E-01	2,1E+01
<b>Pu-239</b>							
40 Jahre	1,4E+01	1,8E+01	1,6E-09	2,9E-03	7,5E-03	6,7E-01	3,3E+01
80 Jahre	1,4E+01	1,8E+01	8,0E-09	1,4E-02	7,5E-03	6,7E-01	3,3E+01
130 Jahre	1,4E+01	1,8E+01	1,6E-08	2,8E-02	7,5E-03	6,7E-01	3,3E+01
<b>Pu-240</b>							
40 Jahre	1,7E+01	2,1E+01	3,8E-09	3,3E-03	8,7E-03	7,7E-01	3,8E+01
80 Jahre	1,6E+01	2,1E+01	1,9E-08	1,6E-02	8,6E-03	7,6E-01	3,8E+01
130 Jahre	1,6E+01	2,1E+01	3,7E-08	3,2E-02	8,6E-03	7,6E-01	3,8E+01
<b>Pu-241</b>							
40 Jahre	1,1E+00	1,4E+00	0,0E+00	2,3E-04	5,8E-04	5,1E-02	2,5E+00
80 Jahre	1,6E-01	2,0E-01	0,0E+00	1,7E-04	8,4E-05	7,5E-03	3,7E-01
130 Jahre	1,4E-02	1,8E-02	0,0E+00	2,9E-05	7,6E-06	6,7E-04	3,4E-02
<b>Am-241</b>							
40 Jahre	7,8E+01	9,9E+01	7,4E-07	1,5E-02	1,1E-01	1,1E+01	1,9E+02
80 Jahre	7,5E+01	9,6E+01	3,4E-06	7,0E-02	1,0E-01	1,1E+01	1,8E+02
130 Jahre	7,0E+01	8,9E+01	6,2E-06	1,3E-01	9,4E-02	1,0E+01	1,7E+02
<b>Am-243</b>							
40 Jahre	5,0E-02	6,3E-02	9,6E-10	9,9E-06	6,6E-05	7,2E-03	1,2E-01
80 Jahre	4,9E-02	6,3E-02	4,7E-09	4,9E-05	6,6E-05	7,2E-03	1,2E-01
130 Jahre	4,9E-02	6,2E-02	9,4E-09	9,5E-05	6,6E-05	7,1E-03	1,2E-01
<b>Cm-244</b>							
40 Jahre	1,6E-01	2,0E-01	6,0E-11	3,5E-05	1,3E-04	2,3E-02	3,9E-01
80 Jahre	3,5E-02	4,4E-02	6,4E-11	3,7E-05	2,9E-05	5,1E-03	8,4E-02
130 Jahre	5,1E-03	6,5E-03	1,9E-11	1,1E-05	4,2E-06	7,5E-04	1,2E-02



Tabelle 4-2: Nuklid- und pfadspezifische Strahlenexposition des Erwachsenen in mSv/a (Pu-Inventar: 11,8 kg, Lebensgewohnheiten analog AVV zu § 47 StrlSchV)

Zeit ab Beginn des Absaufens	Expositionspfad						Summe
	Trinkwasser	Ingestion nach Beregnung	Bodenstrahlung	Inhalation	Viehtränke	Fischverzehr	
<b>C-14</b>							
40 Jahre	6,4E-04	1,3E-02	0,0E+00	0,0E+00	1,0E-03	2,8E-01	2,9E-01
80 Jahre	6,4E-04	1,3E-02	0,0E+00	0,0E+00	1,0E-03	2,7E-01	2,9E-01
130 Jahre	6,4E-04	1,3E-02	0,0E+00	0,0E+00	1,0E-03	2,7E-01	2,9E-01
<b>Ni-63</b>							
40 Jahre	2,4E-02	5,9E-02	0,0E+00	3,7E-06	1,1E-02	1,3E-01	2,2E-01
80 Jahre	1,8E-02	5,4E-02	0,0E+00	1,4E-05	8,2E-03	9,6E-02	1,8E-01
130 Jahre	1,3E-02	4,6E-02	0,0E+00	1,9E-05	5,8E-03	6,8E-02	1,3E-01
<b>Sr-90</b>							
40 Jahre	8,6E-01	3,9E+00	0,0E+00	6,9E-05	8,2E-02	1,4E+00	6,2E+00
80 Jahre	3,3E-01	2,8E+00	0,0E+00	5,3E-05	3,2E-02	5,3E-01	3,7E+00
130 Jahre	1,0E-01	9,7E-01	0,0E+00	1,7E-05	9,6E-03	1,6E-01	1,2E+00
<b>Cs-137</b>							
40 Jahre	7,1E-01	1,9E+00	1,6E-05	3,9E-05	5,6E-01	6,5E+00	9,7E+00
80 Jahre	2,8E-01	1,1E+00	2,9E-05	6,8E-05	2,2E-01	2,6E+00	4,2E+00
130 Jahre	9,0E-02	4,5E-01	1,7E-05	3,7E-05	7,1E-02	8,2E-01	1,4E+00
<b>Pb-210</b>							
40 Jahre	5,4E-03	1,3E-02	9,9E-12	8,2E-07	1,1E-04	1,7E-02	3,6E-02
80 Jahre	1,5E-03	4,0E-03	1,4E-11	1,2E-06	3,1E-05	5,0E-03	1,1E-02
130 Jahre	3,3E-04	9,2E-04	5,9E-12	4,8E-07	6,6E-06	1,1E-03	2,3E-03
<b>Ra-226</b>							
40 Jahre	1,6E-02	3,8E-02	1,9E-10	9,8E-06	2,3E-03	8,5E-03	6,5E-02
80 Jahre	1,6E-02	4,0E-02	9,0E-10	4,7E-05	2,2E-03	8,4E-03	6,6E-02
130 Jahre	1,5E-02	4,1E-02	1,8E-09	9,1E-05	2,2E-03	8,2E-03	6,7E-02
<b>Ra-228</b>							
40 Jahre	7,1E-02	1,7E-01	0,0E+00	3,0E-05	1,0E-02	3,8E-02	2,9E-01
80 Jahre	7,1E-02	1,7E-01	0,0E+00	3,0E-05	1,0E-02	3,8E-02	2,9E-01
130 Jahre	7,1E-02	1,7E-01	0,0E+00	3,0E-05	1,0E-02	3,8E-02	2,9E-01
<b>Th-228</b>							
40 Jahre	7,4E-03	1,8E-02	0,0E+00	7,4E-05	3,0E-05	1,2E-02	3,7E-02
80 Jahre	7,4E-03	1,8E-02	0,0E+00	7,4E-05	3,0E-05	1,2E-02	3,7E-02
130 Jahre	7,4E-03	1,8E-02	0,0E+00	7,4E-05	3,0E-05	1,2E-02	3,7E-02
<b>Th-232</b>							
40 Jahre	2,4E-02	5,6E-02	2,7E-11	2,0E-04	9,6E-05	3,8E-02	1,2E-01
80 Jahre	2,4E-02	5,6E-02	1,3E-10	1,0E-03	9,6E-05	3,8E-02	1,2E-01
130 Jahre	2,4E-02	5,7E-02	2,6E-10	2,0E-03	9,6E-05	3,8E-02	1,2E-01
<b>U-234</b>							
40 Jahre	1,9E-02	4,5E-02	1,3E-10	6,5E-05	5,4E-04	2,0E-03	6,6E-02
80 Jahre	1,9E-02	4,6E-02	6,6E-10	3,2E-04	5,4E-04	2,0E-03	6,8E-02
130 Jahre	1,9E-02	4,8E-02	1,3E-09	6,3E-04	5,4E-04	2,0E-03	7,0E-02
<b>U-238</b>							
40 Jahre	1,6E-02	3,9E-02	9,4E-11	5,3E-05	4,7E-04	1,8E-03	5,8E-02
80 Jahre	1,6E-02	4,1E-02	4,7E-10	2,6E-04	4,7E-04	1,8E-03	6,0E-02
130 Jahre	1,6E-02	4,2E-02	9,2E-10	5,2E-04	4,7E-04	1,8E-03	6,1E-02

Tabelle 4-2 – Fortsetzung

Zeit ab Beginn des Absaufens	Expositionspfad						Summe
	Trink- wasser	Ingestion nach Bereg- nung	Boden- strahlung	Inhalati- on	Vieh- tränke	Fisch- verzehr	
<b>Pu-238</b>							
40 Jahre	1,7E+00	4,0E+00	2,7E-09	1,5E-02	9,8E-03	7,2E-01	6,5E+00
80 Jahre	1,2E+00	3,0E+00	9,8E-09	5,3E-02	7,1E-03	5,3E-01	4,8E+00
130 Jahre	8,3E-01	2,0E+00	1,3E-08	7,1E-02	4,8E-03	3,6E-01	3,3E+00
<b>Pu-239</b>							
40 Jahre	1,4E+00	3,3E+00	9,5E-10	1,2E-02	8,0E-03	6,0E-01	5,3E+00
80 Jahre	1,4E+00	3,3E+00	4,7E-09	6,0E-02	8,0E-03	6,0E-01	5,4E+00
130 Jahre	1,4E+00	3,3E+00	9,3E-09	1,2E-01	8,0E-03	5,9E-01	5,4E+00
<b>Pu-240</b>							
40 Jahre	1,6E+00	3,8E+00	2,3E-09	1,4E-02	9,3E-03	6,9E-01	6,1E+00
80 Jahre	1,6E+00	3,8E+00	1,1E-08	6,9E-02	9,2E-03	6,8E-01	6,2E+00
130 Jahre	1,6E+00	3,8E+00	2,2E-08	1,3E-01	9,2E-03	6,8E-01	6,2E+00
<b>Pu-241</b>							
40 Jahre	1,5E-01	3,7E-01	0,0E+00	1,4E-03	8,9E-04	6,6E-02	5,9E-01
80 Jahre	2,2E-02	5,4E-02	0,0E+00	1,0E-03	1,3E-04	9,6E-03	8,7E-02
130 Jahre	2,0E-03	4,9E-03	0,0E+00	1,8E-04	1,2E-05	8,7E-04	7,9E-03
<b>Am-241</b>							
40 Jahre	6,9E+00	1,6E+01	4,4E-07	6,0E-02	7,2E-02	9,2E+00	3,3E+01
80 Jahre	6,6E+00	1,6E+01	1,9E-06	2,8E-01	6,9E-02	8,9E+00	3,2E+01
130 Jahre	6,2E+00	1,5E+01	3,6E-06	5,0E-01	6,5E-02	8,2E+00	3,0E+01
<b>Am-243</b>							
40 Jahre	4,5E-03	1,1E-02	5,6E-10	3,9E-05	4,7E-05	6,0E-03	2,1E-02
80 Jahre	4,5E-03	1,1E-02	2,8E-09	1,9E-04	4,7E-05	6,0E-03	2,1E-02
130 Jahre	4,4E-03	1,1E-02	5,5E-09	3,8E-04	4,7E-05	5,9E-03	2,2E-02
<b>Cm-244</b>							
40 Jahre	1,1E-02	2,6E-02	3,5E-11	9,7E-05	5,1E-05	1,5E-02	5,1E-02
80 Jahre	2,4E-03	5,6E-03	3,8E-11	1,0E-04	1,1E-05	3,2E-03	1,1E-02
130 Jahre	3,5E-04	8,3E-04	1,1E-11	3,0E-05	1,6E-06	4,6E-04	1,7E-03

Tabelle 4-3: Strahlenexposition der einzelnen Referenzpersonen in mSv/a (Pu-Inventar:  
11,8 kg, Lebensgewohnheiten analog AVV zu § 47 StrlSchV)

Zeit ab Beginn des Absaufens	Expositionspfad					
	Trinkwas- ser	Ingestion nach Be- regnung	Boden- strahlung	Inhalation	Viehtränke	Fischver- zehr
<b>Referenzperson Alter ≤ 1 Jahr</b>						
40 Jahre	1,4E+02	1,8E+02	2,6E-05	2,5E-02	6,6E-01	1,6E+01
80 Jahre	1,2E+02	1,6E+02	5,0E-05	1,1E-01	4,4E-01	1,4E+01
130 Jahre	1,1E+02	1,5E+02	3,4E-05	2,1E-01	3,4E-01	1,3E+01
<b>Referenzperson Alter &gt; 1 bis ≤ 2 Jahre</b>						
40 Jahre	7,1E+00	3,8E+01	2,4E-05	4,3E-02	6,8E-01	1,3E+01
80 Jahre	6,2E+00	3,4E+01	4,7E-05	1,9E-01	3,8E-01	1,0E+01
130 Jahre	5,5E+00	2,9E+01	3,2E-05	3,5E-01	2,4E-01	8,4E+00
<b>Referenzperson Alter &gt; 2 bis ≤ 7 Jahre</b>						
40 Jahre	5,2E+00	4,3E+01	2,1E-05	5,0E-02	6,5E-01	9,4E+00
80 Jahre	4,6E+00	3,9E+01	4,1E-05	2,2E-01	3,6E-01	7,3E+00
130 Jahre	4,1E+00	3,3E+01	2,7E-05	4,0E-01	2,2E-01	6,1E+00
<b>Referenzperson Alter &gt; 7 bis ≤ 12 Jahre</b>						
40 Jahre	6,8E+00	4,4E+01	2,0E-05	7,3E-02	7,9E-01	1,3E+01
80 Jahre	5,7E+00	3,8E+01	3,8E-05	3,3E-01	4,2E-01	9,5E+00
130 Jahre	5,0E+00	3,1E+01	2,5E-05	5,9E-01	2,5E-01	7,6E+00
<b>Referenzperson Alter &gt; 12 bis ≤ 17 Jahre</b>						
40 Jahre	8,9E+00	4,6E+01	1,8E-05	8,6E-02	1,1E+00	1,5E+01
80 Jahre	7,3E+00	4,0E+01	3,4E-05	3,9E-01	5,5E-01	1,0E+01
130 Jahre	6,3E+00	3,1E+01	2,3E-05	6,9E-01	3,1E-01	7,9E+00
<b>Referenzperson Alter &gt; 17 Jahre</b>						
40 Jahre	1,3E+01	3,4E+01	1,6E-05	1,0E-01	7,7E-01	2,0E+01
80 Jahre	1,2E+01	3,0E+01	3,1E-05	4,7E-01	3,7E-01	1,4E+01
130 Jahre	1,0E+01	2,6E+01	2,1E-05	8,3E-01	1,9E-01	1,1E+01

Tabelle 4-4: Strahlenexposition der einzelnen Referenzpersonen in mSv/a für die verschiedenen Varianten der Lebensgewohnheiten und des Pu-Inventars

Zeit ab Beginn des Absaufens	Referenzperson					
	≤ 1 Jahr	> 1 bis ≤ 2 Jahre	> 2 bis ≤ 7 Jahre	> 7 bis ≤ 12 Jahre	> 12 bis ≤ 17 Jahre	> 17 Jahre
<b>Pu-Inventar 11,8 kg, Lebensgewohnheiten analog AVV zu § 47 StrISchV</b>						
40 Jahre	3,3E+02	5,9E+01	5,8E+01	6,4E+01	7,1E+01	6,8E+01
80 Jahre	3,0E+02	5,1E+01	5,1E+01	5,4E+01	5,8E+01	5,7E+01
130 Jahre	2,7E+02	4,3E+01	4,3E+01	4,5E+01	4,6E+01	4,9E+01
<b>Pu-Inventar 28 kg, Lebensgewohnheiten analog AVV zu § 47 StrISchV</b>						
40 Jahre	5,5E+02	8,9E+01	9,1E+01	9,6E+01	1,0E+02	1,0E+02
80 Jahre	5,1E+02	7,9E+01	8,1E+01	8,4E+01	8,7E+01	9,1E+01
130 Jahre	4,6E+02	6,9E+01	7,1E+01	7,2E+01	7,3E+01	8,0E+01
<b>Pu-Inventar 11,8 kg, Lebensgewohnheiten analog Berechnungsgrundlagen Bergbau</b>						
40 Jahre	9,6E+01	1,0E+01	9,1E+00	1,0E+01	1,2E+01	1,3E+01
80 Jahre	8,8E+01	9,2E+00	8,1E+00	8,9E+00	9,7E+00	1,1E+01
130 Jahre	8,0E+01	8,2E+00	7,2E+00	7,7E+00	8,3E+00	1,0E+01
<b>Pu-Inventar 28 kg, Lebensgewohnheiten analog Berechnungsgrundlagen Bergbau</b>						
40 Jahre	1,6E+02	1,6E+01	1,4E+01	1,6E+01	1,7E+01	2,0E+01
80 Jahre	1,5E+02	1,5E+01	1,3E+01	1,4E+01	1,5E+01	1,9E+01
130 Jahre	1,4E+02	1,3E+01	1,2E+01	1,3E+01	1,3E+01	1,7E+01

Tabelle 4-5: Nuklid- und pfadspezifische Strahlenexposition des Kleinkinds (Alter  $\leq 1$  Jahr) in mSv/a für Plutoniumisotope (Pu-Inventar: 28 kg, Lebensgewohnheiten analog AVV zu § 47 StrlSchV)

Zeit ab Beginn des Absaufens	Expositionspfad						Summe
	Trinkwasser	Ingestion nach Berechnung	Bodenstrahlung	Inhalation	Viehtränke	Fischverzehr	
<b>Pu-238</b>							
40 Jahre	4,3E+01	5,4E+01	1,0E-08	8,5E-03	2,2E-02	2,0E+00	9,8E+01
80 Jahre	3,1E+01	3,9E+01	4,0E-08	3,1E-02	1,6E-02	1,4E+00	7,2E+01
130 Jahre	2,1E+01	2,7E+01	5,3E-08	4,1E-02	1,1E-02	9,7E-01	4,9E+01
<b>Pu-239</b>							
40 Jahre	3,4E+01	4,3E+01	3,8E-09	6,8E-03	1,8E-02	1,6E+00	7,8E+01
80 Jahre	3,4E+01	4,3E+01	1,9E-08	3,3E-02	1,8E-02	1,6E+00	7,9E+01
130 Jahre	3,4E+01	4,3E+01	3,8E-08	6,6E-02	1,8E-02	1,6E+00	7,9E+01
<b>Pu-240</b>							
40 Jahre	3,9E+01	5,0E+01	9,1E-09	7,8E-03	2,1E-02	1,8E+00	9,1E+01
80 Jahre	3,9E+01	5,0E+01	4,5E-08	3,8E-02	2,1E-02	1,8E+00	9,0E+01
130 Jahre	3,9E+01	5,0E+01	8,9E-08	7,5E-02	2,0E-02	1,8E+00	9,0E+01
<b>Pu-241</b>							
40 Jahre	2,6E+00	3,3E+00	8,6E-08	5,4E-04	1,4E-03	1,2E-01	6,0E+00
80 Jahre	3,8E-01	4,8E-01	6,2E-08	3,9E-04	2,0E-04	1,8E-02	8,7E-01
130 Jahre	3,4E-02	4,3E-02	1,1E-08	6,9E-05	1,8E-05	1,6E-03	7,9E-02
<b>Pu-242</b>							
40 Jahre	7,4E-02	9,3E-02	1,5E-11	1,5E-05	3,9E-05	3,4E-03	1,7E-01
80 Jahre	7,4E-02	9,3E-02	7,3E-11	7,2E-05	3,9E-05	3,4E-03	1,7E-01
130 Jahre	7,4E-02	9,4E-02	1,5E-10	1,4E-04	3,9E-05	3,4E-03	1,7E-01

Tabelle 4-6: Nuklid- und pfadspezifische Strahlenexposition des Erwachsenen in mSv/a für Plutoniumisotope (Pu-Inventar: 28 kg, Lebensgewohnheiten analog AVV zu § 47 StrlSchV)

Zeit ab Beginn des Absaufens	Expositionspfad						
	Trinkwasser	Ingestion nach Beregnung	Bodenstrahlung	Inhalation	Viehtränke	Fischverzehr	Summe
<b>Pu-238</b>							
40 Jahre	4,0E+00	9,5E+00	6,4E-09	3,5E-02	2,3E-02	1,7E+00	1,5E+01
80 Jahre	2,9E+00	6,9E+00	2,3E-08	1,3E-01	1,7E-02	1,2E+00	1,1E+01
130 Jahre	2,0E+00	4,7E+00	3,1E-08	1,7E-01	1,1E-02	8,4E-01	7,7E+00
<b>Pu-239</b>							
40 Jahre	3,3E+00	7,8E+00	2,3E-09	2,9E-02	1,9E-02	1,4E+00	1,3E+01
80 Jahre	3,3E+00	7,9E+00	1,1E-08	1,4E-01	1,9E-02	1,4E+00	1,3E+01
130 Jahre	3,3E+00	7,9E+00	2,2E-08	2,8E-01	1,9E-02	1,4E+00	1,3E+01
<b>Pu-240</b>							
40 Jahre	3,8E+00	9,1E+00	5,4E-09	3,3E-02	2,2E-02	1,6E+00	1,5E+01
80 Jahre	3,8E+00	9,1E+00	2,7E-08	1,6E-01	2,2E-02	1,6E+00	1,5E+01
130 Jahre	3,8E+00	9,1E+00	5,2E-08	3,2E-01	2,2E-02	1,6E+00	1,5E+01
<b>Pu-241</b>							
40 Jahre	3,6E-01	8,6E-01	5,1E-08	3,3E-03	2,1E-03	1,5E-01	1,4E+00
80 Jahre	5,3E-02	1,3E-01	3,7E-08	2,4E-03	3,0E-04	2,3E-02	2,0E-01
130 Jahre	4,7E-03	1,1E-02	6,6E-09	4,2E-04	2,7E-05	2,0E-03	1,9E-02
<b>Pu-242</b>							
40 Jahre	7,2E-03	1,7E-02	8,7E-12	6,0E-05	4,2E-05	3,1E-03	2,8E-02
80 Jahre	7,2E-03	1,7E-02	4,3E-11	3,0E-04	4,2E-05	3,1E-03	2,8E-02
130 Jahre	7,2E-03	1,7E-02	8,5E-11	5,8E-04	4,2E-05	3,1E-03	2,8E-02

Tabelle 4-7: Strahlenexposition der einzelnen Referenzpersonen in mSv/a (Pu-Inventar:  
28 kg, Lebensgewohnheiten analog AVV zu § 47 StrlSchV)

Zeit ab Beginn des Absaufens	Expositionspfad					
	Trinkwas- ser	Ingestion nach Be- regnung	Boden- strahlung	Inhalation	Viehtränke	Fischver- zehr
<b>Referenzperson Alter ≤ 1 Jahr</b>						
40 Jahre	2,3E+02	3,0E+02	2,7E-05	4,4E-02	7,3E-01	2,3E+01
80 Jahre	2,1E+02	2,8E+02	5,2E-05	2,0E-01	5,1E-01	2,1E+01
130 Jahre	1,9E+02	2,5E+02	3,7E-05	3,5E-01	4,0E-01	1,9E+01
<b>Referenzperson Alter &gt; 1 bis ≤ 2 Jahre</b>						
40 Jahre	1,2E+01	6,0E+01	2,5E-05	7,4E-02	7,0E-01	1,7E+01
80 Jahre	1,0E+01	5,4E+01	4,9E-05	3,3E-01	4,0E-01	1,4E+01
130 Jahre	9,2E+00	4,7E+01	3,5E-05	5,9E-01	2,6E-01	1,2E+01
<b>Referenzperson Alter &gt; 2 bis ≤ 7 Jahre</b>						
40 Jahre	8,6E+00	6,9E+01	2,2E-05	8,7E-02	7,0E-01	1,3E+01
80 Jahre	7,7E+00	6,3E+01	4,2E-05	3,9E-01	4,1E-01	1,0E+01
130 Jahre	6,9E+00	5,5E+01	3,0E-05	7,0E-01	2,6E-01	8,9E+00
<b>Referenzperson Alter &gt; 7 bis ≤ 12 Jahre</b>						
40 Jahre	1,1E+01	6,7E+01	2,0E-05	1,3E-01	8,4E-01	1,7E+01
80 Jahre	9,5E+00	6,0E+01	3,9E-05	5,7E-01	4,7E-01	1,3E+01
130 Jahre	8,5E+00	5,2E+01	2,8E-05	1,0E+00	2,9E-01	1,1E+01
<b>Referenzperson Alter &gt; 12 bis ≤ 17 Jahre</b>						
40 Jahre	1,4E+01	6,8E+01	1,8E-05	1,5E-01	1,1E+00	1,9E+01
80 Jahre	1,2E+01	6,0E+01	3,6E-05	6,7E-01	6,1E-01	1,4E+01
130 Jahre	1,0E+01	5,0E+01	2,5E-05	1,2E+00	3,6E-01	1,1E+01
<b>Referenzperson Alter &gt; 17 Jahre</b>						
40 Jahre	2,2E+01	5,6E+01	1,7E-05	1,8E-01	8,3E-01	2,6E+01
80 Jahre	2,0E+01	5,0E+01	3,2E-05	8,1E-01	4,3E-01	2,0E+01
130 Jahre	1,8E+01	4,4E+01	2,3E-05	1,4E+00	2,4E-01	1,7E+01

Tabelle 4-8: Nuklid- und pfadspezifische Strahlenexposition des Kleinkinds (Alter ≤ 1 Jahr) in mSv/a (Pu-Inventar: 11,8 kg, Lebensgewohnheiten analog Berechnungsgrundlagen Bergbau)

Zeit ab Beginn des Absaufens	Expositionspfad						Summe
	Trinkwasser	Ingestion nach Berechnung	Bodenstrahlung	Inhalation	Viehtränke	Fischverzehr	
<b>Ni-63</b>							
40 Jahre	7,7E-02	3,0E-02	0,0E-00	1,9E-06	6,2E-03	9,0E-03	1,2E-01
80 Jahre	5,8E-02	2,8E-02	0,0E-00	6,9E-06	4,7E-03	6,8E-03	9,8E-02
130 Jahre	4,1E-02	2,3E-02	0,0E-00	9,6E-06	3,3E-03	4,8E-03	7,3E-02
<b>Sr-90</b>							
40 Jahre	2,2E+00	1,6E+00	0,0E-00	2,5E-05	3,5E-02	7,6E-02	3,8E+00
80 Jahre	8,3E-01	1,1E+00	0,0E-00	1,9E-05	1,4E-02	2,9E-02	2,0E+00
130 Jahre	2,5E-01	3,9E-01	0,0E-00	5,9E-06	4,1E-03	8,8E-03	6,5E-01
<b>Cs-137</b>							
40 Jahre	3,5E-01	1,5E-01	2,9E-06	1,5E-05	2,3E-02	7,0E-02	6,0E-01
80 Jahre	1,4E-01	8,5E-02	5,3E-06	2,6E-05	9,2E-03	2,8E-02	2,6E-01
130 Jahre	4,5E-02	3,6E-02	3,1E-06	1,4E-05	2,9E-03	8,8E-03	9,2E-02
<b>Ra-228</b>							
40 Jahre	9,4E-01	3,6E-01	0,0E-00	1,2E-05	2,3E-02	1,1E-02	1,3E+00
80 Jahre	9,4E-01	3,6E-01	0,0E-00	1,2E-05	2,3E-02	1,1E-02	1,4E+00
130 Jahre	9,4E-01	3,6E-01	0,0E-00	1,2E-05	2,3E-02	1,1E-02	1,4E+00
<b>Th-228</b>							
40 Jahre	1,2E-01	4,4E-02	0,0E-00	4,0E-05	2,5E-05	4,1E-03	1,6E-01
80 Jahre	1,2E-01	4,4E-02	0,0E-00	4,0E-05	2,5E-05	4,1E-03	1,6E-01
130 Jahre	1,2E-01	4,4E-02	0,0E-00	4,0E-05	2,5E-05	4,1E-03	1,6E-01
<b>Th-232</b>							
40 Jahre	1,4E-01	5,4E-02	1,1E-10	5,8E-05	3,1E-05	5,0E-03	2,0E-01
80 Jahre	1,4E-01	5,4E-02	5,6E-10	2,8E-04	3,1E-05	5,0E-03	2,0E-01
130 Jahre	1,4E-01	5,5E-02	1,1E-09	5,6E-04	3,1E-05	5,0E-03	2,0E-01
<b>Pu-238</b>							
40 Jahre	9,0E+00	3,4E+00	5,3E-10	3,6E-03	2,4E-03	8,4E-02	1,2E+01
80 Jahre	6,6E+00	2,5E+00	1,9E-09	1,3E-02	1,7E-03	6,1E-02	9,1E+00
130 Jahre	4,4E+00	1,7E+00	2,6E-09	1,7E-02	1,2E-03	4,1E-02	6,2E+00
<b>Pu-239</b>							
40 Jahre	7,2E+00	2,7E+00	1,8E-10	2,9E-03	1,9E-03	6,7E-02	9,9E+00
80 Jahre	7,2E+00	2,7E+00	9,1E-10	1,4E-02	1,9E-03	6,7E-02	9,9E+00
130 Jahre	7,2E+00	2,7E+00	1,8E-09	2,8E-02	1,9E-03	6,7E-02	1,0E+01
<b>Pu-240</b>							
40 Jahre	8,2E+00	3,1E+00	4,4E-10	3,3E-03	2,2E-03	7,7E-02	1,1E+01
80 Jahre	8,2E+00	3,1E+00	2,2E-09	1,6E-02	2,2E-03	7,6E-02	1,1E+01
130 Jahre	8,2E+00	3,1E+00	4,3E-09	3,2E-02	2,1E-03	7,6E-02	1,1E+01
<b>Pu-241</b>							
40 Jahre	5,5E-01	2,1E-01	4,1E-09	2,3E-04	1,4E-04	5,1E-03	7,6E-01
80 Jahre	8,0E-02	3,0E-02	3,0E-09	1,7E-04	2,1E-05	7,5E-04	1,1E-01
130 Jahre	7,2E-03	2,7E-03	5,4E-10	2,9E-05	1,9E-06	6,7E-05	1,0E-02



Tabelle 4-8 – Fortsetzung

Zeit ab Beginn des Absaufens	Expositionsprofil						Summe
	Trink- wasser	Ingestion nach Bereg- nung	Boden- strahlung	Inhalati- on	Vieh- tränke	Fisch- verzehr	
<b>Am-241</b>							
40 Jahre	3,9E+01	1,5E+01	8,5E-08	1,5E-02	2,3E-02	1,1E+00	5,5E+01
80 Jahre	3,7E+01	1,4E+01	3,9E-07	7,0E-02	2,2E-02	1,1E+00	5,3E+01
130 Jahre	3,5E+01	1,3E+01	7,1E-07	1,3E-01	2,1E-02	1,0E+00	5,1E+01

Tabelle 4-9: Nuklid- und pfadspezifische Strahlenexposition des Erwachsenen in mSv/a (Pu-  
Inventar: 11,8 kg, Lebensgewohnheiten analog Berechnungsgrundlagen Berg-  
bau)

Zeit ab Beginn des Absaufens	Expositionsprofil						Summe
	Trink- wasser	Ingestion nach Bereg- nung	Boden- strahlung	Inhalati- on	Vieh- tränke	Fisch- verzehr	
<b>Ni-63</b>							
40 Jahre	1,2E-02	6,6E-03	0,0E-00	3,7E-06	1,9E-03	1,3E-02	3,3E-02
80 Jahre	8,9E-03	6,0E-03	0,0E-00	1,4E-05	1,4E-03	9,6E-03	2,6E-02
130 Jahre	6,3E-03	5,1E-03	0,0E-00	1,9E-05	1,0E-03	6,8E-03	1,9E-02
<b>Sr-90</b>							
40 Jahre	4,3E-01	4,3E-01	0,0E-00	6,9E-05	1,4E-02	1,4E-01	1,0E+00
80 Jahre	1,7E-01	3,1E-01	0,0E-00	5,3E-05	5,6E-03	5,3E-02	5,4E-01
130 Jahre	5,0E-02	1,1E-01	0,0E-00	1,7E-05	1,7E-03	1,6E-02	1,8E-01
<b>Cs-137</b>							
40 Jahre	3,6E-01	2,1E-01	1,8E-06	3,9E-05	1,3E-01	6,5E-01	1,3E+00
80 Jahre	1,4E-01	1,2E-01	3,3E-06	6,8E-05	5,1E-02	2,6E-01	5,7E-01
130 Jahre	4,5E-02	5,1E-02	1,9E-06	3,7E-05	1,6E-02	8,2E-02	1,9E-01
<b>Ra-228</b>							
40 Jahre	3,5E-02	1,9E-02	0,0E-00	3,0E-05	1,8E-03	3,8E-03	6,0E-02
80 Jahre	3,5E-02	1,9E-02	0,0E-00	3,0E-05	1,8E-03	3,8E-03	6,0E-02
130 Jahre	3,5E-02	1,9E-02	0,0E-00	3,0E-05	1,8E-03	3,8E-03	6,0E-02
<b>Th-228</b>							
40 Jahre	3,7E-03	2,0E-03	0,0E-00	7,4E-05	7,4E-06	1,2E-03	6,9E-03
80 Jahre	3,7E-03	2,0E-03	0,0E-00	7,4E-05	7,4E-06	1,2E-03	6,9E-03
130 Jahre	3,7E-03	2,0E-03	0,0E-00	7,4E-05	7,4E-06	1,2E-03	6,9E-03
<b>Th-232</b>							
40 Jahre	1,2E-02	6,3E-03	6,6E-11	2,0E-04	2,4E-05	3,8E-03	2,2E-02
80 Jahre	1,2E-02	6,3E-03	3,3E-10	1,0E-03	2,4E-05	3,8E-03	2,3E-02
130 Jahre	1,2E-02	6,4E-03	6,5E-10	2,0E-03	2,4E-05	3,8E-03	2,4E-02
<b>Pu-238</b>							
40 Jahre	8,4E-01	4,5E-01	3,1E-10	1,5E-02	2,4E-03	7,2E-02	1,4E+00
80 Jahre	6,2E-01	3,3E-01	1,1E-09	5,3E-02	1,8E-03	5,3E-02	1,1E+00
130 Jahre	4,2E-01	2,2E-01	1,5E-09	7,1E-02	1,2E-03	3,6E-02	7,5E-01

Tabelle 4-9 – Fortsetzung

Zeit ab Beginn des Absaufens	Expositionspfad						Summe
	Trink- wasser	Ingestion nach Bereg- nung	Boden- strahlung	Inhalati- on	Vieh- tränke	Fisch- verzehr	
<b>Pu-239</b>							
40 Jahre	7,0E-01	3,7E-01	1,0E-10	1,2E-02	2,0E-03	6,0E-02	1,1E+00
80 Jahre	6,9E-01	3,7E-01	5,4E-10	6,0E-02	2,0E-03	6,0E-02	1,2E+00
130 Jahre	6,9E-01	3,8E-01	1,0E-09	1,2E-01	2,0E-03	5,9E-02	1,3E+00
<b>Pu-240</b>							
40 Jahre	8,0E-01	4,3E-01	2,6E-10	1,4E-02	2,3E-03	6,9E-02	1,3E+00
80 Jahre	8,0E-01	4,3E-01	1,2E-09	6,9E-02	2,3E-03	6,8E-02	1,4E+00
130 Jahre	7,9E-01	4,3E-01	2,5E-09	1,3E-01	2,3E-03	6,8E-02	1,4E+00
<b>Pu-241</b>							
40 Jahre	7,7E-02	4,1E-02	2,4E-09	1,4E-03	2,2E-04	6,6E-03	1,3E-01
80 Jahre	1,1E-02	6,0E-03	1,8E-09	1,0E-03	3,2E-05	9,6E-04	1,9E-02
130 Jahre	1,0E-03	5,5E-04	3,2E-10	1,8E-04	2,9E-06	8,7E-05	1,8E-03
<b>Am-241</b>							
40 Jahre	3,4E+00	1,8E+00	4,9E-08	6,0E-02	1,8E-02	9,2E-01	6,3E+00
80 Jahre	3,3E+00	1,8E+00	2,3E-07	2,8E-01	1,7E-02	8,9E-01	6,3E+00
130 Jahre	3,1E+00	1,7E+00	4,1E-07	5,0E-01	1,6E-02	8,2E-01	6,1E+00

Tabelle 4-10: Strahlenexposition der einzelnen Referenzpersonen in mSv/a (Pu-Inventar:  
11,8 kg, Lebensgewohnheiten analog Berechnungsgrundlagen Bergbau)

Zeit ab Beginn des Absaufens	Expositions-pfad					
	Trinkwas- ser	Ingestion nach Be- regnung	Boden- strahlung	Inhalation	Viehtränke	Fischver- zehr
<b>Referenzperson Alter ≤ 1 Jahr</b>						
40 Jahre	6,8E+01	2,6E+01	3,0E-06	2,5E-02	1,2E-01	1,6E+00
80 Jahre	6,2E+01	2,4E+01	5,8E-06	1,1E-01	8,3E-02	1,4E+00
130 Jahre	5,6E+01	2,2E+01	3,9E-06	2,1E-01	6,4E-02	1,3E+00
<b>Referenzperson Alter &gt; 1 bis ≤ 2 Jahre</b>						
40 Jahre	3,6E+00	5,4E+00	2,8E-06	4,3E-02	1,2E-01	1,3E+00
80 Jahre	3,1E+00	4,9E+00	5,4E-06	1,9E-01	6,8E-02	1,0E+00
130 Jahre	2,7E+00	4,2E+00	3,7E-06	3,5E-01	4,3E-02	8,4E-01
<b>Referenzperson Alter &gt; 2 bis ≤ 7 Jahre</b>						
40 Jahre	2,6E+00	5,3E+00	2,4E-06	5,0E-02	1,3E-01	9,4E-01
80 Jahre	2,3E+00	4,8E+00	4,7E-06	2,2E-01	7,2E-02	7,3E-01
130 Jahre	2,0E+00	4,1E+00	3,2E-06	4,0E-01	4,4E-02	6,1E-01
<b>Referenzperson Alter &gt; 7 bis ≤ 12 Jahre</b>						
40 Jahre	3,4E+00	5,3E+00	2,2E-06	7,3E-02	1,6E-01	1,3E+00
80 Jahre	2,9E+00	4,6E+00	4,3E-06	3,3E-01	8,4E-02	9,5E-01
130 Jahre	2,5E+00	3,8E+00	3,0E-06	5,9E-01	4,9E-02	7,6E-01
<b>Referenzperson Alter &gt; 12 bis ≤ 17 Jahre</b>						
40 Jahre	4,4E+00	5,3E+00	2,0E-06	8,6E-02	2,2E-01	1,5E+00
80 Jahre	3,6E+00	4,6E+00	4,0E-06	3,9E-01	1,1E-01	1,0E+00
130 Jahre	3,1E+00	3,6E+00	2,7E-06	6,9E-01	6,3E-02	7,9E-01
<b>Referenzperson Alter &gt; 17 Jahre</b>						
40 Jahre	6,8E+00	3,8E+00	1,9E-06	1,0E-01	1,7E-01	2,0E+00
80 Jahre	5,8E+00	3,4E+00	3,6E-06	4,7E-01	8,4E-02	1,4E+00
130 Jahre	5,2E+00	2,9E+00	2,4E-06	8,3E-01	4,3E-02	1,1E+00

Tabelle 4-11: Nuklid- und pfadspezifische Strahlenexposition des Kleinkinds (Alter  $\leq 1$  Jahr) in mSv/a für Plutoniumisotope (Pu-Inventar: 28 kg, Lebensgewohnheiten analog Berechnungsgrundlagen Bergbau)

Zeit ab Beginn des Absaufens	Expositionspfad						Summe
	Trinkwasser	Ingestion nach Berechnung	Bodenstrahlung	Inhalation	Viehtränke	Fischverzehr	
<b>Pu-238</b>							
40 Jahre	2,1E+01	8,0E+00	1,2E-09	8,5E-03	5,6E-03	2,0E-01	2,9E+01
80 Jahre	1,5E+01	5,8E+00	4,5E-09	3,1E-02	4,1E-03	1,4E-01	2,2E+01
130 Jahre	1,0E+01	3,9E+00	6,0E-09	4,1E-02	2,7E-03	9,7E-02	1,4E+01
<b>Pu-239</b>							
40 Jahre	1,7E+01	6,4E+00	4,4E-10	6,8E-03	4,5E-03	1,6E-01	2,4E+01
80 Jahre	1,7E+01	6,4E+00	2,2E-09	3,3E-02	4,4E-03	1,6E-01	2,4E+01
130 Jahre	1,7E+01	6,4E+00	4,3E-09	6,6E-02	4,4E-03	1,6E-01	2,4E+01
<b>Pu-240</b>							
40 Jahre	2,0E+01	7,3E+00	1,0E-09	7,8E-03	5,1E-03	1,8E-01	2,7E+01
80 Jahre	2,0E+01	7,3E+00	5,2E-09	3,8E-02	5,1E-03	1,8E-01	2,7E+01
130 Jahre	1,9E+01	7,3E+00	1,0E-08	7,5E-02	5,1E-03	1,8E-01	2,7E+01
<b>Pu-241</b>							
40 Jahre	1,3E+00	4,8E-01	9,8E-09	5,4E-04	3,4E-04	1,2E-02	1,8E+00
80 Jahre	1,9E-01	7,1E-02	7,1E-09	3,9E-04	4,9E-05	1,8E-03	2,6E-01
130 Jahre	1,7E-02	6,4E-03	1,2E-09	6,9E-05	4,5E-06	1,6E-04	2,4E-02
<b>Pu-242</b>							
40 Jahre	3,7E-02	1,4E-02	1,7E-12	1,5E-05	9,7E-06	3,4E-04	5,1E-02
80 Jahre	3,7E-02	1,4E-02	8,4E-12	7,2E-05	9,7E-06	3,4E-04	5,1E-02
130 Jahre	3,7E-02	1,4E-02	1,7E-11	1,4E-04	9,7E-06	3,4E-04	5,1E-02

Tabelle 4-12: Nuklid- und pfadspezifische Strahlenexposition des Erwachsenen in mSv/a für Plutoniumisotope und Am-241 (Pu-Inventar: 28 kg, Lebensgewohnheiten analog Berechnungsgrundlagen Bergbau)

Zeit ab Beginn des Absaufens	Expositionspfad						
	Trinkwasser	Ingestion nach Beregnung	Bodenstrahlung	Inhalation	Viehtränke	Fischverzehr	Summe
<b>Pu-238</b>							
40 Jahre	2,0E+00	1,1E+00	7,3E-10	3,5E-02	5,8E-03	1,7E-01	3,3E+00
80 Jahre	1,5E+00	7,8E-01	2,7E-09	1,3E-01	4,2E-03	1,2E-01	2,5E+00
130 Jahre	9,8E-01	5,3E-01	3,6E-09	1,7E-01	2,8E-03	8,4E-02	1,8E+00
<b>Pu-239</b>							
40 Jahre	1,6E+00	8,8E-01	2,6E-10	2,9E-02	4,8E-03	1,4E-01	2,7E+00
80 Jahre	1,6E+00	8,8E-01	1,2E-09	1,4E-01	4,8E-03	1,4E-01	2,8E+00
130 Jahre	1,6E+00	8,9E-01	2,5E-09	2,8E-01	4,7E-03	1,4E-01	3,0E+00
<b>Pu-240</b>							
40 Jahre	1,9E+00	1,0E+00	6,1E-10	3,3E-02	5,5E-03	1,6E-01	3,1E+00
80 Jahre	1,9E+00	1,0E+00	3,0E-09	1,6E-01	5,5E-03	1,6E-01	3,2E+00
130 Jahre	1,9E+00	1,0E+00	6,0E-09	3,2E-01	5,4E-03	1,6E-01	3,4E+00
<b>Pu-241</b>							
40 Jahre	1,8E-01	9,6E-02	5,8E-09	3,3E-03	5,2E-04	1,5E-02	3,0E-01
80 Jahre	2,6E-02	1,4E-02	4,2E-09	2,4E-03	7,6E-05	2,3E-03	4,5E-02
130 Jahre	2,4E-03	1,3E-03	7,5E-10	4,2E-04	6,9E-06	2,0E-04	4,3E-03
<b>Pu-242</b>							
40 Jahre	3,6E-03	1,9E-03	9,9E-13	6,0E-05	1,0E-05	3,1E-04	5,9E-03
80 Jahre	3,6E-03	1,9E-03	4,9E-12	3,0E-04	1,0E-05	3,1E-04	6,1E-03
130 Jahre	3,6E-03	1,9E-03	9,7E-12	5,8E-04	1,0E-05	3,1E-04	6,4E-03

Tabelle 4-13: Strahlenexposition der einzelnen Referenzpersonen in mSv/a (Pu-Inventar:  
28 kg, Lebensgewohnheiten analog Berechnungsgrundlagen Bergbau)

Zeit ab Beginn des Absaufens	Expositionspfad					
	Trinkwas- ser	Ingestion nach Be- regnung	Boden- strahlung	Inhalation	Viehtränke	Fischver- zehr
<b>Referenzperson Alter ≤ 1 Jahr</b>						
40 Jahre	1,2E+02	4,4E+01	3,0E-06	4,4E-02	1,4E-01	2,3E+00
80 Jahre	1,1E+02	4,1E+01	5,9E-06	2,0E-01	9,9E-02	2,1E+00
130 Jahre	9,6E+01	3,7E+01	4,2E-06	3,5E-01	7,9E-02	1,9E+00
<b>Referenzperson Alter &gt; 1 bis ≤ 2 Jahre</b>						
40 Jahre	5,8E+00	8,5E+00	2,8E-06	7,4E-02	1,3E-01	1,7E+00
80 Jahre	5,1E+00	7,8E+00	5,6E-06	3,3E-01	7,2E-02	1,4E+00
130 Jahre	4,6E+00	7,0E+00	3,9E-06	5,9E-01	4,7E-02	1,2E+00
<b>Referenzperson Alter &gt; 2 bis ≤ 7 Jahre</b>						
40 Jahre	4,3E+00	8,5E+00	2,5E-06	8,7E-02	1,4E-01	1,3E+00
80 Jahre	3,9E+00	7,8E+00	4,8E-06	3,9E-01	8,3E-02	1,0E+00
130 Jahre	3,5E+00	6,9E+00	3,4E-06	7,0E-01	5,4E-02	8,9E-01
<b>Referenzperson Alter &gt; 7 bis ≤ 12 Jahre</b>						
40 Jahre	5,4E+00	8,2E+00	2,3E-06	1,3E-01	1,7E-01	1,7E+00
80 Jahre	4,8E+00	7,3E+00	4,5E-06	5,7E-01	9,6E-02	1,3E+00
130 Jahre	4,3E+00	6,3E+00	3,2E-06	1,0E+00	6,0E-02	1,1E+00
<b>Referenzperson Alter &gt; 12 bis ≤ 17 Jahre</b>						
40 Jahre	6,9E+00	7,9E+00	2,1E-06	1,5E-01	2,3E-01	1,9E+00
80 Jahre	5,9E+00	7,0E+00	4,1E-06	6,7E-01	1,3E-01	1,4E+00
130 Jahre	5,2E+00	5,8E+00	2,8E-06	1,2E+00	7,5E-02	1,1E+00
<b>Referenzperson Alter &gt; 17 Jahre</b>						
40 Jahre	1,1E+01	6,2E+00	1,9E-06	1,8E-01	1,9E-01	2,6E+00
80 Jahre	9,9E+00	5,6E+00	3,7E-06	8,1E-01	9,8E-02	2,0E+00
130 Jahre	8,9E+00	4,9E+00	2,6E-06	1,4E+00	5,6E-02	1,7E+00

## **5 Strahlenexposition unter Berücksichtigung von Löslichkeitsgrenzen und Transportrechnung (Szenario II)**

Im folgenden Kapitel werden die Ergebnisse der Berechnung von Strahlenexpositionen angegeben, die die Löslichkeitsgrenzen von Radionukliden in der Salzlösung (siehe Kapitel 3.1.1) sowie die Verzögerung und Rückhaltung beim Transport durch das Deckgebirge einbeziehen. In Kapitel 5.1 wird zunächst die Herangehensweise bei der Ermittlung der Sensitivität durch Variierung einzelner Parameter erläutert. Die Beispiele der Berechnungen zum Nuklidtransport im Deckgebirge werden im Kapitel 5.2 diskutiert. In Kapitel 5.3 werden die Vorgehensweise und Ergebnisse der darauf aufbauenden Dosisermittlungen dargestellt. Kapitel 5.4 enthält die Ergebnisse der Berechnung der Dosen für drei Fälle unter Annahme verschiedener Auspressraten, sowie die sich daraus ergebenden Abstandsgeschwindigkeiten sowie Auspresszeiten.

### **5.1 Variierung der Parameter**

Die im Kapitel 3 definierten Parameter wurden so variiert, dass der Einfluss verschiedener– auch weniger realistischer– Parameterkombinationen auf die resultierende Dosis ermittelt und im Vergleich dargestellt werden kann.

Es wurde zunächst die Sensitivität der resultierenden Aktivitätskonzentration im Hinblick auf stufenweise erhöhte Werte der Abstandsgeschwindigkeiten ermittelt. Wegen dem unterschiedlichen Transportverhalten einzelner Radionuklide wurden die Berechnungen für lange Zeitspannen (siehe Kapitel 5.2) durchgeführt, um auch das Verhalten wenig mobiler aber langlebiger Radionuklide abbilden zu können. Es wurde die Annahme getroffen, dass die Abstandsgeschwindigkeit über die gesamte jeweils betrachtete Zeitspanne konstant bleibt, was vor allem bei den höheren Abstandsgeschwindigkeiten nicht der Realität entspricht, da abhängig von der Auspressrate von Lösung aus dem Grubengebäude nach einer gewissen Zeit die Konvektion abgeschlossen ist und damit auch kein Druck mehr besteht, der zu einer Auspressung mit hoher Abstandsgeschwindigkeit führen könnte .

Alle Berechnungen wurden gesondert für alle relevanten Gesteinsschichten der Transportpfade unter der Annahme durchgeführt, dass sich die jeweilige Schicht über die gesamte Pfadlänge erstreckt. Darauf basierend wurde die kritische Schicht als die Schicht mit den höchsten Werten der Aktivitätskonzentration identifiziert und konservativ den Schlussfolgerungen zugrunde gelegt. Im Weiteren werden die Ergebnisse primär im Bezug auf den kürzeren Pfad I präsentiert, der sich bei diesem Vorgehen insgesamt als der kritische zeigt.

Für die kritische Gesteinsschicht und ausgewählte Abstandsgeschwindigkeiten wurden dann Berechnungen der Strahlenexposition durchgeführt. Dabei wurden als Variation der radioökologischen Berechnungen sowohl Lebensgewohnheiten der Referenzpersonen gemäß der AVV zu § 47 StrlSchV als auch nach den Berechnungsgrundlagen Bergbau zugrunde gelegt (siehe Kapitel 5.3).

## **5.2 Berechnungen zum Transport im Deckgebirge - Sensitivität resultierender Aktivitätskonzentrationen bei Variierung der Abstandsgeschwindigkeiten**

Die Ergebnisse der Berechnungen für den Transport von Radionukliden anhand der in Kapitel 3 dargestellten Modellierung und Parameterwahl werden nachfolgend an einigen Beispielen im Vergleich dargestellt, um die Einflüsse verschiedener Randbedingungen und Parameter diskutieren zu können.

Für die Berechnungen wurde vom nach oben korrigierten Plutoniuminventar von 28 kg ausgegangen (siehe Kapitel 2) und dessen vollständiger Eintrag in die Lösung angenommen. Beim Transport entlang einer Störung muss die Sorption nicht derjenigen im homogenen Gestein entsprechen, sondern kann geringer sein. Außerdem sind, insbesondere bei Aktiniden, kolloidale Transportmechanismen bekannt. Um die Wirkung der Sorption insgesamt nicht zu überschätzen wurden daher für Plutonium in den Berechnungen nicht die hohen Werte der Sorptionskoeffizienten nach /INE 2010/ angesetzt, sondern die niedrigen Sorptionskoeffizienten des Strontiums (siehe Kapitel 3.1.6.2). Je nach Gesteinsschicht sind die Sorptionskoeffizienten des Plutoniums dann bis zu drei Größenordnungen niedriger. Dies ist bei der Interpretation der in den Abbildungen 5-1 bis 5-4 präsentierten Ergebnisse zu beachten.

Ermittelt wurde auch, welche Radionuklide in welchen Zeiträumen die Aktivitätskonzentration im Grundwasser dominieren. Dazu wurden zunächst Berechnungen für Zeiträume bis zu 100.000 Jahren in Zeitschritten von 1000 Jahren durchgeführt und diese dann weiter verfeinert.

Zu welchen Zeiten die radiologisch relevanten Radionuklide Pu-239 und Pu-240 in Abhängigkeit von der Abstandsgeschwindigkeit zur Aktivitätskonzentration beitragen, wird in den Abbildungen 5-1 bis 5-4 demonstriert. Abbildung 5-1 zeigt den zeitlichen Konzentrationsverlauf für Pu-239 am Übergang in das oberflächennahe Grundwasser über den Pfad I bei der Abstandsgeschwindigkeit von 1 m/a. Variiert sind die Parameter der einzelnen Gesteinsschichten im Deckgebirge der Asse (siehe Tabelle 3-2), wobei jeweils angenommen wird, dass sich die Gesteinsschicht mit ihren Eigenschaften über die gesamte Länge des Pfades I erstreckt. Es wurde davon ausgegangen, dass sich die Abstandsgeschwindigkeit zeitlich und räumlich nicht ändert; andernfalls wäre die gewählte 1D-Modellierung nach Gleichung (3.1) nicht anwendbar. In Abbildung 5-2 sind die entsprechenden Ergebnisse für eine Abstandsgeschwindigkeit von 0,3 m/a aufgetragen.

Der Vergleich der Abbildungen zeigt, wie eine höhere Abstandsgeschwindigkeit zu höheren maximalen Konzentrationen führt, die zeitlich früher eintreten. Bei der Interpretation der Abbildungen ist zu beachten, dass die Kurvenverläufe zwischen den einzelnen eingezeichneten Punkten Interpolationen darstellen.

In Abbildung 5-3 sind für die Abstandsgeschwindigkeit von 1 m/a die Konzentrationen von Pu-240 über die Zeit aufgetragen. Der Vergleich der Konzentrationen für das Nuklid Pu-240 (Halbwertszeit 6560 Jahre) mit denen für das Nuklid Pu-239 (Halbwertszeit 24.100 Jahre, Abbildung 5-1) zeigt, wie zeitlich sehr entfernte Kon-



zentrationen, hier insbesondere im Gestein  $m_0$ , beim kürzerlebigen Nuklid durch dessen Zerfall reduziert werden.

In Abbildung 5-4 ist die Abstandsgeschwindigkeit auf 6 m/a angehoben. Eine solche hohe Abstandsgeschwindigkeit ist über lange Zeiträume (deutlich länger als das Auspressen von Lösung aus dem Grubengebäude durch dessen Konvektion) eher unwahrscheinlich. Siehe dazu auch Beschreibung zu den drei Rechenfällen in Kapitel 5.4, wo Werte der Abstandsgeschwindigkeiten entsprechend angenommenen Auspressraten abgeleitet wurden. Hierbei ergibt sich aus der Auspressrate nach /GRS 2009/ von 10.000 m<sup>3</sup>/a eine Abstandsgeschwindigkeit von 10 m/a. Dieser Wert wird für 130 Jahren konstant gehalten – bis zum Erschöpfen des auspressbaren Porenvolumens. In der Realität kommt es aber durch den voranschreitenden Druckausgleich zu einer Reduktion der Abstandsgeschwindigkeiten mit der Zeit. Des Weiteren ist auch die Annahme der konstanten Geschwindigkeit entlang der ganzen Fließstrecke in der fast ausschließlich vertikalen Richtung sehr konservativ. Das Beispiel soll hier aber demonstrieren, dass die Maxima der Konzentration im Zeitbereich bis 15.000 Jahren sich gegenüber Abbildung 5-2 kaum verändern, wohl aber zu späteren Zeiten, da dann aufgrund der deutlich geringeren Reduzierung durch radioaktiven Zerfall auch deutlich höhere Konzentrationen möglich wären.

Die Abbildungen 5-5 bis 5-7 beziehen sich immer auf das Gestein  $m_2$ , da sich die diskutierten Effekte, insbesondere die unterschiedlichen Zeitverläufe und Maxima, für dieses Gestein am besten demonstrieren lassen. Von der möglichen Strahlenexposition her ist dieses Gestein dagegen nicht immer das ungünstigste, sondern in der Regel das Gestein  $m_{1-3}$ .

Die verfeinerten Berechnungen für die ersten 1.000 Jahre haben gezeigt, dass in diesem Zeitraum die Radionuklide Cl-36, Ni-63 (in einigen Fällen Ni-59), Tc-99 und Th-232 die Aktivitätskonzentration im oberflächennahen Grundwasser dominieren. Bei der Abstandsgeschwindigkeit von 0,03 m/a werden die ersten Maxima, dominiert von Cl-36, erst nach 8.000 Jahren erreicht und nach 33.000 Jahren zeigt sich die Dominanz von Tc-99 (siehe Abbildung 5-5). Bei der Erhöhung der Abstandsgeschwindigkeit auf 0,3 m/a wird das Maximum nach 610 Jahren erreicht, wobei Ni-63 dominiert (Abbildung 5-6). Für die Abstandsgeschwindigkeit von 1 m/a ergeben sich für den Pfad I die Maxima der Aktivitätskonzentrationen nach 300 Jahren (Abbildung 5-7). In der Abbildung 5-8 werden für die gleiche Abstandsgeschwindigkeit aber über einen Zeitraum von 40.000 Jahren entsprechende Berechnungsergebnisse gezeigt, um die zeitliche Verschiebung des Beitrages von Pu-239 und Pu-240 zu demonstrieren. Daraus ist ersichtlich, dass erst nach 23.000 Jahren weitere Maxima der Aktivitätskonzentrationen - verursacht durch Pu-239 und Pu-240 – eintreten könnten. Es ist einerseits anzumerken, dass die Strahlenexpositionen in diesem Fall durch Pu-239 und Pu-239 deutlich höher wäre als durch die anderen früher relevanten Radionuklide. Andererseits ist aber nicht davon auszugehen, dass ein Auspressen mit der hohen Abstandsgeschwindigkeit über einen so langen Zeitraum zum Eintrag ins Grundwasser führen würde.

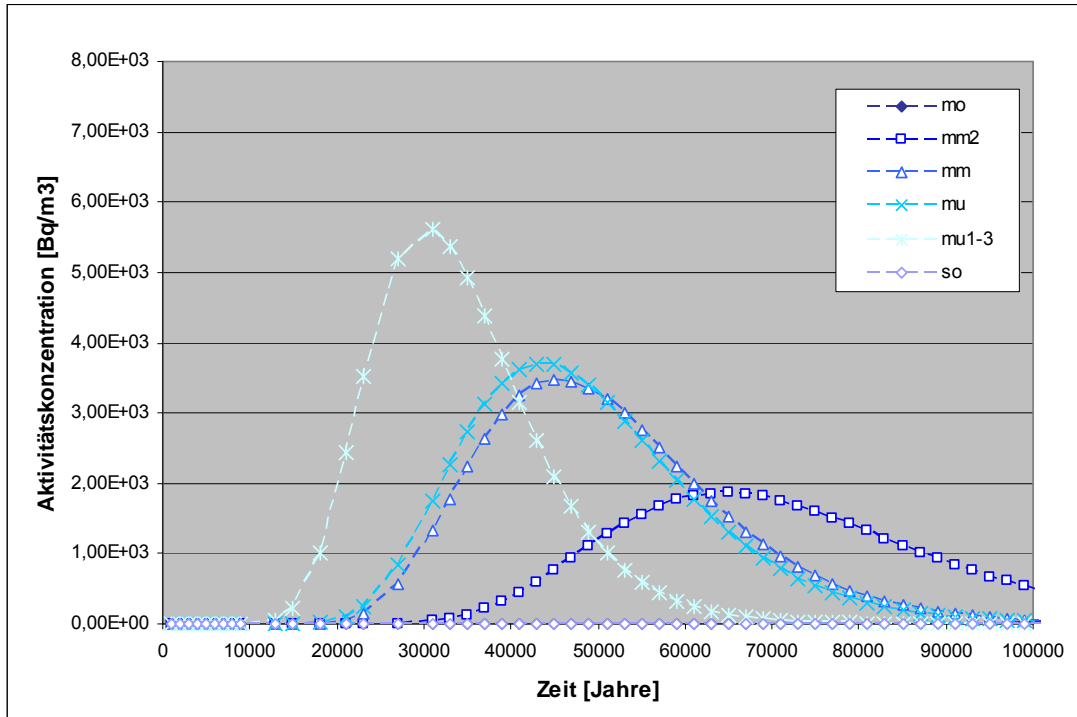


Abbildung 5-1: Zeitlicher Verlauf der Aktivitätskonzentration von Pu-239 in einzelnen Ge-  
steinen, Pfad I, Abstandsgeschwindigkeit  $u_a=0,3$  m/a,  $D_x=1E-07$  m<sup>2</sup>/s

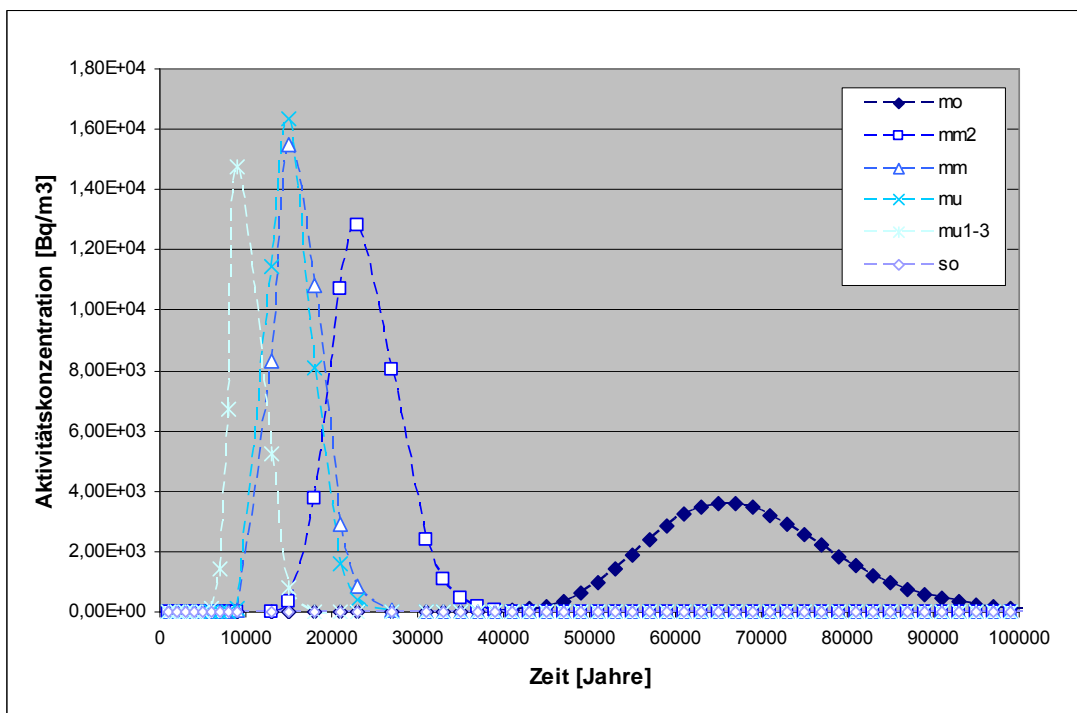


Abbildung 5-2: Zeitlicher Verlauf der Aktivitätskonzentration von Pu-239 in einzelnen Ge-  
steinen, Pfad I, Abstandsgeschwindigkeit  $u_a=1$  m/a,  $D_x=1E-07$  m<sup>2</sup>/s

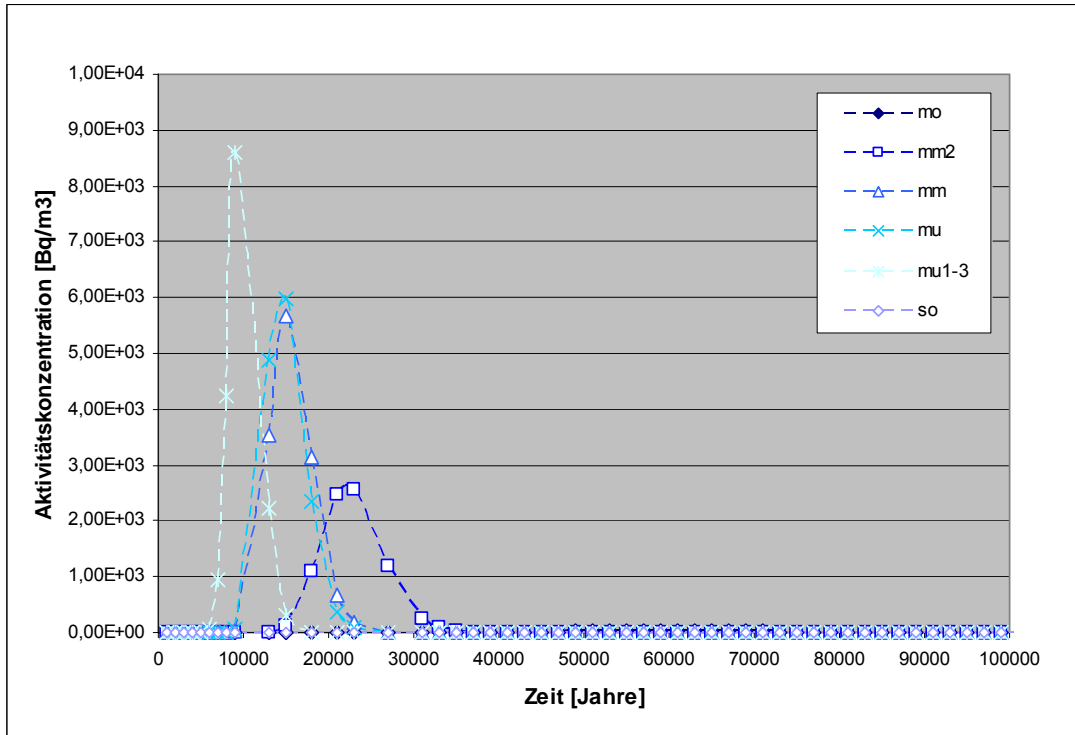


Abbildung 5-3: Zeitlicher Verlauf der Konzentration von Pu-240 in einzelnen Gesteinen, Pfad I, Abstandsgeschwindigkeit  $u_a=1$  m/a,  $D_x=1E-06$  m<sup>2</sup>/s

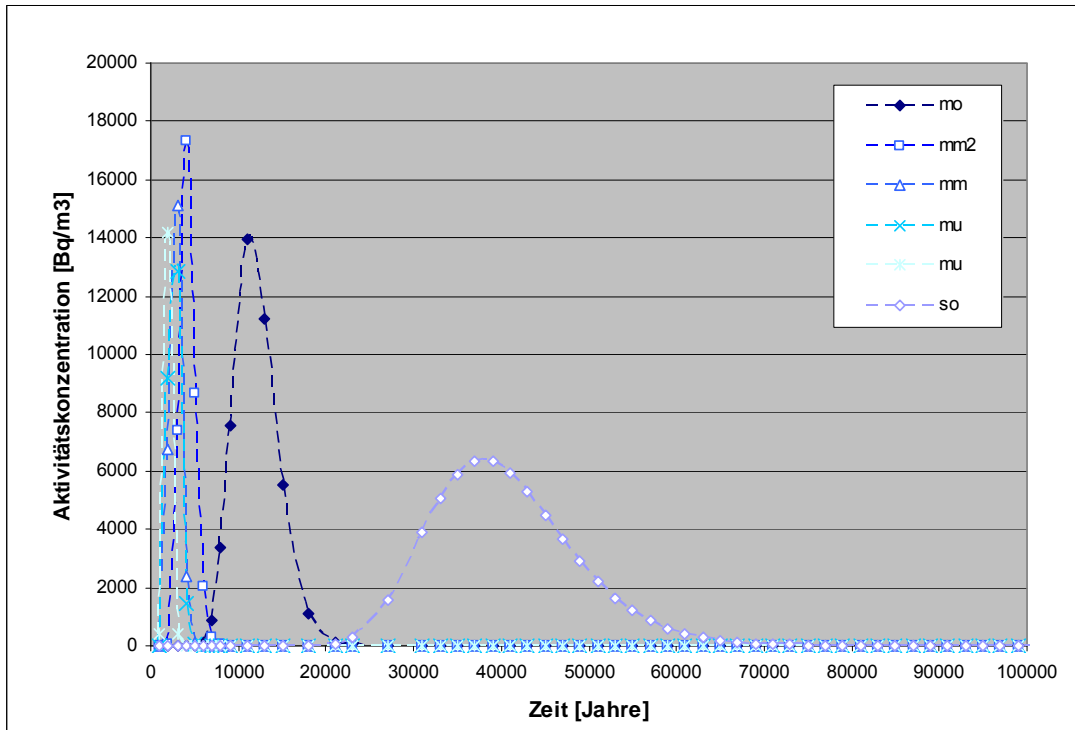


Abbildung 5-4: Zeitlicher Verlauf der Aktivitätskonzentration von Pu-239 in einzelnen Gesteinen, Pfad I, Abstandsgeschwindigkeit  $u_a=6$  m/a,  $D_x=1E-06$  m<sup>2</sup>/s

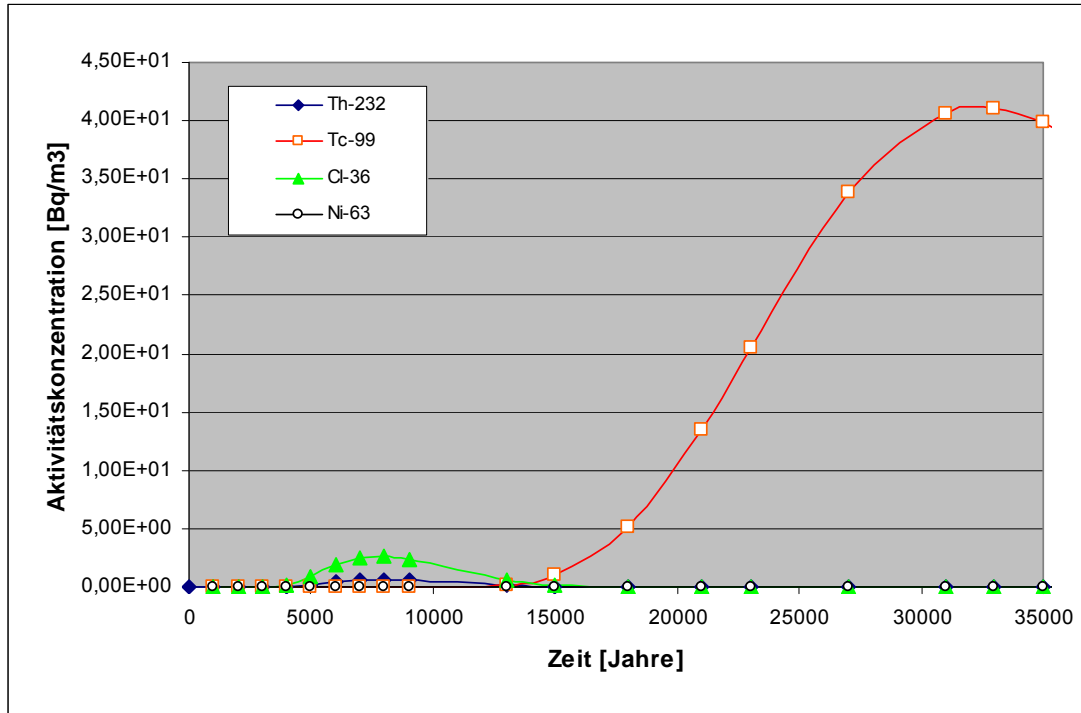


Abbildung 5-5: Zeitlicher Verlauf der Aktivitätskonzentration der im dargestellten Zeitraum dominanten Radionuklide Th-232, Tc-99, Cl-36 und Ni-63; Gestein mm2 und Abstandsgeschwindigkeit  $u_a=0,03$  m/a, Pfad I,  $D_x=1E-07$  m<sup>2</sup>/s

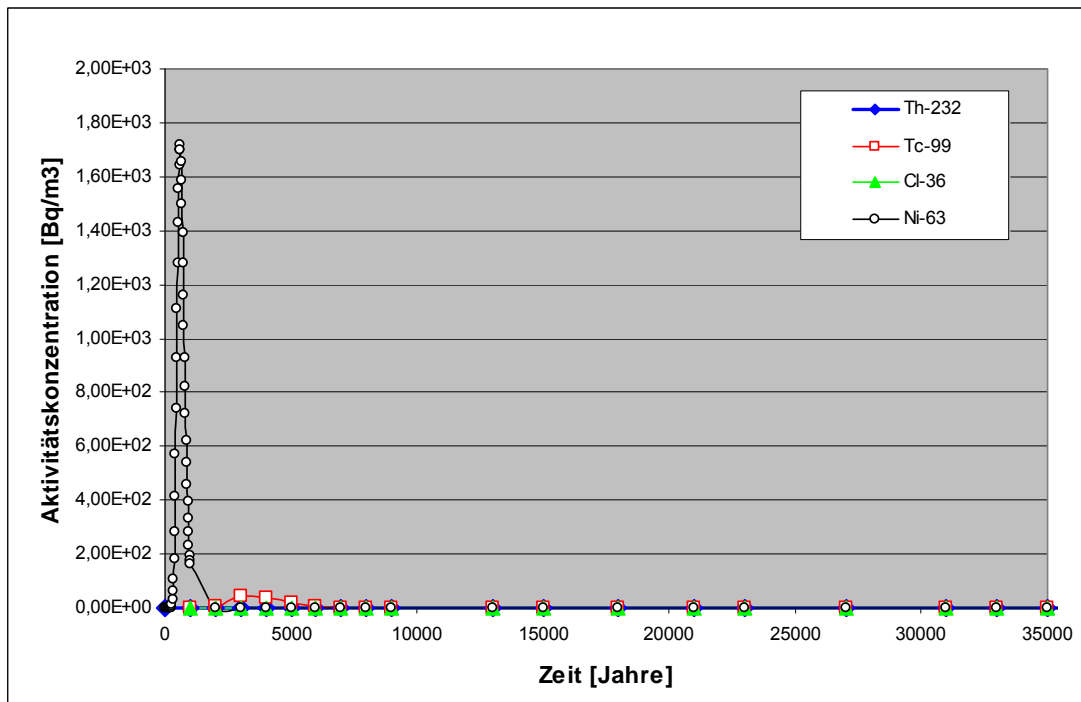


Abbildung 5-6: Zeitlicher Verlauf der Aktivitätskonzentration der im dargestellten Zeitraum dominanten Radionuklide Th-232, Tc-99, Cl-36 und Ni-63, Gestein mm2 und Abstandsgeschwindigkeit  $u_a=0,3$  m/a, Pfad I,  $D_x=1E-07$  m<sup>2</sup>/s

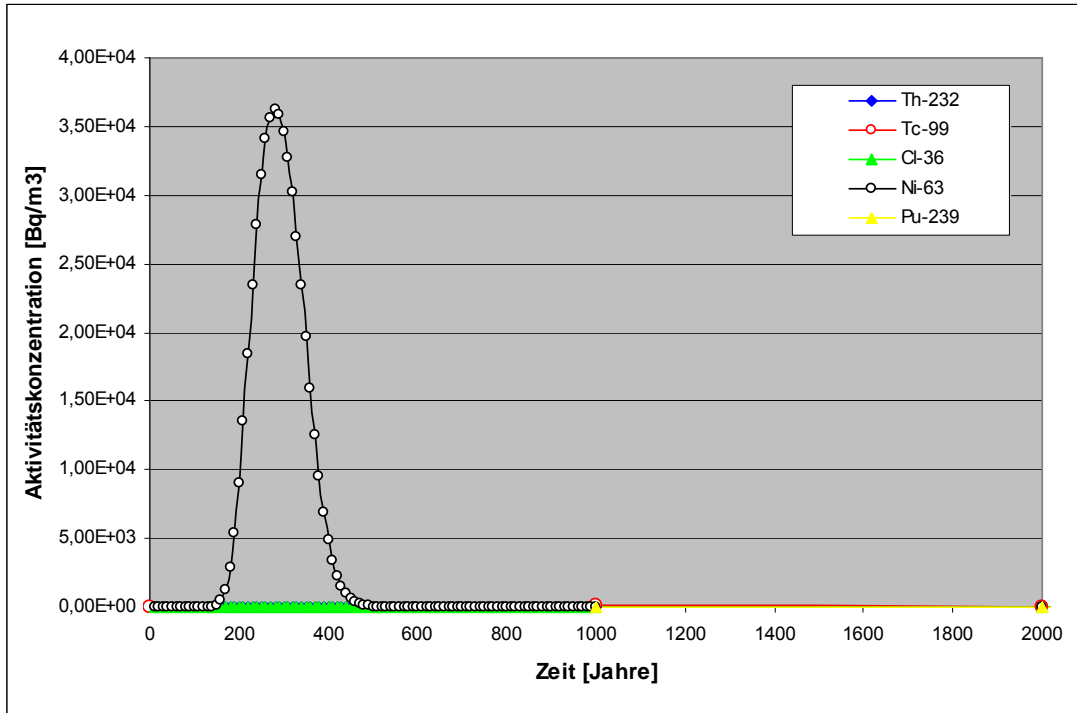


Abbildung 5-7: Zeitlicher Verlauf der Aktivitätskonzentration der im dargestellten Zeitraum dominanten Radionuklide Th-232, Tc-99, Cl-36 und Ni-63, Gestein mm2 und Abstandsgeschwindigkeit  $u_a=1$  m/a, Pfad I,  $D_x=1E-06$  m<sup>2</sup>/s

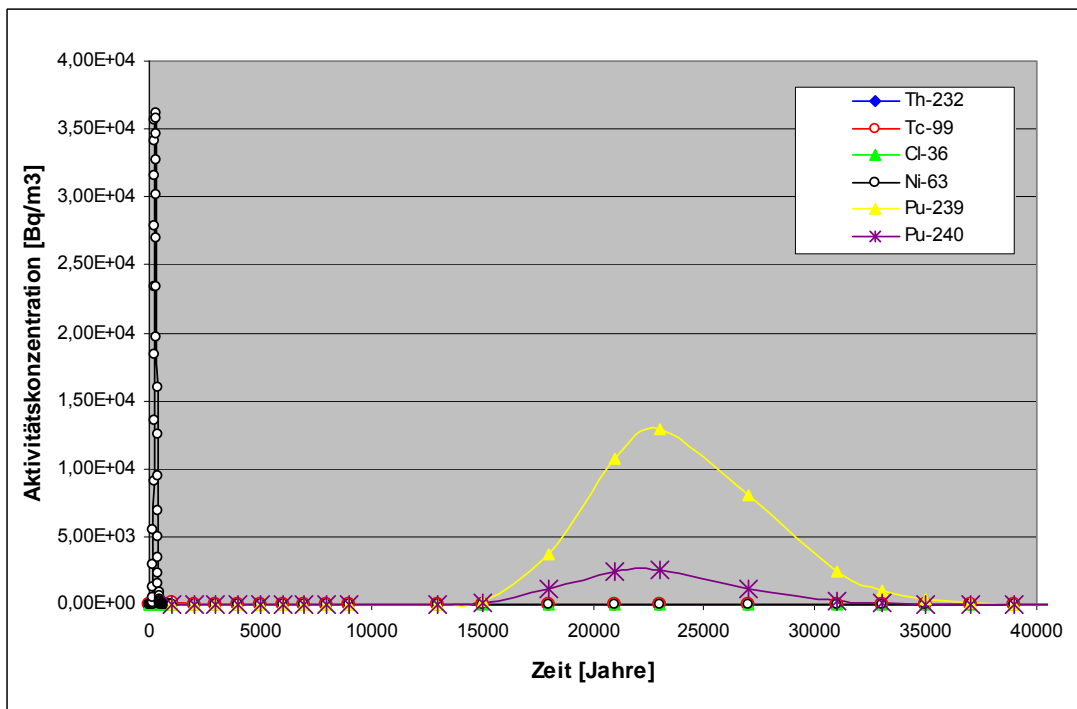


Abbildung 5-8: Zeitlicher Verlauf der Aktivitätskonzentration von Th-232, Tc-99, Cl-36, Ni-63, Pu-239 und Pu-240 im Zeitraum bis 40.000 Jahre für das Gestein mm2 und Abstandsgeschwindigkeit  $u_a=1$  m/a, Pfad I,  $D_x=1E-06$  m<sup>2</sup>/s

### **5.3 Grundlegende Ergebnisse der Berechnung der Strahlenexposition unter Einbeziehung der Ergebnisse der Transportrechnungen**

Ausgehend von den vorangehend beschriebenen Transportrechnungen wurden Strahlenexpositionen mit dem radioökologischen Modell berechnet. Grundlegende Ergebnisse werden nachfolgend dargestellt, bevor in Kapitel 5.4 die Ergebnisse bezogen auf drei konkrete Rechenfälle angegeben werden. Die in oberflächennahem Grundwasser nach einer bestimmten Zeit vorliegende Aktivitätskonzentration wird der Ermittlung der Strahlenexposition zugrunde gelegt. Bei Expositionspfaden mit einem Anreicherungseffekt (durch mehrjährige Berechnung) ist angenommen, dass über 100 Jahre eine Berechnung mit Wasser dieser Aktivitätskonzentration erfolgt.

Der Beitrag einzelner Expositionspfade zur gesamten effektiven Dosis unterscheidet sich nur geringfügig je nach Abstandsgeschwindigkeit und Gestein. Er ist daher auch relativ unabhängig vom Pfad, über den der Transport durch das Deckgebirge erfolgt, wie ein Vergleich der Abbildungen 5-9 mit 5-11 und 5-10 mit 5-12 zeigt. Die in den Abbildungen als Beispiel dargestellten Berechnungsergebnisse beziehen sich auf das Gestein mu1-3, eine Abstandsgeschwindigkeit von 6 m/a sowie auf die Übertragung der Sorptionskoeffizienten für Strontium nach /INE 2010/ auf Plutonium. Größeren Einfluss auf die Relevanz der einzelnen Expositionspfade haben die Verzehrgeohnheiten der Referenzpersonen.

Die Abbildungen 5-9 bis 5-12 zeigen vor allem:

- Bei Lebensgeohnheiten analog AVV zu § 47 StrlSchV ist vor allem die Ingestion von auf berechneten Flächen angebauten Nahrungsmitteln dosisrelevant. Lediglich beim Kleinkind (Alter  $\leq 1$  Jahr) ist auch der Trinkwasserpfad relevant, da im ungünstigen Fall statt Muttermilch mit kontaminiertem Trinkwasser angesetzte Beikost verzehrt wird.
- Bei Lebensgeohnheiten analog den Berechnungsgrundlagen Bergbau sind für alle Altersgruppen die beiden Pfade „Ingestion von auf berechneten Flächen angebauten Nahrungsmitteln“ und „Trinkwasserkonsum“ dosisrelevant. Dies liegt daran, dass – bis auf Trinkwasser - ein Anteil nicht kontaminierter Lebensmittel am Gesamtkonsum unterstellt wird.
- Die Expositionspfade „Fischverzehr“ und „Inhalation bei Aufenthalt auf berechneten Flächen“ tragen nur wenig zur Gesamtdosis bei.
- Die Beiträge der Expositionspfade über Viehtränke und durch äußere Bestrahlung beim Aufenthalt auf berechneten Flächen sind vernachlässigbar.

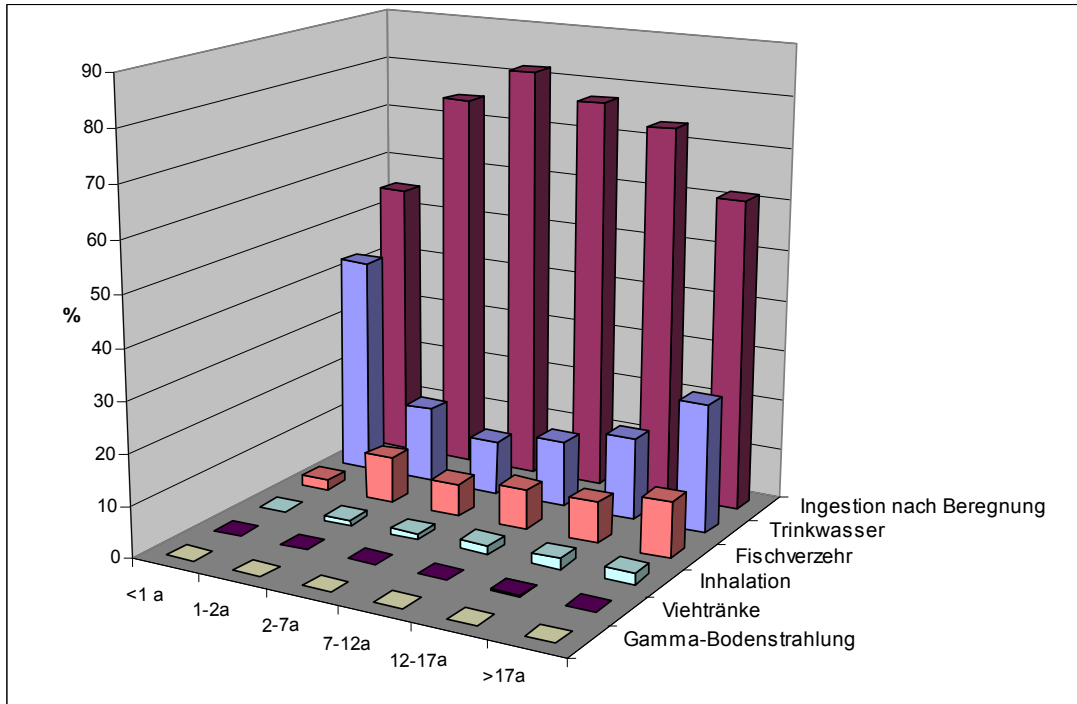


Abbildung 5-9: Prozentuale Anteile einzelner Expositionspfade an der maximalen effektiven Dosis, Pfad I, Lebensgewohnheiten der Referenzpersonen analog AVV zu § 47 StrlSchV

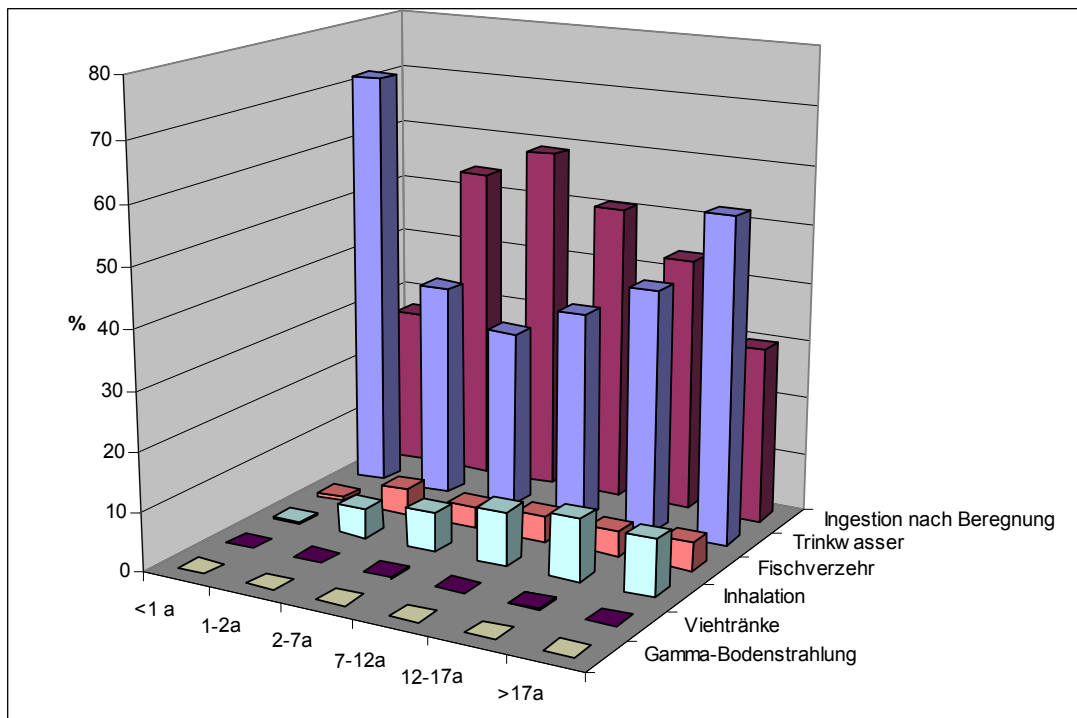


Abbildung 5-10: Prozentuale Anteile einzelner Expositionspfade an der maximalen effektiven Dosis, Pfad I, Lebensgewohnheiten der Referenzpersonen analog Berechnungsgrundlagen Bergbau

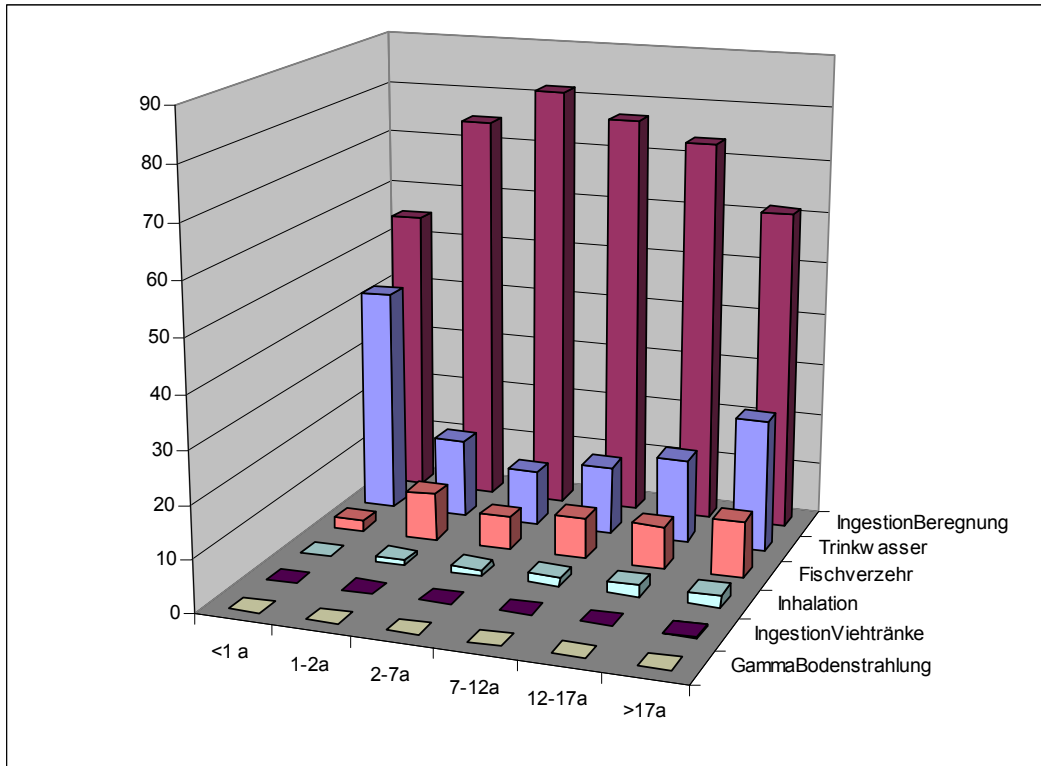


Abbildung 5-11: Prozentuale Anteile einzelner Expositionspfade an der maximalen effektiven Dosis, Pfad II, Lebensgewohnheiten der Referenzpersonen analog AVV zu § 47 StrlSchV

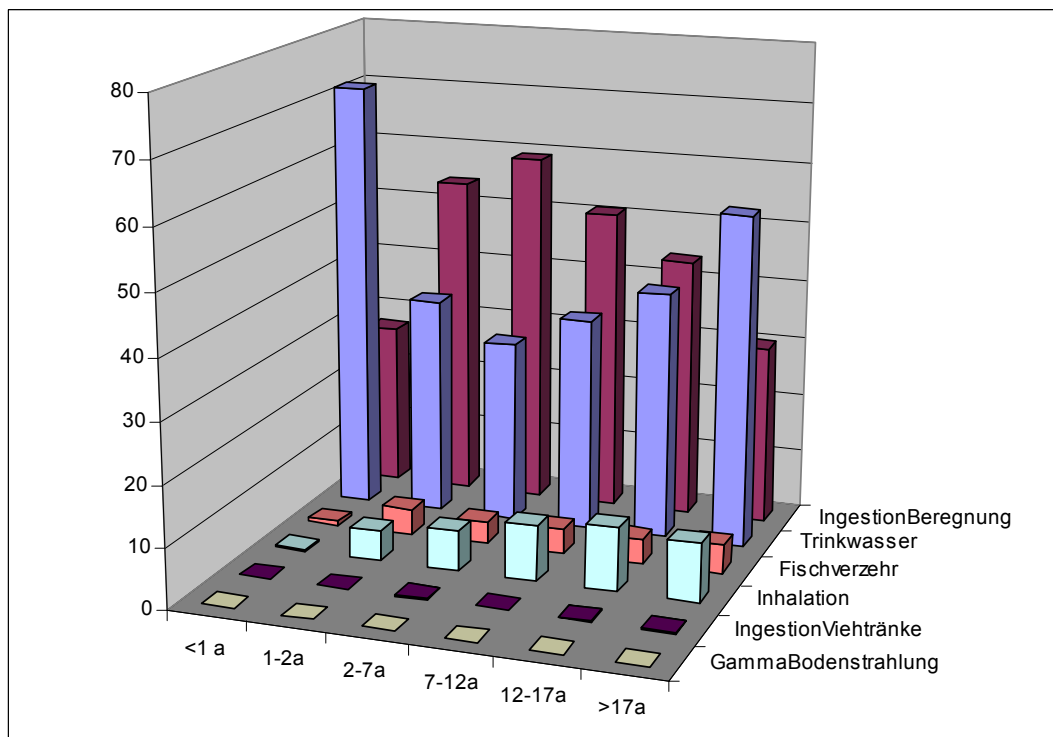


Abbildung 5-12: Prozentuale Anteile einzelner Expositionspfade an der maximalen effektiven Dosis, Pfad II, Lebensgewohnheiten der Referenzpersonen analog Berechnungsgrundlagen Bergbau



Vergleichsrechnungen der absoluten effektiven Dosis für Lebensgewohnheiten analog der AVV zu § 47 StrlSchV gegenüber Lebensgewohnheiten analog der Berechnungsgrundlagen Bergbau haben gezeigt:

- Bei der Referenzperson mit der höchsten Dosis, dem Kleinkind (Alter  $\leq 1$  Jahr), ist die Dosis bei Lebensgewohnheiten analog der Berechnungsgrundlagen Bergbau etwa einen Faktor 3 geringer als bei Lebensgewohnheiten analog der AVV zu § 47 StrlSchV.
- Bei den anderen Referenzpersonen ist der Unterschied teils größer, bleibt aber geringer als eine Größenordnung.

Für die weiteren Berechnungen anhand ausgewählter Rechenfälle in Kapitel 5.4 werden abdeckend nur noch die Lebensgewohnheiten analog der AVV zu § 47 StrlSchV zugrunde gelegt.

## 5.4 Dosisberechnungen für ausgewählte Rechenfälle

Die genauen Verhältnisse bezüglich Abstandsgeschwindigkeiten, Auspressraten und Sorption nach einem Absaufen der Asse lassen sich auf derzeitigem Kenntnisstand nicht prognostizieren. Insofern sind derzeit auch keine verlässlichen Berechnungen möglicher Strahlenexpositionen möglich. Es kann aber ermittelt werden, in welchem Bereich mögliche Strahlenexpositionen zu erwarten wären, wenn bestimmte Verhältnisse vorliegen. Um diesen Bereich einzugrenzen, werden die entsprechenden Randbedingungen nachfolgend in Form von drei Rechenfällen variiert und anhand dieser die effektiven Dosen ermittelt.

Die drei Rechenfälle unterscheiden sich zunächst in der zugrunde gelegten Auspressrate der Lösung aus dem Grubengebäude. Im ersten Rechenfall beträgt die Auspressrate  $10.000 \text{ m}^3/\text{a}$ , entsprechend der sehr hoch angesetzten Auspressrate in /GRS 2009/, im zweiten Rechenfall  $1.000 \text{ m}^3/\text{a}$  und im dritten Rechenfall  $300 \text{ m}^3/\text{a}$ . Bei der Modellierung in /Colenco 2006b/ wurde beispielsweise eine Auspressrate von  $200 \text{ m}^3/\text{a}$  angenommen. In allen drei Rechenfällen soll die Auspressung über eine plausible wirksame Fläche von  $1.000 \text{ m}^2$  erfolgen, also im Bereich einer Störung, die durch eine solche Fläche repräsentiert wird. Daraus ergeben sich Werte für die Abstandsgeschwindigkeit und die Dauer der Auspressung, bis zum Erschöpfen des nach der Umlösung des Carnallitits auspressbaren Gesamtporenvolumens von  $2,2 \cdot 10^6 \text{ m}^3$ . Im ersten Rechenfall beträgt dann die Abstandsgeschwindigkeit  $10 \text{ m/a}$  (bei einer Auspressdauer von 130 Jahren), im zweiten Rechenfall  $1 \text{ m/a}$  (bei einer Auspressdauer von 1.300 Jahren) und im dritten Rechenfall  $0,3 \text{ m/a}$  (bei einer Auspressdauer von 4.300 Jahren).

Real reduziert sich mit voranschreitender Auspressung durch den Druckausgleich die Abstandsgeschwindigkeit und es stellen sich anhand der Druckverhältnisse im Grundwasser später deutlich niedrigere Werte der Abstandsgeschwindigkeit ein. Dies wurde hier konservativ vernachlässigt.

Ebenfalls in den Rechenfällen variiert wurde der Rückhalteeffekt durch Sorption. Im ersten Rechenfall sind Auspressrate und Abstandsgeschwindigkeit sehr hoch, so

dass für eine schnelle Kluftströmung plausibel angenommen werden kann, dass eine Sorption entsprechend der Sorptionskoeffizienten nach /INE 2010/ nicht stattfindet. Im ersten Rechenfall wurde daher die mögliche Strahlenexposition für drei Varianten berechnet, nämlich für das vollständige Ausbleiben der Sorption (Sorptionskoeffizienten gleich Null), für das Ausbleiben der Sorption bei Plutoniumisotopen sowie für Sorptionskoeffizienten nach /INE 2010/ für alle Radionuklide. Im zweiten und dritten Rechenfall mit niedrigeren Auspressraten und Abstandsgeschwindigkeiten werden die Sorptionskoeffizienten in einer Variante vollständig entsprechend /INE 2010/ angesetzt, in einer weiteren Variante werden die Sorptionskoeffizienten für Plutonium auf die für Strontium reduziert, um auch besondere Effekte abzudecken, die bei Plutonium in der Fachwelt diskutiert werden (z. B. kolloidaler Transport).

Die Dosen wurden für den kürzeren und im Hinblick auf die mögliche Strahlenexposition ungünstigen Pfad I unter der Annahme der ungünstigeren Lebensgewohnheiten nach AVV ermittelt. Alle Berechnungen beziehen sich konservativ auf das Gestein mu1-3.

Die Parametervariationen sind in Tabelle 5-1 zusammengefasst.

Tabelle 5-1: Rechnungsfälle für die Dosisberechnungen mit ihren Parametervariationen

Rechenfall	1			2		3	
<b>Auspressrate [m<sup>3</sup>/a]</b>	10.000			1.000		300	
<b>Effektive Auspressfläche [m<sup>2</sup>]</b>	1.000			1.000		1.000	
<b>Abstandsgeschwindigkeit [m/a]</b>	10			1		0,3	
<b>Auspressdauer [a]</b>	130			1.300		4.300	
<b>Sorptionskoeffizienten [mg/l]</b>	INE*	Pu=0	keine	INE*	Pu <sup>Sr**</sup>	INE*	Pu <sup>Sr**</sup>

\* mit Werten der Sorptionskoeffizienten nach INE gerechnet

\*\* K<sub>d</sub> von Plutonium dem K<sub>d</sub> von Strontium gleich gesetzt

### 5.4.1 Mögliche Strahlenexposition im Rechenfall 1

Ohne den rückhaltenden Effekt der Sorption wird bei einer Abstandsgeschwindigkeit von 10 m/a die maximale effektive Dosis für die Altersgruppe ≤ 1 Jahr von 67,5 mSv im Jahr nach 35 Jahren erreicht. Die maximale effektive Dosis der Erwachsenen liegt bei 16,9 mSv im Jahr. Zur Gesamtdosis tragen primär Am-241, Sr-90, Cs-137 sowie die Plutoniumisotope Pu-238, Pu-239, Pu-240 und Pu-241 bei (siehe Abbildungen 5-13 bis 5-15).

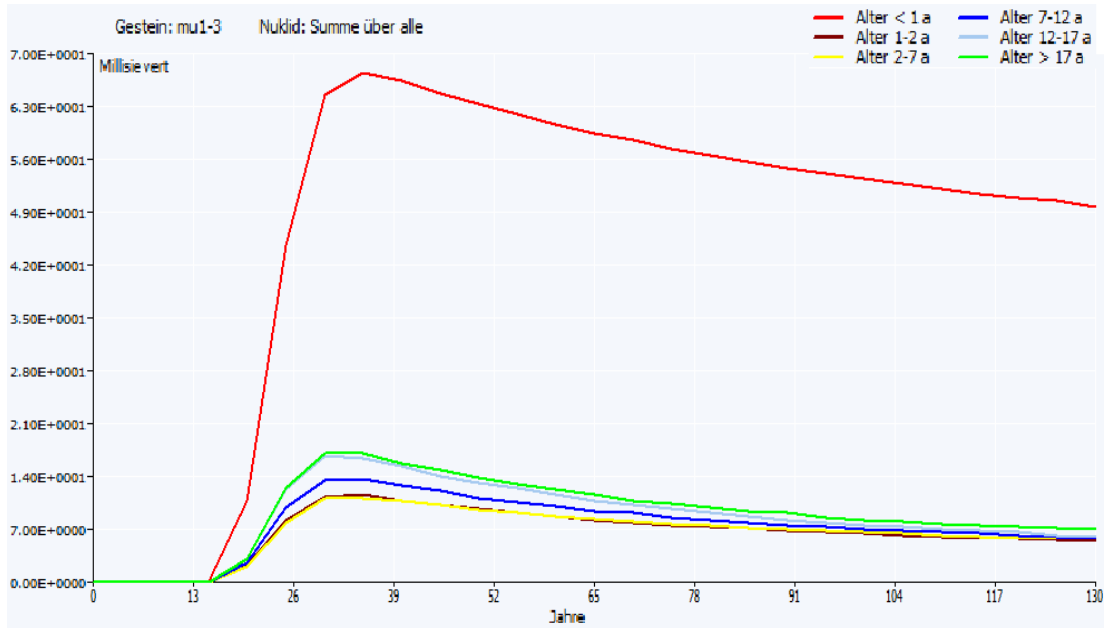


Abbildung 5-13: Effektive Dosen aller Altersgruppen bei einer Abstandsgeschwindigkeit von 10 m/a, ohne Sorption

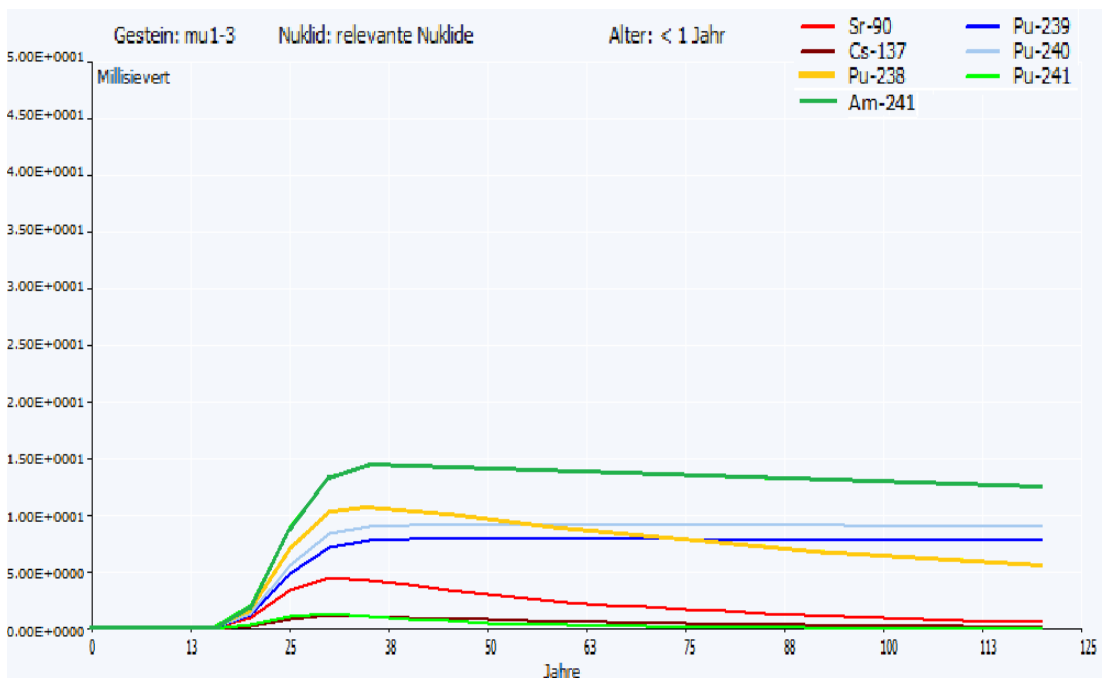


Abbildung 5-14: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe  $\leq 1$  Jahr, Abstandsgeschwindigkeit 10 m/a, ohne Sorption

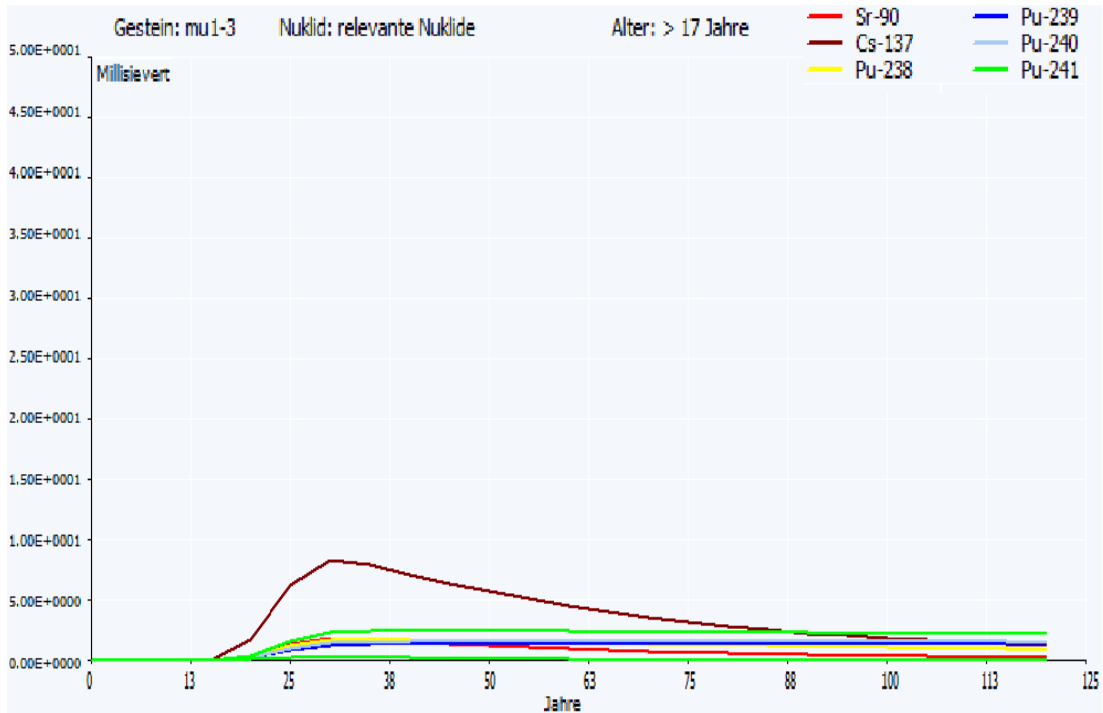


Abbildung 5-15: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe > 17 Jahre, Abstandsgeschwindigkeit 10 m/a, ohne Sorption

Werden, abgesehen von Plutonium, die Sorptionskoeffizienten nach /INE 2010/ angesetzt, bei Plutonium die Sorption aber vernachlässigt, so ergeben sich bei gleicher Abstandsgeschwindigkeit Werte der maximalen effektiven Dosis von 41 mSv im Jahr nach 36 Jahren für die Altersgruppe  $\leq 1$  Jahr und von 4,7 mSv im Jahr für Erwachsene. Zur Dosis tragen dann nur die Plutoniumisotope Pu-238, Pu-239, Pu-240 und Pu-241 maßgeblich bei (siehe Abbildungen 5-16 bis 5-18).

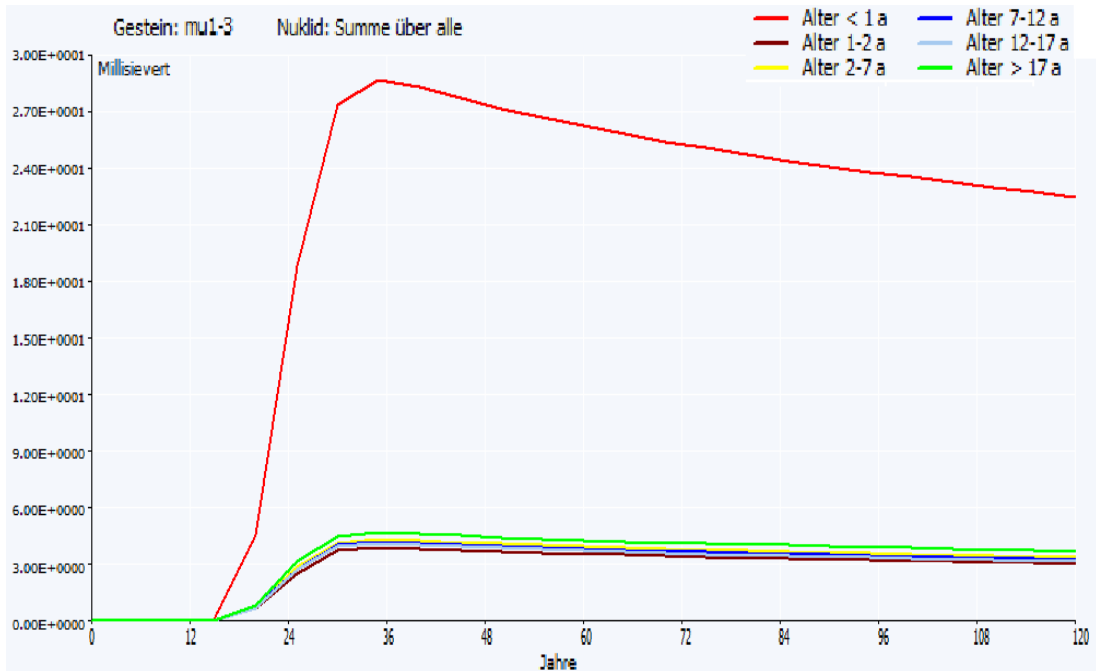


Abbildung 5-16: Effektive Dosen aller Altersgruppen bei einer Abstandsgeschwindigkeit von 10 m/a, keine Sorption von Plutonium

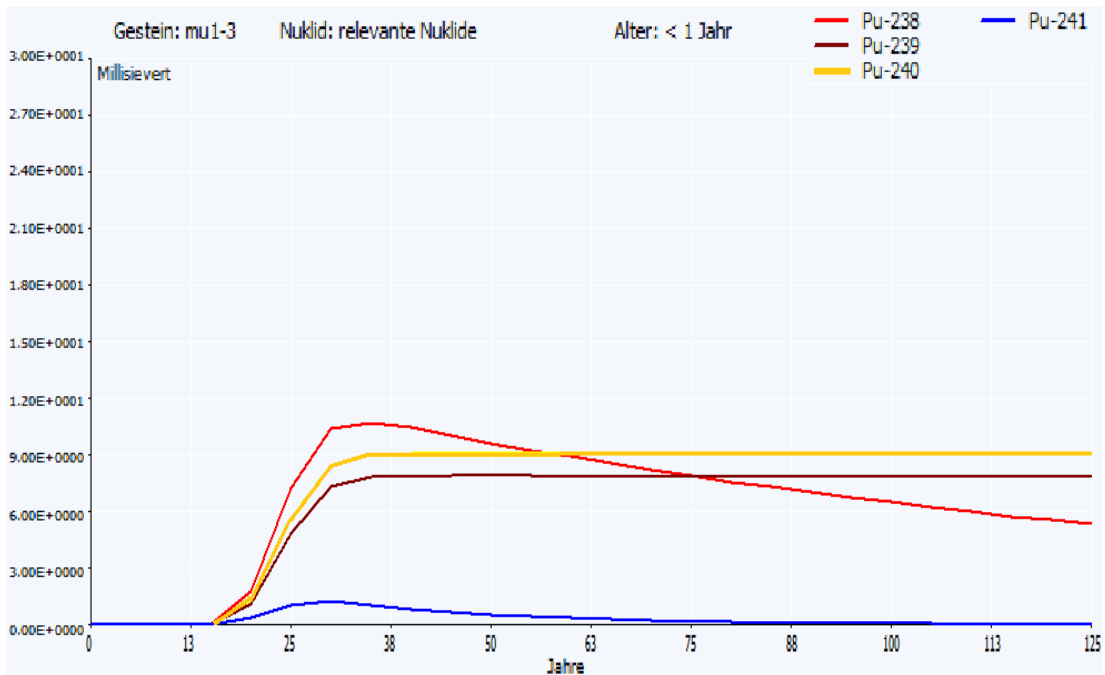


Abbildung 5-17: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe  $\leq 1$  Jahr, Abstandsgeschwindigkeit 10 m/a, keine Sorption von Plutonium

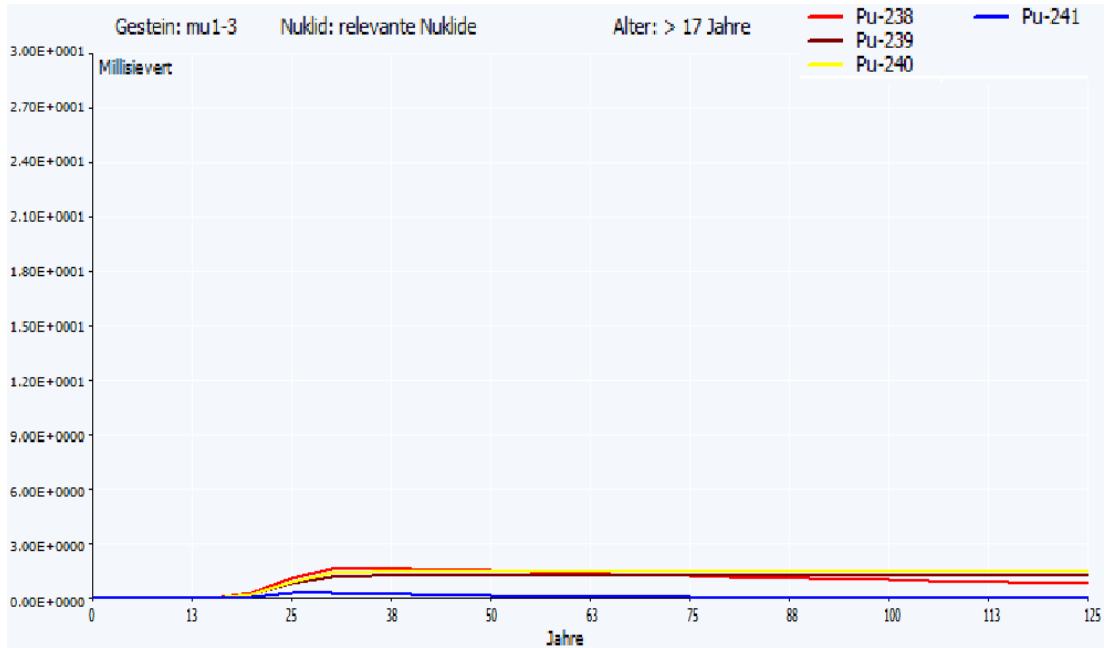


Abbildung 5-18: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe >17 Jahre, Abstandsgeschwindigkeit 10 m/a, keine Sorption von Plutonium

Werden bei der Berechnung alle von /INE 2010/ ermittelten Sorptionskoeffizienten zugrunde gelegt, so ergeben sich maximale effektive Dosen von 0,08 mSv im Jahr für die Altersgruppe  $\leq 1$  Jahr und von 0,03 mSv im Jahr für Erwachsene. Dosisrelevant sind in diesem Fall Co-60 und Ni-63 (siehe Abbildungen 5-19 bis 5-21).

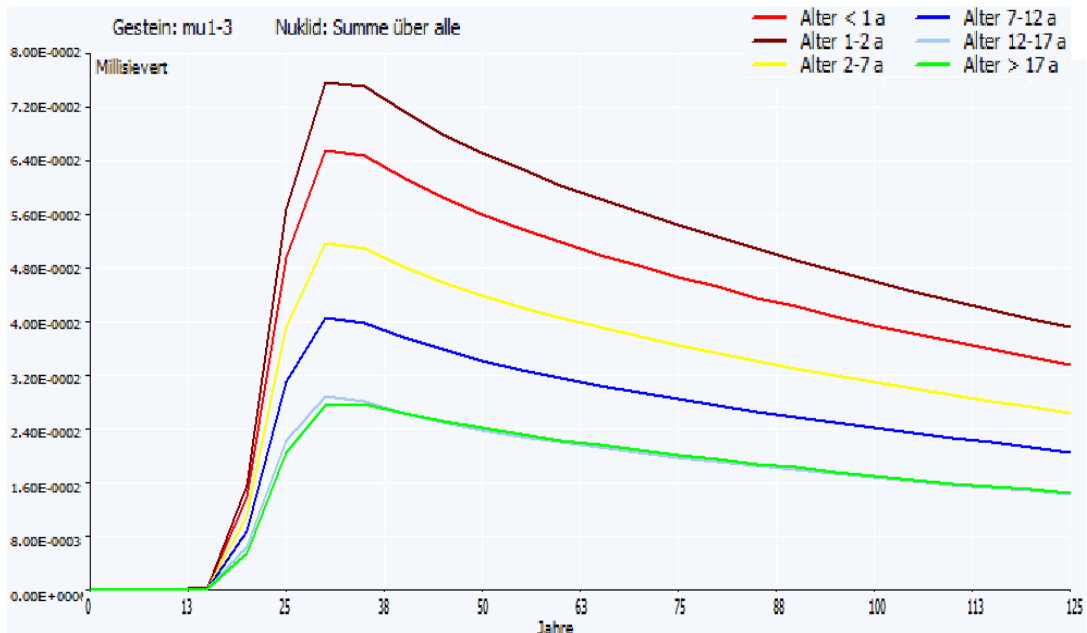


Abbildung 5-19: Effektive Dosen aller Altersgruppen bei einer Abstandsgeschwindigkeit von 10 m/a, Sorption mit Sorptionskoeffizienten nach /INE 2010/

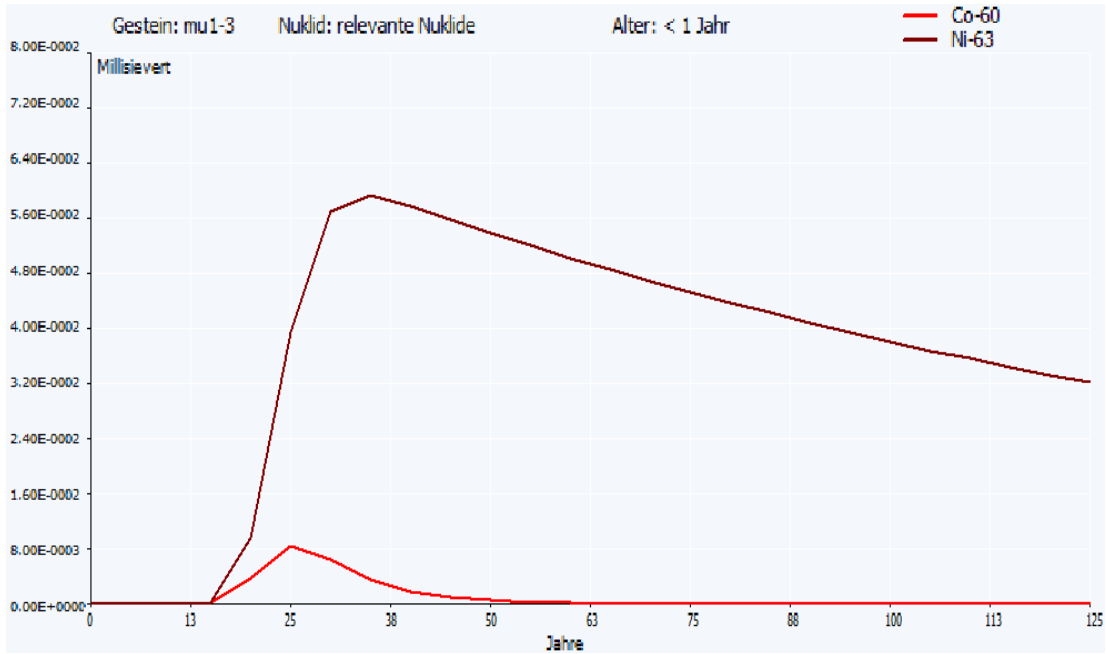


Abbildung 5-20: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe  $\leq 1$  Jahr, Abstandsgeschwindigkeit 10 m/a, Sorption mit Sorptionskoeffizienten nach /INE 2010/

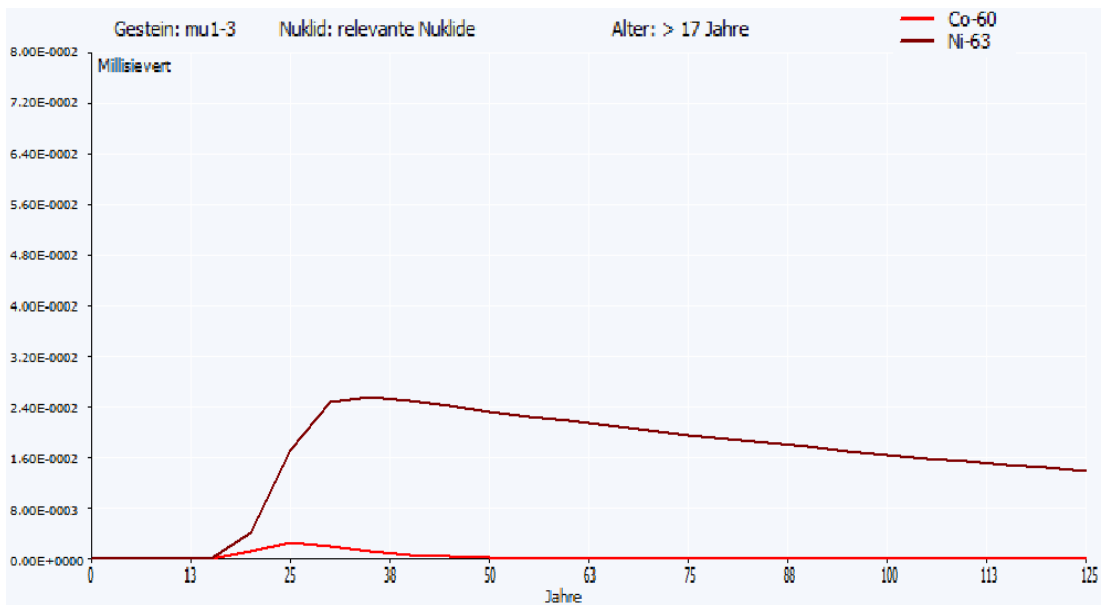


Abbildung 5-21: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe  $> 17$  Jahre, Abstandsgeschwindigkeit 10 m/a, Sorption mit Sorptionskoeffizienten nach /INE 2010/

## 5.4.2 Mögliche Strahlenexposition im Rechenfall 2

Für den Fall des Transports im Deckgebirge mit einer Abstandsgeschwindigkeit von 1 m/a wurde für die Altersgruppe  $\leq 1$  Jahr eine effektive Dosis von maximal 0,098 mSv im Jahr ermittelt (0,11 mSv im Jahr für die Altersgruppe 1-2 Jahre), wenn für Plutonium die ungünstigeren für Strontium bestimmten Sorptionskoeffizienten zugrunde gelegt werden. Die maximale Dosis würde nach 280 Jahren erreicht. Die Effektive Dosis der Erwachsenen beläuft sich zu diesem Zeitpunkt auf 0,042 mSv im Jahr. Zur Gesamtdosis tragen primär die Radionuklide Cl-36, Ni-59, Ni-63, Se-79 und Th-232 bei (siehe Abbildungen 5-22 bis 5-24 und zum Vergleich Abbildung 5-17).

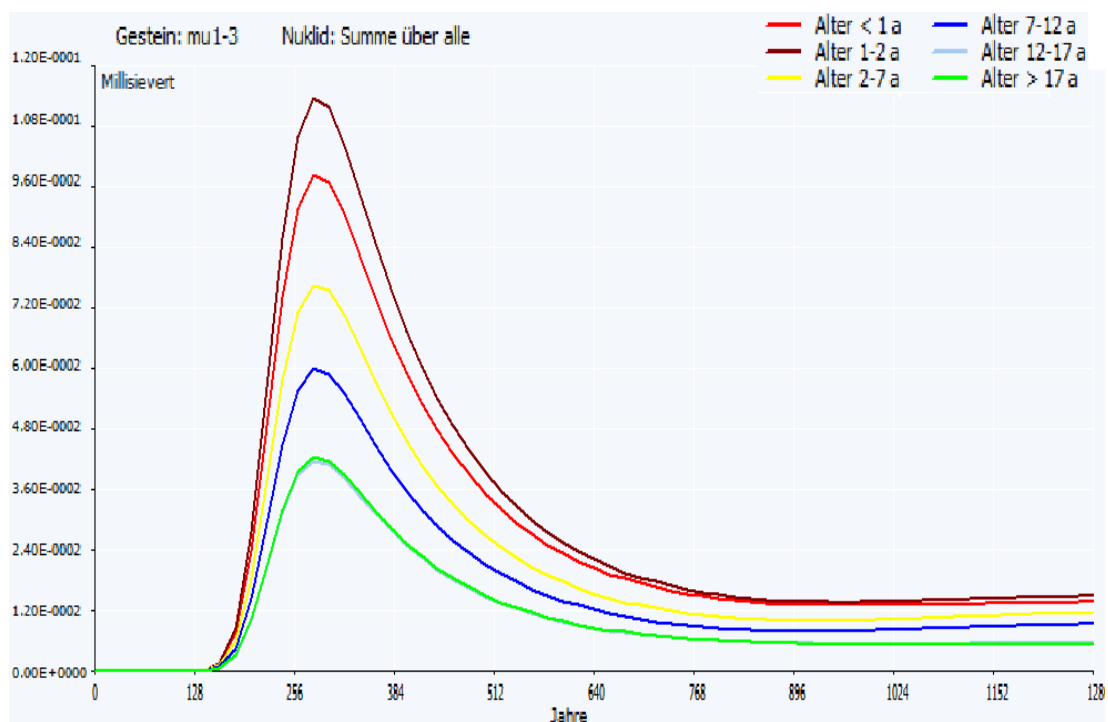


Abbildung 5-22: Effektive Dosen aller Altersgruppen bei einer Abstandsgeschwindigkeit von 1 m/a, Sorption von Plutonium wie Sorption von Strontium



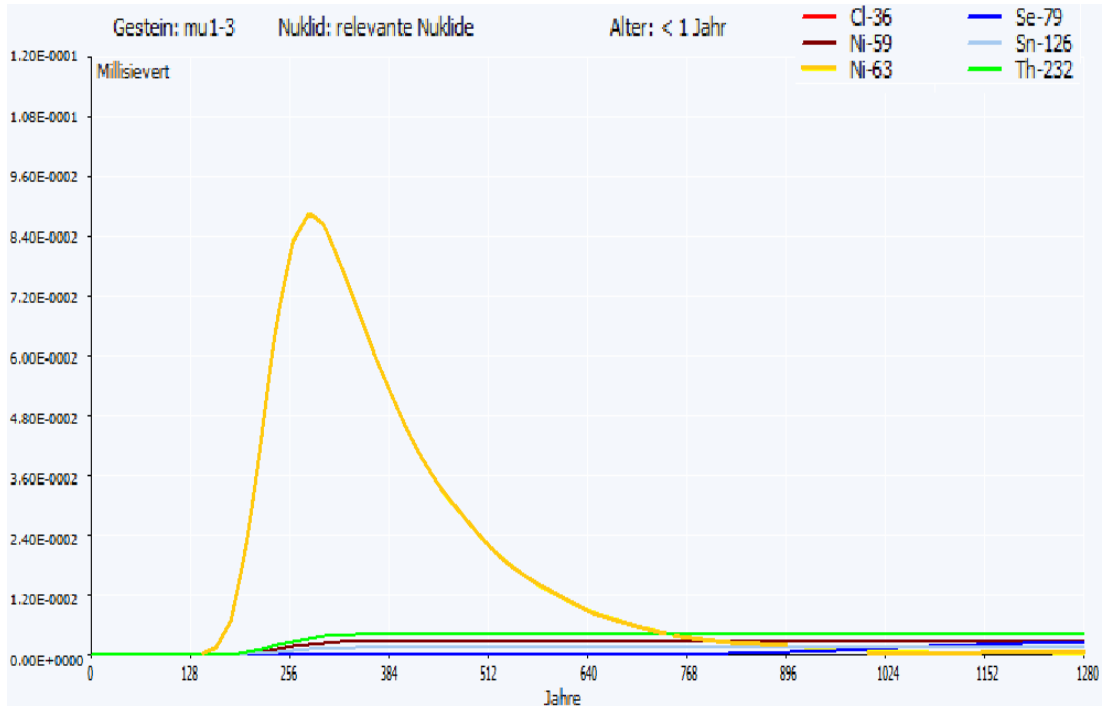


Abbildung 5-23: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe  $\leq 1$  Jahr, Abstandsgeschwindigkeit 1 m/a, Sorption von Plutonium wie Sorption von Strontium

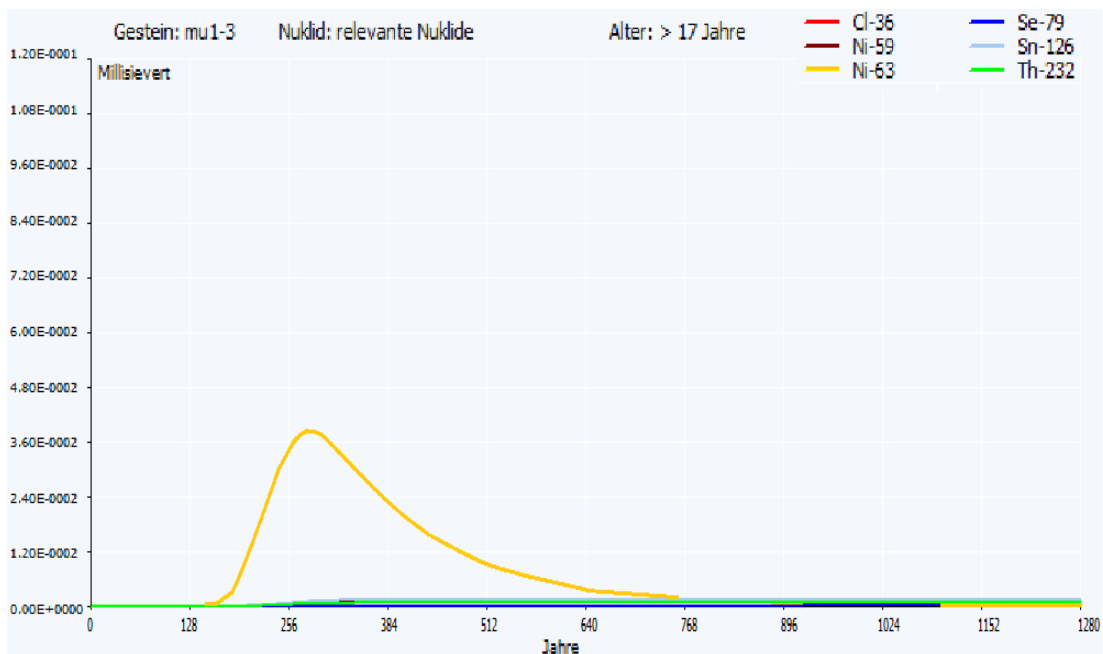


Abbildung 5-24: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe  $> 17$  Jahre, Abstandsgeschwindigkeit 1 m/a, Sorption von Plutonium wie Sorption von Strontium

Werden bei allen Radionukliden die Werte der Sorptionskoeffizienten nach /INE 2010/ angesetzt, so ergeben sich keine Abweichungen der Maximaldosen gegenüber der vorherigen Variante, da Plutoniumisotope nicht wesentlich zur Ge-

samtdosis beitragen. Die maximale effektive Dosis für die Altersgruppe  $\leq 1$  Jahr beträgt 0,098 mSv im Jahr, für die Altersgruppe 1-2 Jahre 0,11 mSv im Jahr und für Erwachsene 0,042 mSv im Jahr. Das Maximum wird auch in diesem Fall nach 280 Jahren erreicht. Dominant sind die Radionuklide Co-60 und Ni-63 (siehe Abbildungen 5-25 bis 5-27).

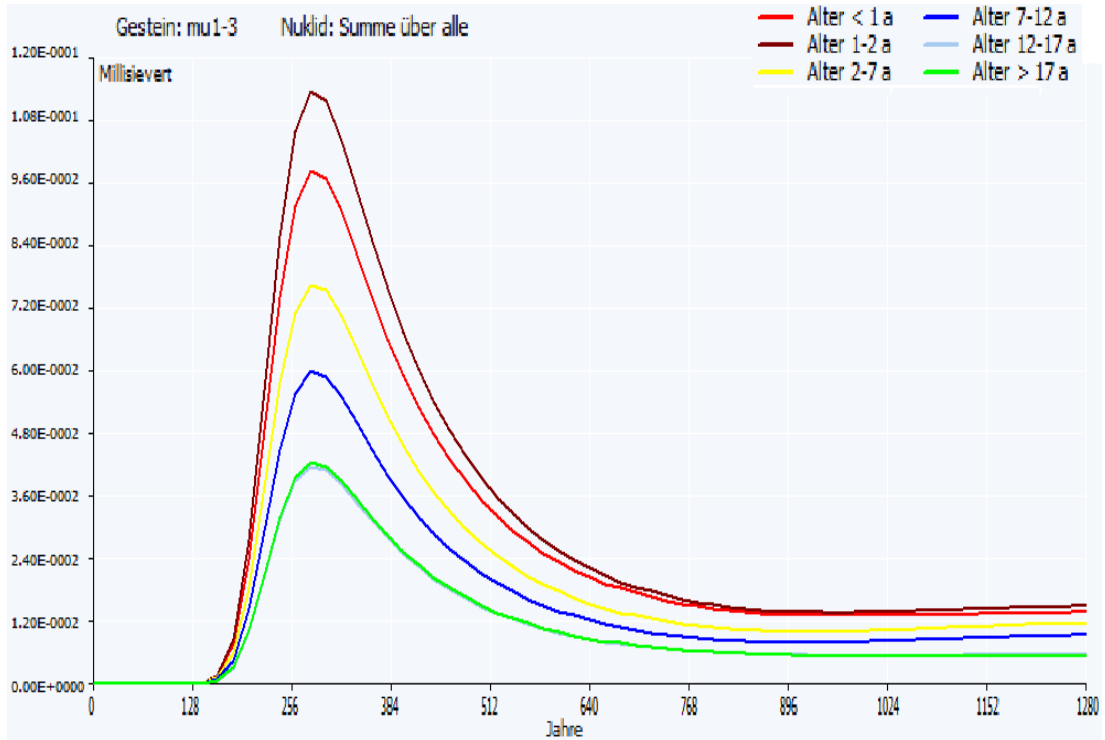


Abbildung 5-25: Effektive Dosen aller Altersgruppen bei einer Abstandsgeschwindigkeit von 1 m/a, Sorption mit Sorptionskoeffizienten nach /INE 2010/

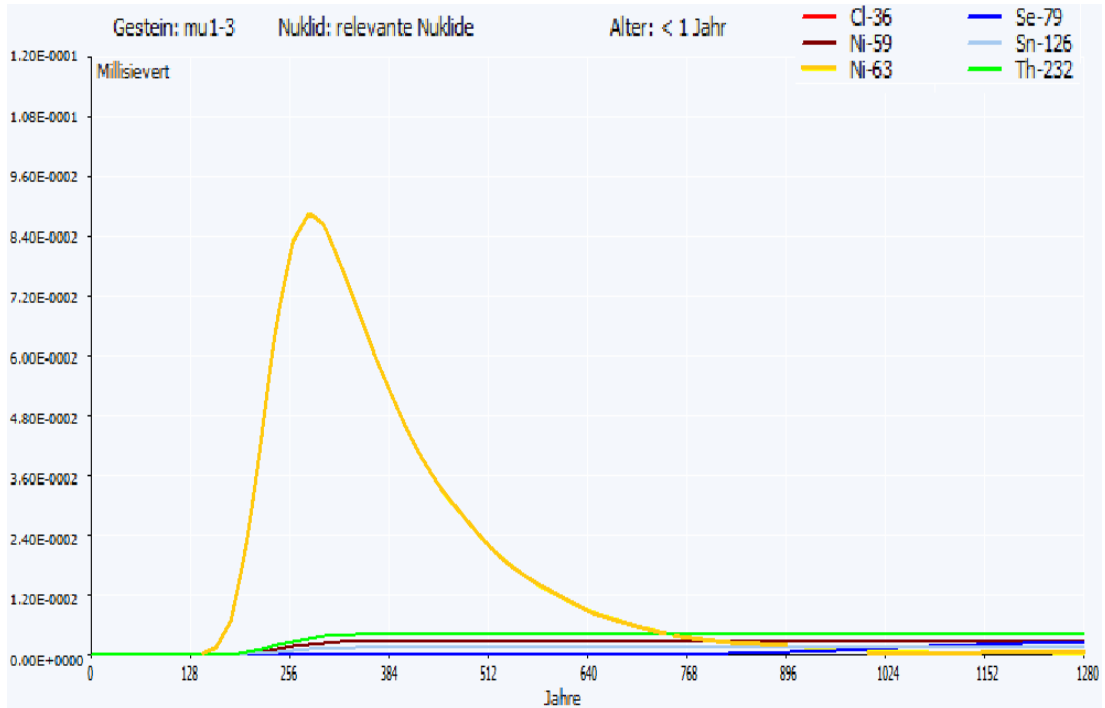


Abbildung 5-26: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe  $\leq 1$  Jahr, Abstandsgeschwindigkeit 1 m/a, Sorption mit Sorptionskoeffizienten nach /INE 2010/

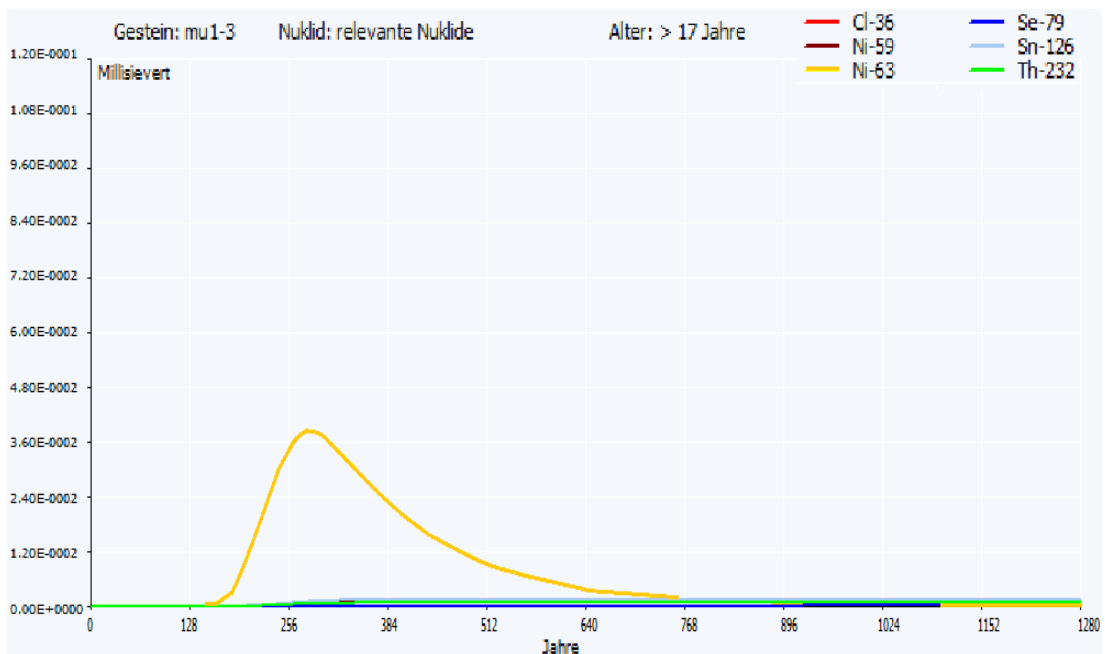


Abbildung 5-27: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe  $> 17$  Jahre, Abstandsgeschwindigkeit 1 m/a, Sorption mit Sorptionskoeffizienten nach /INE 2010/

### 5.4.3 Mögliche Strahlenexposition im Rechenfall 3

Die Berechnung mit der niedrigsten ausgewählten Abstandsgeschwindigkeit von 0,3 m/a und einem reduzierten Wert der Sorption für Plutonium ergab maximale effektiven Dosen von 0,046 mSv im Jahr für die Altersgruppe 1-2 Jahre nach 4.250 Jahren. Für Erwachsene beträgt die maximale effektive Dosis 0,017 mSv im Jahr. Relevant sind die Radionuklide Ci-36, Ni-59, Ni-63, Se-79, Nb-94 und Sn-126 (siehe Abbildungen 5-28 bis 5-30).

Wie aus den graphischen Darstellungen zu sehen ist, steigt die effektive Dosis während der ganzen berechneten Zeitspanne an. Da allerdings nach der Zeit von 4.300 Jahren mit dem Ende der Konvektion nur noch eine deutlich geringere Abstandsgeschwindigkeit in Betracht gezogen werden kann, ist eine tatsächliche weitere Zunahme der möglichen Dosis nicht zu erwarten.

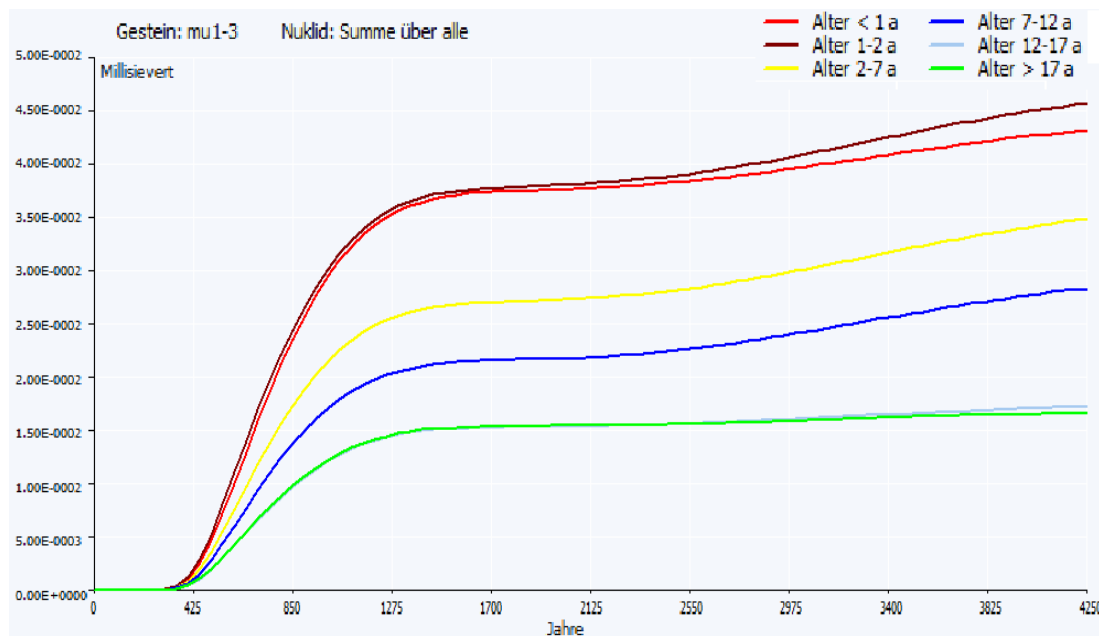


Abbildung 5-28: Effektive Dosen aller Altersgruppen bei einer Abstandsgeschwindigkeit von 0,3 m/a, Sorption von Plutonium wie Sorption von Strontium, Gestein mu1-3

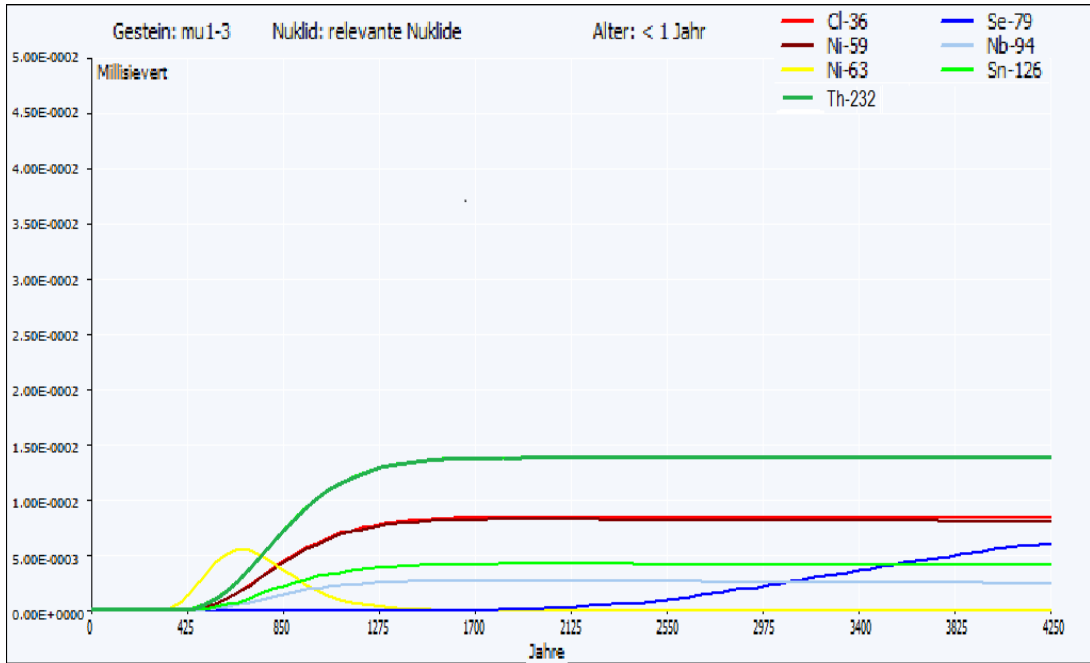


Abbildung 5-29: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe  $\leq 1$  Jahr, Abstandsgeschwindigkeit 0,3 m/a, Sorption von Plutonium wie Sorption von Strontium, Gestein mu1-3

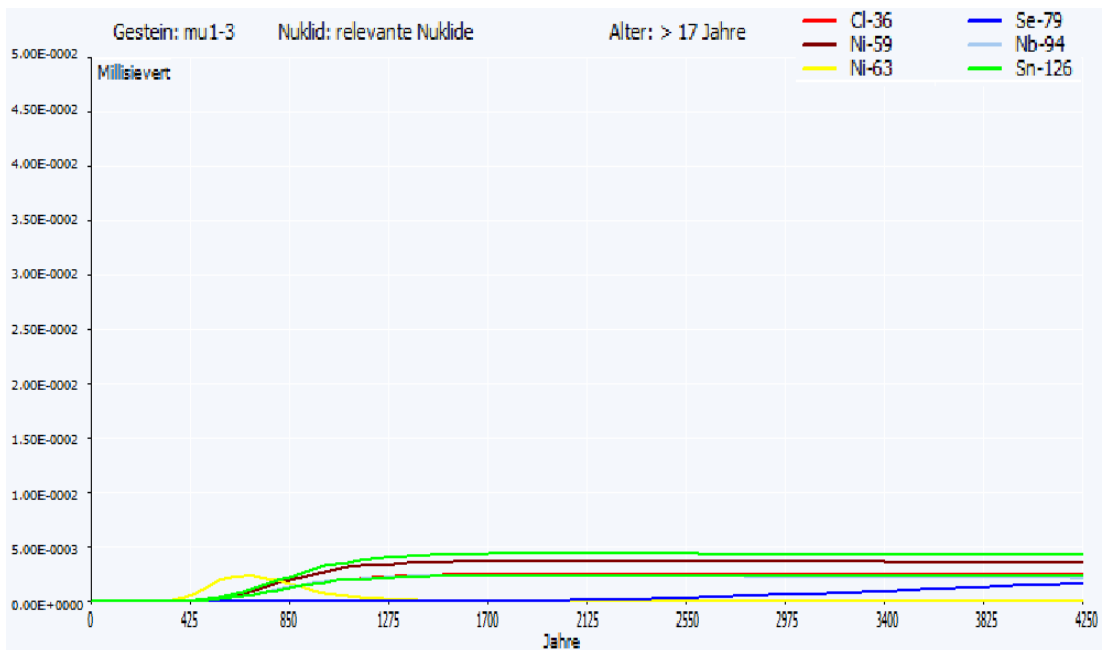


Abbildung 5-30: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe  $> 17$  Jahre, Abstandsgeschwindigkeit 0,3 m/a, Sorption von Plutonium wie Sorption von Strontium, Gestein mu1-3

Bei der Berücksichtigung aller Sorptionswerte nach /INE 2010/ und für das Gestein mu1-3 ergeben sich gegenüber der vorangehenden Variante keine abweichenden effektiven Dosen, da die unterschiedlichen Sorptionskoeffizienten des Plutoniums in dieser Zeitspanne nicht von Bedeutung sind (siehe Abbildung 5-33 und 5-34).

Zur Veranschaulichung ist in den Abbildungen 5-31 und 5-32 der zeitliche Verlauf der effektiven Dosen für das Gestein mm2 beim reduzierten Wert der Sorption für Plutonium präsentiert. Hierbei dominieren die gleichen Radionuklide, die maximale effektive Dosis nach 4.250 Jahren beläuft sich auf 0,31 mSv im Jahr für die Altersgruppe  $\leq 1$  Jahr. Der erste Dosenanstieg nach ca. 900 Jahren liegt deutlich niedriger als im Gestein mu1-3. Auch hier steigt die effektive Dosis während der ganzen berechneten Zeitspanne an (siehe oben). Dosisbestimmend sind die Radionuklide Cl-36, Ni-59, Ni-63, Nb-94, Tc-99 und Sn-126.

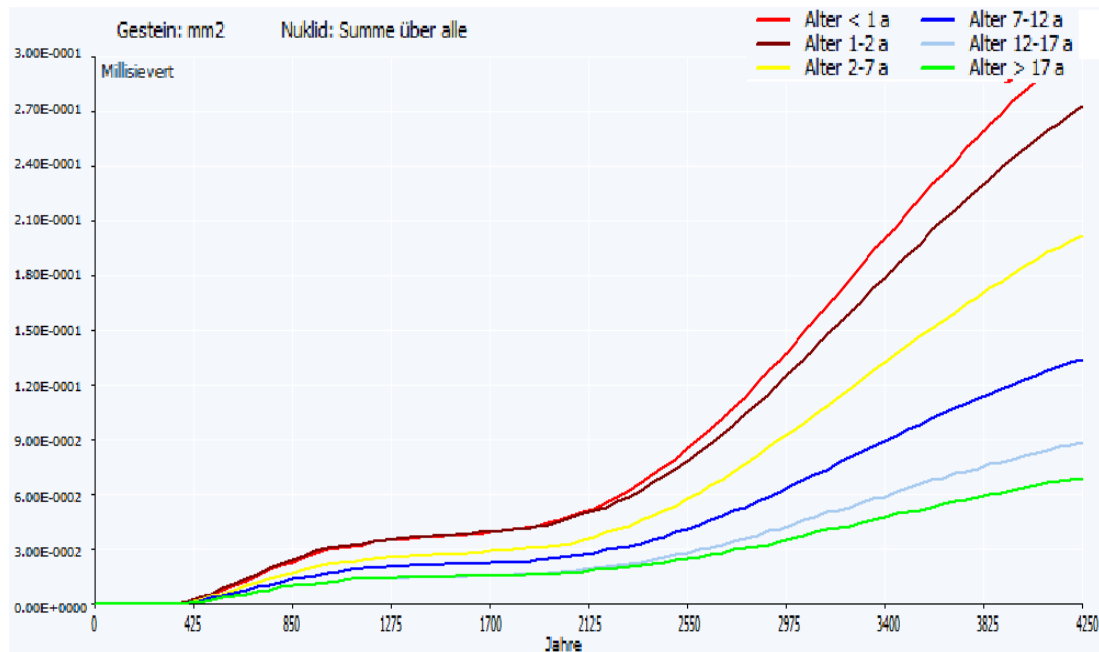


Abbildung 5-31: Effektive Dosen aller Altersgruppen bei einer Abstandsgeschwindigkeit von 0,3 m/a, Sorption von Plutonium wie Sorption von Strontium, Gestein mm2

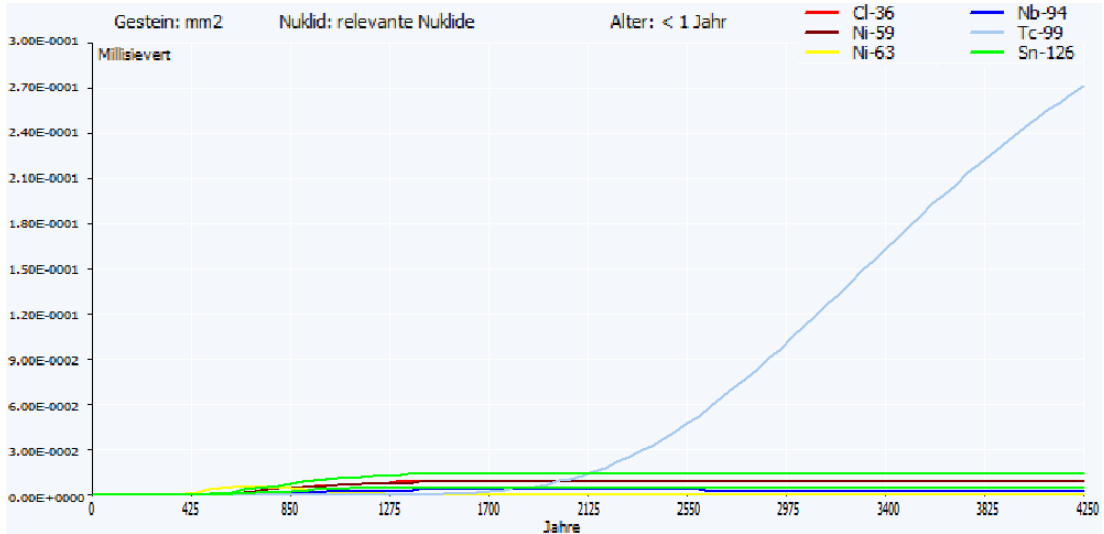


Abbildung 5-32: Beitrag dominanter Radionuklide zur effektiven Dosis der Altersgruppe  $\leq 1$  Jahr, Abstandsgeschwindigkeit 0,3 m/a, Sorption von Plutonium wie Sorption von Strontium, Gestein mm2

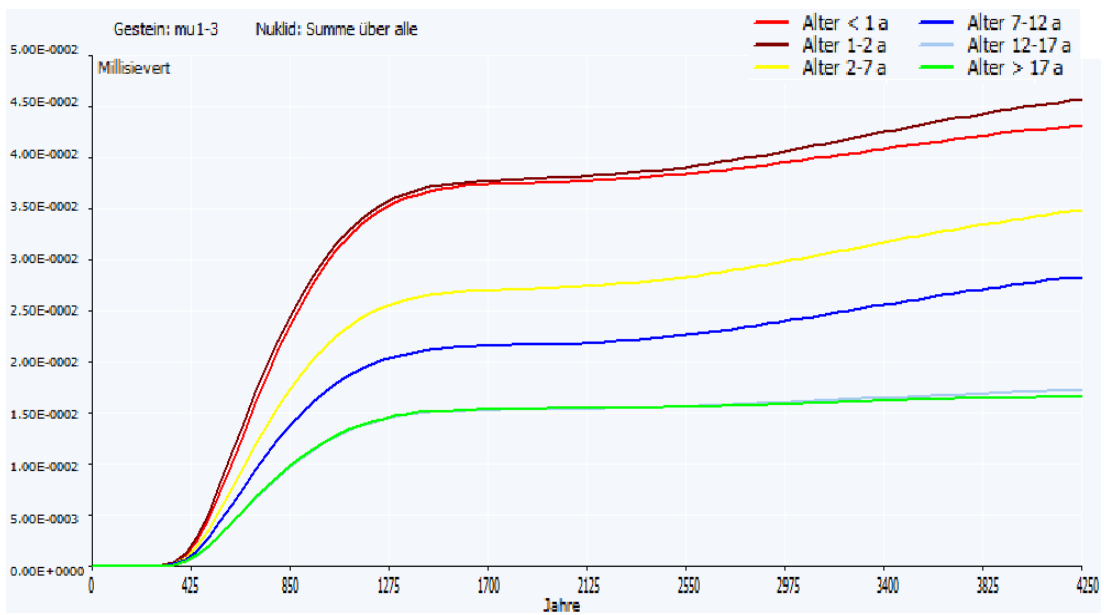


Abbildung 5-33: Effektive Dosen aller Altersgruppen bei einer Abstandsgeschwindigkeit von 0,3 m/a, Sorption mit Sorptionskoeffizienten nach /INE 2010/, Gestein mu1-3

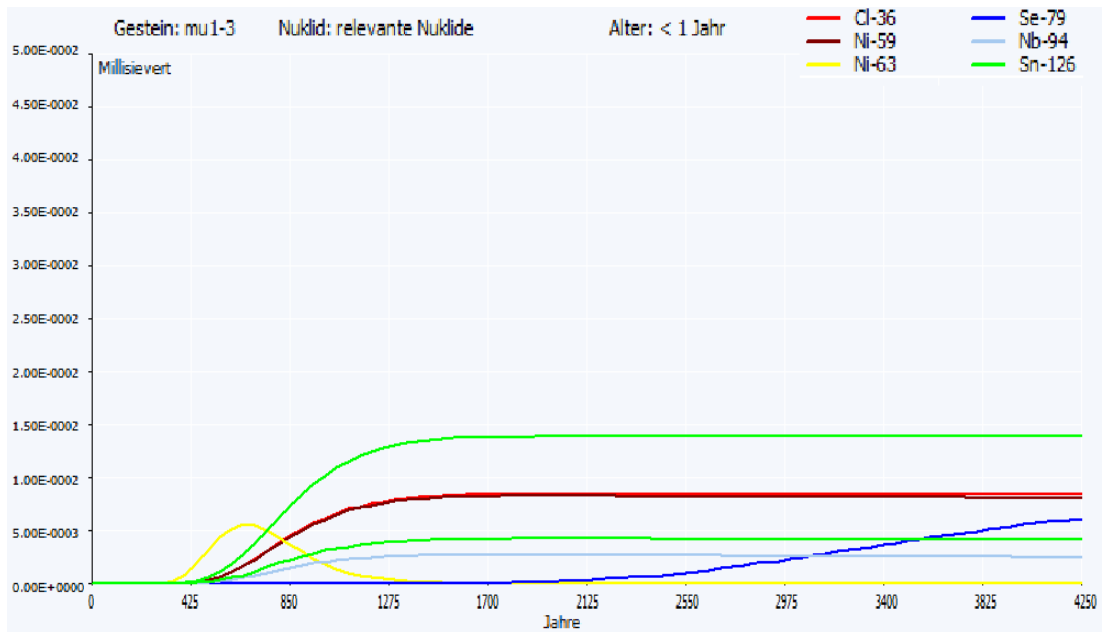


Abbildung 5-34: Effektive Dosen der Altersgruppe  $\leq 1$  Jahr bei der Abstandsgeschwindigkeit 0,3 m/a, Sorptionswerte nach /INE 2010/, Schicht mu1-3



## 6 Möglichkeiten des Monitorings in der Umgebung der Asse

Im nachfolgenden Kapitel werden die Möglichkeiten eines Monitorings der Umgebung der Asse dargestellt. Ziel des Monitorings ist es, radioaktive Stoffe in Grund- und Oberflächenwasser zu erkennen, wenn diese aus der Asse freigesetzt wurden und bei Nutzung des Wassers zu relevanten Strahlenexposition von Einzelpersonen der Bevölkerung führen würden. Auf der Basis der Ergebnisse eines Monitorings können erforderlichenfalls Maßnahmen zur Vermeidung oder Begrenzung der Strahlenexposition der Bevölkerung ergriffen werden.

Die Expositionspfade für eine Strahlenexposition von Einzelpersonen der Bevölkerung resultierend aus einem auslegungsüberschreitenden Lösungszutritt basieren primär auf der Nutzung von Grundwasser (vgl. Abbildung 3-4). Das Grundwasser sowie aus Grundwasser gewonnenes Trinkwasser, aus Grundwasser gespeistes Fischteichwasser, Tränkwasser und Beregnungswasser wären daher geeignete Medien für die primäre Überwachung von Radionuklideinträgen in Pfade der Biosphäre, die zur Strahlenexposition des Menschen führen können. Maßnahmen zur Vermeidung oder Reduzierung der Strahlenexposition der Bevölkerung würden primär bei einem Nutzungsverbot von Grundwasser ansetzen.

Die Radionuklidüberwachung für Grundwasser und Oberflächengewässer im Bereich und am Fuße des Asse-Höhenzuges erfolgt durch die Asse GmbH und durch den Niedersächsischen Landesbetrieb für Wasserwirtschaft, Küsten- und Naturschutz (NLWKN) an derzeit insgesamt 26 Beprobungsstellen /Asse 2008, NLWKN 2009a/.

Die dabei beprobten Radionuklide und erreichten Nachweisgrenzen sind in Tabelle 6-1 angegeben.

Tabelle 6-1: Radiologische Überwachung von Wasserproben im Einflussbereich der Asse und erreichte Nachweisgrenzen

Radionuklid	erreichte Nachweisgrenze [mBq/l]	Quelle
Rest-Beta-Aktivität	100 bis 140	/Asse 2008/
Tritium	1600	/NLWKN 2009a/
Kalium-40	110	/Asse 2008/, /NLWKN 2009a/
Cobalt 60	3,3 - 4,4	/NLWKN 2009a/
Strontium-90	1,9 - 5	/Asse 2008/, /NLWKN 2009a/
Cäsium-137	1,9 - 10	/Asse 2008/, /NLWKN 2009a/
Thallium-208	2,6 – 4,4	/NLWKN 2009a/
Blei-212	4,1 – 37	/NLWKN 2009a/
Bismut-212	32 – 50	/NLWKN 2009a/
Actinium-228	9,1 – 15	/NLWKN 2009a/
Uran-235	12 – 16	/NLWKN 2009a/
Uran-238	35 – 55	/NLWKN 2009a/
Plutonium-239	0,19	/Asse 2008/

Die Beprobung von Wasser durch die Asse GmbH für die spätere Messung von Sr-90, Cs-137 und Pu-239 erfolgt monatlich. Die Proben werden nach 6 Monaten zu

einer 50 Liter-Mischprobe vereint und gemessen. Die Messung der Rest-Beta-Aktivität und die Bestimmung des Kaliumanteils in Wasser erfolgt vierteljährlich /Asse 2008/. Die Beprobung und Messung durch den NLWKN erfolgt einmal jährlich.

Wesentliche Eignungskriterien für Radionuklide als Indikatoren für Freisetzungen des Asse-Inventars in die Biosphäre sind geringe Rückhaltung durch Sorption, gute Messbarkeit sowie die Möglichkeit der Zuordnung zu einer Freisetzung aus dem Inventar der Asse beispielsweise dadurch, dass das Radionuklid nicht natürlichen Ursprungs ist oder die gemessenen Aktivitätskonzentrationen von natürlich vorkommenden Radionukliden erheblich über dem natürlichen Hintergrundwerten liegen. Überwacht werden mit dem heutigen Überwachungsprogramm künstliche Radionuklide (wie Co-60, Sr-90, Cs-137, Pu-239) und Radionuklide, die natürlichen Ursprungs sind (wie z. B. K-40) oder in natürlichen Zerfallsketten vorkommen (wie z. B. U-235, U-238, Ac-228, Pb-212, Tl-208 und Bi-212).

Die Kenntnis der Aktivitätskonzentrationen der natürlich vorkommenden Radionuklide U-235, U-238 und der Radionuklide der Thoriumzerfallsreihe ist erforderlich, um die natürliche Hintergrundstrahlung von möglichen zukünftigen anthropogenen Einträgen aus dem Asse-Inventar (z. B. Freisetzungen von U-235, U-238, Th-228, Ra-228 oder Th-232) zu unterscheiden.

Die Kenntnis des Kaliumgehaltes im Grundwasser des Asse-Höhenzuges und seiner üblichen Schwankungen ist ebenfalls erforderlich, da wesentliche Veränderungen dieses Parameters auf Kalium-40-Einträge und damit auf Veränderungen der geohydrologischen Gegebenheiten am Standort hinweisen würden.

Für ein Monitoring des Grundwassers bei einem auslegungsüberschreitenden Lösungszutritt in die Asse sind für Zeiträume von einigen Jahrzehnten Sr-90 und Cs-137 besonders geeignet. Beide Nuklide sind relativ mobil, insbesondere Sr-90, und mit vertretbarem Aufwand nachweisbar. Zudem haben beide Radionuklide, insbesondere Cs-137, zu Beginn der gemäß Szenario I erfolgenden Freisetzung über den Fischteichpfad und den Pfad der Ingestion aufgrund von Beregnung einen hohen Anteil an der abgeschätzten Dosis.

Die derzeit im Rahmen der radiologischen Überwachung der Asse in Wasserproben realisierte Nachweisgrenze für Sr-90 und Cs-137 (vgl. Tabelle 6-1) liegt vier Größenordnungen unter der Aktivitätskonzentration von Sr-90 und Cs-137 im Grundwasser im ersten Jahr der Freisetzung gemäß Szenario I (zur Definition siehe Kapitel 2). Bei einer Freisetzung unter den Annahmen des Szenarios I bedeutet dies, dass durch Messung von Cs-137 und Sr-90 bereits Kontamination erkannt werden würden, die einer effektiven Dosis von weniger als 0,1 mSv/a für die höchstexponierte Referenzperson entsprechen. Da zahlreiche für die Strahlenexposition relevante Radionuklide wie Pu-Isotope und Am-241 einer stärkeren Sorption unterliegen, ist davon auszugehen, dass die real mögliche Dosis bei Nachweis von Cs-137 und Sr-90 wesentlich geringer wäre.

Die einer Freisetzung von Radioaktivität in die Biosphäre infolge des auslegungs-  
überschreitenden Lösungszutritts zu Grunde liegenden Prozesse – Zutritt von Lö-  
sung, Lösung der Radionuklide in den Abfällen, Verteilung der gelösten Radionukli-  
de im Grubengebäude, Auspressung aufgrund der Konvektion und Transport in die  
Biosphäre – erfolgen über einen Zeitraum von Jahrzehnten. Es kann daher davon  
ausgegangen werden, dass messbare Freisetzungen von Radionukliden in Grund-  
oder Oberflächenwasser ebenfalls allmählich erfolgen. Eine halbjährliche Messung  
der relevanten Radionuklide in Grund- und Oberflächenwasser, wie derzeit prakti-  
ziert, ermöglicht ein rechtzeitiges Erkennen eines Anstiegs der Kontamination bevor  
erhebliche Strahlenexpositionen möglich würden. Es würde daher auch ein zeitlich  
ausreichender Vorlauf zur Planung und Realisierung von Maßnahmen zur Vermei-  
dung von Strahlenexpositionen der Bevölkerung bestehen, wie z. B. dem Verbot  
des Verzehrs oder der Nutzung von Grundwasser.

Sowohl Sr-90 als auch Cs-137 wären bei einer Freisetzung gemäß Szenario I nach  
einem Zeitraum von etwa 400 Jahren aufgrund des radioaktiven Zerfalls nicht mehr  
nachweisbar.

Tritium, das keiner Sorption unterliegt, wäre für die Überwachung einer Freiset-  
zung von Radionukliden aus der Asse unter Zugrundelegung des Szenarios I unge-  
eignet, da das insgesamt geringe Tritiuminventar bei einer Verdünnung von freige-  
setzter Lauge auf Salzkonzentrationen für Trinkwasser zu Tritiumkonzentrationen  
führen würde, die unter der derzeit realisierten Nachweisgrenze liegen.

Die Nachweisgrenze für Pu-239, die derzeit bei Grundwassermessungen von Pu-  
239 durch die Asse GmbH erreicht wird, liegt ebenfalls mehr als drei Größenord-  
nungen unter der Aktivitätskonzentration von Pu-239 im Grundwasser im ersten  
Jahr der Freisetzung gemäß Szenario I. Unter der Annahme, dass alle Nuklide  
zugleich gemäß ihrem Anteil am Inventar der Asse wie oben bereits für Sr-90 und  
Cs-137 beschrieben, freigesetzt werden würden, ermöglichte daher die Messung  
von Pu-239 ebenfalls die Überwachung einer effektiven Dosis ab 0,1 mSv/a und  
effektiver Dosen darüber.

Im Hinblick auf die möglichen Strahlenexpositionen und die Erfordernis eines  
Grundwassermonitorings in den Rechenfällen des Szenarios II sind die Berechnun-  
gen im Rechenfall 1 relevant, bei denen Strahlenexpositionen im Bereich von mSv/a  
ermittelt wurden, die innerhalb eines Zeitraums von einigen Jahrzehnten nach dem  
Absaufen der Asse auftreten könnten. Die Überwachung kann in diesem Fall über  
das Radionuklid Pu-239 als Indikator erfolgen, da die Plutoniumisotope mit dosisbe-  
stimmend sind. Mit der Nachweisgrenze gemäß Tabelle 6-1 ist Pu-239 bereits heute  
nachweisbar, wenn es in der konservativen radioökologischen Modellierung zu einer  
Dosis von etwa  $5 \cdot 10^{-4}$  mSv im Jahr führen würde.

In den anderen Rechenfällen des Szenarios II kann es je nach den zugrunde geleg-  
ten Parameterwerten zu zeitlich stark verzögerten Einträgen von Radionukliden in  
das Grundwasser sowie zu sehr unterschiedlichen Nuklidvektoren im Grundwasser  
kommen. Das Auftreten messtechnisch erfassbarer Aktivitätskonzentrationen, die  
zu relevanten Dosiswerten führen können, liegt dabei mehrere hundert oder mehre-

re tausend Jahre in der Zukunft. Für derartige Zeiträume lassen sich Aufgaben und Möglichkeiten eines Monitorings nicht sinnvoll beschreiben, daher kann diesbezüglich nur auf eine fortlaufende Anpassung nach dem Stand von Wissenschaft und Technik verwiesen werden.

## **7 Abschätzung von Kollektivdosen nach Freisetzung von kontaminiertem Wasser in die Biosphäre und dessen Nutzung als Trinkwasser**

In diesem Kapitel werden die Annahmen des radioökologischen Modells zur Freisetzung von radioaktiv kontaminiertem Grundwasser anhand vorhandener Daten zum Grundwasserdargebot, zu den Quellschüttungen im Einzugsgebiet des Asse-Höhenzuges und zur Trinkwassernutzung diskutiert. Es werden dabei potenzielle Szenarien der Freisetzung und der anschließenden Nutzung des Trinkwassers entwickelt. Aus den entwickelten Szenarien der Freisetzung wird auf Basis der aus der radioökologischen Modellierung ermittelten Dosis die Kollektivdosis abgeschätzt. Auf der Basis der jeweiligen Kollektivdosen werden die stochastischen Wirkungen als Anzahl an letalen Krebserkrankungen berechnet.

### **7.1 Faktoren für die Entwicklung von Szenarien**

In diesem Kapitel werden die Faktoren beschrieben, die Szenarien der Strahlenexposition von Einzelpersonen und Kollektiven bei einer Trinkwassernutzung zu Grunde liegen, die nach Absaufen der Asse und Auspressen von jährlich 10.000 m<sup>3</sup> radioaktiv kontaminierter Salzlösung erfolgt (Szenario I). Folgende Faktoren bestimmen die Szenarien der Strahlenexposition im Austragsgebiet der Asse II im Falle eines auslegungüberschreitenden Lösungszutritts.

- Das für eine Verdünnung der aus dem Grubengebäude ausgepressten Salzlauge verfügbare Dargebot an Grundwasser.
- Die Freisetzung von im Bereich des Asse-Höhenzuges austretenden radioaktiven Flüssigkeiten über Quellschüttungen.
- Der Entwässerung des Austragsgebietes über Vorfluter und die ggf. dadurch erfolgende Strahlenexposition außerhalb des potenziellen primären Austragsgebietes der Asse II.
- Die derzeitigen, die in der Vergangenheit durchgeführten sowie weitere potenzielle Szenarien der Trinkwassergewinnung im Austragsgebiet der Asse II.

#### **7.1.1 Dargebot an Grundwasser und Quellschüttungen**

Das Grundwasser im Einzugsgebiet des Asse-Höhenzuges wird nach /Colenco 2006/ vorwiegend durch Versickerung von Niederschlägen gebildet. Zuflüsse aus dem Fernbereich sind hypothetisch. Die Neubildungsraten innerhalb der einzelnen Einzugsgebiete sind aufgrund der heterogenen Gesteinsbeschaffenheit und der Wechsellagerung von Aquiferen und Aquitarden sehr unterschiedlich und im Detail nicht untersucht. Nach den Ergebnissen der Recherchen von /Colenco 2006/ kann von einer Grundwasserneubildung von etwa 100 mm/m<sup>2</sup> ausgegangen werden.

Der durchschnittliche jährliche Niederschlag im Bereich des Asse-Höhenzuges beträgt im langjährigen Mittel etwa 725 mm/m<sup>2</sup> /NWKLN 2010/.

Die im radioökologischen Modell zur Berechnung der effektiven Dosis im Szenario I zu Grunde gelegte Verdünnung der austretenden Salzlauge von 1:1.100, die der Annahme in /GRS 2009/ entspricht, ist die Voraussetzung dafür, dass eine Nutzung des Wassers z. B. als Trinkwasser unterstellt werden kann.

Für die Verdünnung einer mit einer Auspressrate von 10.000 m<sup>3</sup>/a aus dem Grubengebäude austretenden salzgesättigten Lösung auf das Niveau von Trinkwasser (Verhältnis 1:1.100) wären 1,1·10<sup>7</sup> m<sup>3</sup>/a erforderlich. Die gesamte jährliche Grundwasserneubildung im Einzugsgebiet des Asse-Höhenzuges von etwa 15 km<sup>2</sup> betrüge bei einer Grundwasserneubildungsrate von 100 mm/a 1,5·10<sup>6</sup> m<sup>3</sup>/a und läge damit etwa eine Größenordnung unter der für eine Verdünnung von 10.000 m<sup>3</sup>/a ausgedrückter Salzlauge auf Trinkwasserniveau erforderlichen Menge.

Die von /Colenco 2006/ im gesamten Asse-Höhenzug recherchierten Quellschüttungen sind in Tabelle 7-1 wiedergegeben.

Tabelle 7-1: Quellschüttungen im Bereich des Asse-Höhenzuges aus /Colenco 2006/

Bezeichnung der Quellen	Anzahl	mittlere Schüttung l/s	mittlere Schüttung m <sup>3</sup> /a
A1 NE-Flanke: Groß Denkte	7	13,1	4,13·10 <sup>5</sup>
A2 NE-Flanke: Groß Denkte bis Groß Vahlberg	2	2,0	6,31·10 <sup>4</sup>
A3 NE-Flanke: Talweg Groß Vahlberg	3	4,4	1,39·10 <sup>5</sup>
A4 Vahlberger Abschnitt	3	0,7	2,20·10 <sup>4</sup>
B1 Verstärktes Deckgebirge: Groß Denkte	1	5	1,58·10 <sup>5</sup>
B2 Verstärktes Deckgebirge: Denkte und Schacht Asse II	1	0,02	6,31·10 <sup>2</sup>
C1 SW-Flanke: Groß Denkte	1	0,4	1,26·10 <sup>4</sup>
C2 Quertal von Wittmar	2	1,85	5,83·10 <sup>4</sup>
C3 SW-Flanke zwischen Wittmar und Ammerbeek	1	1,4	4,42·10 <sup>4</sup>
C4 Quertal von Ammerbeek und SW Flanke N Remlingen	2	2,1	6,6·10 <sup>4</sup>
C5 Remlinger Kreidemulde, Kissensbrück	1	3,8	1,54·10 <sup>4</sup>
C5 Remlinger Kreidemulde, Remlingen	1	0,5	1,20·10 <sup>5</sup>
Summe aller Quellen			1,11·10 <sup>6</sup>

Die Summe der jährlichen mittleren Schüttung aller Quellen des Asse-Höhenzuges liegt unterhalb der angegebenen Grundwasserneubildungsrate des Einzugsgebietes des Asse-Höhenzuges. Die Summe der Quellschüttungen liegt jedoch ebenfalls etwa eine Größenordnung unter einer Gesamtmenge von 1,1·10<sup>7</sup> m<sup>3</sup>/a, die bei einer Auspressrate von 10.000 m<sup>3</sup>/a zur anschließenden Verdünnung auf Trinkwasserniveau (Faktor 1.100) benötigt werden würde.

Für weitere Betrachtungen zur Freisetzung von kontaminierter Salzlauge und zur potenziellen Einzel- und Kollektivdosisbelastung der Bevölkerung ist das Dargebot aus Quellschüttungen zu berücksichtigen. Die Gesamtmenge an jährlichen Quell-

schüttungen würde nicht ausreichen um eine Verdünnung von 10.000 m<sup>3</sup>/a ausgepresster Salzlauge auf Trinkwasserniveau zu verdünnen. Im Ereignisfall kann sich jedoch aus dem Grubengebäude ausgepresste radioaktive Lauge unterschiedlich auf die Quellschüttungen des Asse-Höhenzuges verteilen und somit in unterschiedlichen Verdünnungen feigesetzt werden.

## 7.1.2 Heutige und frühere Trinkwassernutzungen

Nach /Colenco 2006/ werden mit Ausnahme der Wasserversorgung in Kissenbrück die Quellen im Bereich der Asse heute nicht mehr zur Gewinnung von Trinkwasser genutzt. In Tabelle 7-2 sind frühere Trinkwassernutzungen dargestellt.

Tabelle 7-2: Frühere Grundwasserentnahmen im Bereich des Asse-Höhenzuges nach /Colenco 2006/

Grundwasserentnahmen	Anzahl	Entnahme l/s	frühere Nutzung
<b>Wolfenbüttel</b>	3	2,29	betriebliche Zwecke
<b>Klein Denkte</b>	1	0,90	Beregnung
<b>Kissenbrück</b>	1	2,2	Versorgung der Bevölkerung
<b>Schöppenstedt</b>	1	2,4	Versorgung der Bevölkerung
<b>Schladen</b>	1	9,15	Zuckerfabrik
<b>Summe</b>		17,94	

Der überwiegende Teil der genutzten Grundwasservorkommen erfolgte nicht für die Gewinnung von Trinkwasser. Würde die Summe der früher genutzten Grundwasserentnahmen für die Versorgung der Bevölkerung genutzt werden, so würden bei einem täglichen Pro-Kopf-Wasserverbrauch von 122 Litern /DStatis 2008/ etwa 12.700 Personen versorgt werden können.

Die offensichtlich auch derzeit noch durch das Wasserwerk Kissenbrück erfolgende Wasserentnahme wurde für die Vergangenheit in /Colenco 2006/ mit 2,2 l/s angegeben und wäre für die heutige Versorgung der Gemeinde Kissenbrück mit derzeit 1.812 Einwohnern knapp ausreichend (tägliches Wasserverbrauch von 122 Liter pro Einwohner). Die Quellschüttung der Remlinger Kreidemulde (vgl. Tabelle 7-1) würde jedoch die Versorgung der derzeitigen Einwohnerzahl von Kissenbrück ermöglichen.

Die derzeitige Wasserversorgung der Gemeinden um die Asse und im Einzugsbereich des Asse-Höhenzuges erfolgt mit Ausnahme von Kissenbrück durch regional und überregional agierende Wasserversorger. Die jeweilige Wasserversorgung der Gemeinden verändert sich mit Veränderungen der vertraglich gebundenen Wasserversorger. Detaillierte Daten der Wasserversorgung sind nicht öffentlich. Im Jahr 2005 erfolgte die Wasserversorgung der Gemeinden im Bereich des Asse-Höhenzuges durch die Purena GmbH, die LandE GmbH und den Wasserverband Weddel-Lehrte /LK Wolfenbüttel 2005/. Der größte Teil der im Einzugsgebiet des Asse-Höhenzuges liegenden Gemeinden (Stadt Wolfenbüttel, Samtgemeinde

Schöppenstedt, Gemeinde Denkte, Gemeinde Witmar und Gemeinde Remlingen) wurde in 2005 demnach von der Purena GmbH versorgt.

Nach aktuellen Angaben der Purena GmbH werden durch das Wasserwerk in Wolfenbüttel die Stadt Wolfenbüttel, die Samtgemeinden Asse (ohne Kissenbrück), Schöppenstedt, Oderwald und Schöningen sowie die Gemeinde Büddenstadt und das Versorgungsgebiet Helmstedt versorgt. Das Wasser wird in Wolfenbüttel über vier Brunnen gefördert und mit Fremdwasser aus Talsperren des Harzes im Verhältnis 40:60 gemischt. Die jährliche Gesamtabgabe des Wasserwerkes Wolfenbüttel beträgt nach Mischung mit Fremdwasser etwa  $6,8 \cdot 10^6$  m<sup>3</sup>. Damit können bei einem täglichen Pro-Kopf-Wasserverbrauch von 122 Liter etwa 152.000 Menschen versorgt werden.

Für die weitere Betrachtung der infolge eines auslegungsüberschreitenden Lösungszutrittes in die Asse resultierenden potenziellen Kollektivdosis durch den Verzehr von Trinkwasser sind Szenarien zu entwickeln, die unterschiedliche Gegebenheiten der Wasserversorgung im Einzugsgebietes des Asse Höhenzuges berücksichtigen.

### 7.1.3 Abfluss von Oberflächenwasser aus dem Einzugsgebiet des Asse-Höhenzuges über Vorfluter

Das Gebiet um den Asse-Höhenzug sowie nördlich, südlich und westlich daran angrenzenden Flächen gehören zum Einzugsgebiet der Oker /NLWKN 2009b, Colenco 2006/. Die Elbe-Weser-Wasserscheide verläuft nördlich von Remlingen östlich des Klein-Vahlberger Buchen nach Groß Vahlberg. Gebiete westlich der Wasserscheide entwässern in die Oker und überregional in die Weser. Gebiete östlich der Wasserscheide entwässern in die Osterbeek und in die Kleine Soltau und gehören zum Einzugsgebiet der Elbe /Colenco 2006/. Nach /Colenco 2006/ bestehen aufgrund des Heeseberges keine Abflussmöglichkeiten an der Oberfläche im Südosten über die Kleine Soltau hinaus. Daher wird die Kleine Soltau, deren Name bereits auf höhere Salzgehalte schließen lässt, als Vorfluter für die Trinkwasserversorgung größerer Kollektive nicht berücksichtigt. Die Versorgung kleinerer Kollektive beispielsweise mit Trinkwasser aus der Kleinen Soltau ist durch die Betrachtung der Szenarien der Trinkwassergewinnung im Bereich des Asse-Höhenzuges und der Stadt Wolfenbüttel abgedeckt.

Der mittlere Abfluss der Oker betrug im Abflussjahr 2005 am Pegel Ohrum 4,75 l/s /NLWKN 2008/. Dies entspricht einer Jahresmenge von  $1,5 \cdot 10^8$  m<sup>3</sup>. Im Sommerhalbjahr lag der mittlere Abfluss bei 3,04 l/s, im Winterhalbjahr bei 6,47 l/s.

Für die weitere Betrachtung der infolge eines auslegungsüberschreitenden Lösungszutrittes in die Asse resultierenden potenziellen Kollektivdosis durch den Verzehr von Trinkwasser sind Szenarien zu entwickeln, die den Oberflächenabfluss in die jeweiligen Vorfluter und die damit verbundene potenzielle Strahlenexposition der Bevölkerung durch Gewinnung von Trinkwasser aus dem Vorfluter berücksichtigen.



## 7.2 Beschreibung von Szenarien der Freisetzung und Trinkwassernutzung

Unter Berücksichtigung der zur Verfügung stehenden Quellschüttungen wird für die Verdünnung von ausgepresster radioaktiver Salzlauge davon ausgegangen, dass jährlich maximal  $1,11 \cdot 10^6$  m<sup>3</sup> Wasser für die Verdünnung der ausgepressten Salzlauge zur Verfügung stehen und als nutzbares Wasser zu Tage treten oder gefördert werden können (vgl. Tabelle 7-1).

Würde es im Ereignisfall gemäß Szenario I zu einer gleichmäßigen Verteilung von 10.000 m<sup>3</sup>/a ausgepresster Salzlauge auf alle Quellschüttungen der Asse kommen, so wären alle Quellen versalzen und für die Trinkwassergewinnung nicht nutzbar. Die gesamte Menge an ausgepresster Salzlauge würde über die Quellschüttungen in die Oker gelangen und über ggf. erfolgende Trinkwassernutzungen der Oker zur Strahlenexposition von Einzelpersonen und Kollektiven führen. Dieser Fall wird am Ende dieses Kapitels bei der Betrachtung des Vorfluters Oker berücksichtigt.

Es kann derzeit jedoch nicht ausgeschlossen werden, dass es im Ereignisfall gemäß Szenario I zu einer unterschiedlichen Vermischung von ausgepresster Salzlauge mit dem vorhandenen Grundwasser kommt und sich einzelne Grundwasserströme auf dem Weg in die Biosphäre separieren. Dies könnte dazu führen, dass ein Teil der Quellen des Asse-Höhenzuges Anteile der aus dem abgesoffenen Grubengebäude ausgepressten Salzlauge enthält, die eine Nutzung als Trinkwasser ermöglichen, während ein anderer Teil der Quellen wesentlich stärker aufkonzentriert ist und damit für die Trinkwassernutzung nicht geeignet wäre.

### Berücksichtigung unterschiedlicher Verteilungen von ausgepresster Salzlauge auf verschiedene Quellen

Es wird davon ausgegangen, dass nur ein Teil der Quellen des Asse-Höhenzuges auf Trinkwasserniveau verdünnte Salzlauge enthalten würde, während der andere Teil der Quellschüttungen die übrige Menge an ausgepresster Salzlauge enthalten würde und damit lokal nicht für die Trinkwassergewinnung geeignet wäre.

Betrachtet wird einerseits, dass alle Quellen des Asse-Höhenzuges mit Ausnahme der Quellen der Remlinger Kreidemulde mit einem Gesamtdargebot von  $9,77 \cdot 10^5$  m<sup>3</sup>/a die ausgepresste Lauge im Verhältnis 1.100:1 enthalten würden und damit für eine potenzielle Trinkwassernutzung zur Verfügung stünden, während über die Quellen der Remlinger Kreidemulde die übrige Menge an ausgepressten Lauge, um die Quellschüttung verdünnt, austreten würde (Szenario „alle Quellen außer Kreidemulde“). Die Quellen der Remlinger Kreidemulde wären in diesem Falle nicht für die Trinkwassergewinnung geeignet. Ihr Wasser würde ungünstigstenfalls in die Oker gelangen. Die hier für eine Trinkwassernutzung als geeignet betrachtete Menge an Quellschüttungen entspricht 88 % der gesamten Quellschüttungen des Asse-Höhenzuges.

Andererseits wird davon ausgegangen, dass lediglich die Quellen der Remlinger Kreidemulde soweit verdünnte Anteile an ausgepresster Salzlauge enthalten, dass

dieses Dargebot von jährlich  $1,36 \cdot 10^5$  für die Trinkwassernutzung zur Verfügung stünde (Szenario „nur Kreidemulde“).

Die jeweils restliche Menge an ausgepresster Lauge gelangt in diesem Szenario ungenutzt in die Oker.

## Optionen der Trinkwassergewinnung

Derzeit findet nur noch in sehr begrenztem Umfang eine Trinkwassergewinnung im Bereich des Asse-Höhenzuges statt (siehe Abschnitt 7.1.2). Für die lokale Versorgung wird auch Wasser aus dem Harz bezogen, das durch Freisetzen aus der Asse nicht kontaminiert werden kann, weil die Entnahmestellen weit entfernt von der Asse liegen.

Im Rahmen dieses Gutachtens sollte aber auch untersucht werden, was passieren würde, wenn in einigen Jahrzehnten wieder eine Versorgung mit einem größeren Anteil von Trinkwasser aus lokalen Quellen aus der direkten Umgebung der Asse angestrebt werden würde. Es sind keine Planungen bekannt, solche frühere Trinkwassergewinnungen im Bereich des Asse-Höhenzuges wieder aufzunehmen. Deshalb sind die folgenden Untersuchungen lediglich als modellmäßige Betrachtung zu verstehen, in denen auch frühere Trinkwassergewinnungsstellen, die heute nicht mehr benutzt werden, mit einfließen.

Frühere und derzeitige Trinkwassergewinnungen werden für drei beispielhafte Optionen, die das mögliche Feld beschreiben, berücksichtigt:

- Es wird in der ersten Option davon ausgegangen, dass alle früheren Trinkwassernutzungen im Bereich des Asse-Höhenzuges wieder aufgenommen werden und mit einem lokalen Dargebot von  $5,66 \cdot 10^5$  m<sup>3</sup> 12.700 Menschen versorgt werden (Szenario „frühere Nutzungen“).
- Für die zweite Option wird davon ausgegangen, dass lediglich in Kissenbrück 1.812 Einwohner mit radioaktiv kontaminiertem Trinkwasser versorgt werden (Szenario „Werk Kissenbrück“).
- In der dritten Option wird davon ausgegangen, dass ein Dargebot von jährlich  $2,8 \cdot 10^6$  m<sup>3</sup> im Wasserwerk Wolfenbüttel gefördert und mit  $4,2 \cdot 10^6$  m<sup>3</sup> Fremdwasser vermischt für die Versorgung von etwa 152.000 Einwohnern verwendet wird.

Die im Wasserwerk Wolfenbüttel geförderte Menge an Rohwasser ist etwa um den Faktor 2,5 höher als das gesamte Dargebot an Quellschüttungen im Asse-Höhenzug. Es werden zwei Varianten berücksichtigt:

- In einer Variante mit extrem hohen Mengen an Eigenwasser (Szenario „Wolfenbüttel extreme Mengen“) wird davon ausgegangen, dass das gesamte am Wasserwerk Wolfenbüttel geförderte Wasser, einen Anteil an ausgepresster Lauge enthält, der soweit verdünnt ist, dass die Nutzung als Trinkwasser möglich ist. Dieses Wasser wird dann mit Fremdwasser im Verhältnis von 40:60 für die Versorgung der Bevölkerung verwendet.

- In einer realistischen Variante wird davon ausgegangen, dass sich die Eigenförderung im Wasserwerk Wolfenbüttel einerseits aus kontaminiertem Wasser aus dem Asse-Höhenzug und andererseits aus nicht kontaminiertem Wasser aus dem Bereich Wolfenbüttel zusammensetzt. Es wird davon ausgegangen, dass etwa die Hälfte des Dargebotes der Quellen des Asse-Höhenzuges mit radioaktiver aber bereits im Verhältnis 1:1.100 verdünnter Salzlauge zum Wasserwerk Wolfenbüttel gelangt und dort mit nicht kontaminiertem Eigenwasser vermischt gefördert wird. Die geförderte Gesamtmenge an Eigenwasser wird dann, wie derzeit durchgeführt, im Verhältnis 40:60 mit Fremdwasser aus Talsperrren des Harzes gemischt und zur Versorgung der Bevölkerung verwendet (Szenario „Wolfenbüttel, realistisch“).

Für alle Optionen wird davon ausgegangen, dass die jeweiligen Restmengen aus ausgepresster Lauge über die Vorfluter in die Oker gelangen.

### Berücksichtigung des Vorfluters Oker

Bei den jeweils unterschiedlichen Optionen der Trinkwassernutzung im Bereich des Asse-Höhenzuges und in Wolfenbüttel wird davon ausgegangen, dass die jeweils restliche Lauge, die nicht auf Trinkwasserniveau verdünnt wird, über die Vorfluter in die Oker gelangt. Darüber hinaus wird als weitere Option betrachtet, dass keinerlei Trinkwassergewinnung im Bereich des Asse-Höhenzuges und in Wolfenbüttel stattfindet und die gesamte jährlich ausgepresste Lauge von 10.000 m<sup>3</sup> in die Oker gelangt (Szenario „alle Quellen in Oker“). Diese Option würde eintreten, wenn einerseits alle Quellen des Asse-Höhenzuges bei gleichmäßiger Verteilung der gesamten ausgepressten Salzlauge auf alle Quellen für die Trinkwassernutzung ungeeignet wären oder, wenn die Quellen des Asse-Höhenzuges für die Gewinnung von Trinkwasser trotz teilweise vorhandener Eignung nicht genutzt werden würden.

Für die weitere Berechnung der Kollektivdosis aus dem Verzehr von Wasser der Oker wird davon ausgegangen, dass 10 % des Wassers der Oker für die Gewinnung von Trinkwasser genutzt werden. Dies ist konservativ, da mit zunehmenden Abstrom der Oker mit einer weiteren Verdünnung des Wassers zu rechnen ist.

Die den oben beschriebenen Szenarien zu Grunde gelegten Mengen an Wasser, das als Trinkwasser genutzt wird, sind in Abbildung 7-1 dargestellt.

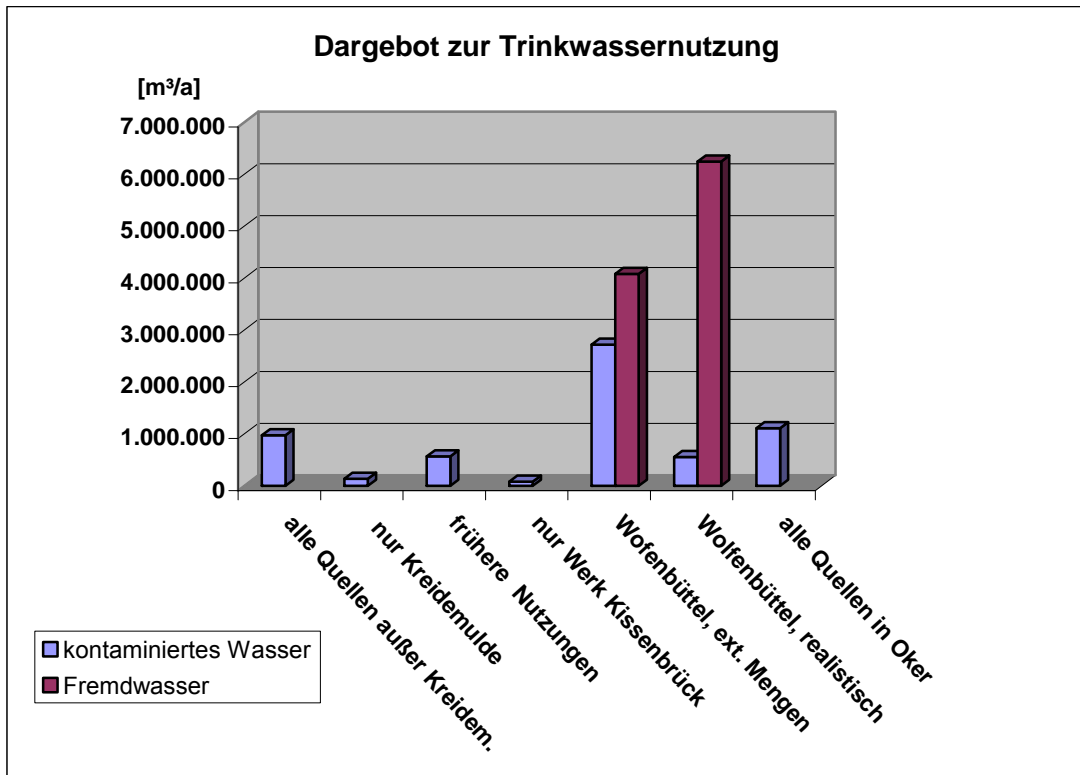


Abbildung 7-1: Überblick über die Mengen an Wasser, die den betrachteten Szenarien der Trinkwassernutzung zu Grunde liegen.

### 7.3 Kollektivdosis bei den beschriebenen Szenarien der Trinkwassergewinnung

Für die beschriebenen Szenarien der zur Verfügung stehenden Mengen an Wasser für die Trinkwassergewinnung wird die Kollektivdosis berechnet. Die effektive Dosis wird als gemittelte effektive Dosis für 1000 Einwohner aus der maximalen effektiven Dosis aus Trinkwasserkonsum für den Säugling und der maximalen effektiven Dosis aus Trinkwasserkonsum für den Erwachsenen berechnet. Es wird dabei davon ausgegangen, dass sich unter 1.000 Personen der Bevölkerung 8,3 Säuglinge im Alter von weniger als 1 Jahr befinden /DStatis 2009/. Da es sich um die Ermittlung von Kollektivdosen handelt, wurde bei den Berechnungen der effektiven Dosen von mittleren Verzehrsgewohnheiten ausgegangen. Die Faktoren des Anhangs 5 Tabelle 1 Spalte 8 Tabelle 1 der AVV zu § 47 StrlSchV zur Abdeckung des 95. Perzentils der jährlichen Verzehrsmengen wurde daher nicht angewendet.

Für die Berechnung der Größe des Kollektivs, das mit Wasser versorgt werden kann, wird davon ausgegangen, dass ein täglicher Pro-Kopf-Wasserverbrauch von 122 l besteht /DStatis 2008/. Die Verzehrsmenge wurde entsprechend der Verzehrsgewohnheiten der AVV zu § 47 StrlSchV bereits bei der Berechnung der effektiven Dosis berücksichtigt.

Die Berechnung stochastischer Wirkungen aus der Kollektivdosis erfolgt nach /ICRP 2007/. Es wird der detriment-adjustierte nominelle Risikokoeffizient für Krebs und vererbare Wirkungen für die Gesamtbevölkerung von  $5,7 \cdot 10^{-2} \text{ Sv}^{-1}$  verwendet. In Tabelle 7-3 sind die Annahmen und Parameter für die Szenarien der Trinkwassernutzung zusammengestellt.

Tabelle 7-3: Randbedingungen und Parameter verschiedener Szenarien der Trinkwassernutzung

	Einheit	Szenarien der Trinkwassernutzung						
		alle Quellen außer KM	Quellen K.-Mulde	frühere Nutzung	Kissen- brück	Wolfenbüttel extr. Mengen	Wolfenbüttel realistisch	alles in die Oker
Kontaminierte Salz- lauge	[m³/a]	10.000	10.000	10.000	10.000	10.000	10.000	10.000
Dargebot an Quellen	[m³/a]	1,1E+06	1,1E+06	1,1E+06	1,1E+06	1,1E+06	1,1E+06	1,1E+06
Menge zur Verdün- nung	[m³/a]	9,8E+05	1,4E+05	5,7E+05	8,1E+04	6,8E+06	6,8E+06	0,0E+00
Anteil, der verdünnt wird	[m³/a]	888	123	514	73	2.473	506	0
unverdünnte Lauge	[m³/a]	9.112	9.877	9.486	9.927	7.527	9.494	10.000
Verdünnungsfaktor Oker	[-]	16.439	15.167	15.792	15.090	19.900	15.777	14.980
Einwohner "Asse"		21.933	3.045	12.705	1.812	152.706	152.706	0
Einwohner "Oker"		336.393	336.393	336.393	336.393	336.393	336.393	336.393

„Menge zur Verdünnung“: jährliche Wassermenge, die gemäß Szenarium für die Verdünnung von radioaktiv kontaminierter Salzlauge zur Verfügung steht,

„Anteil, der verdünnt wird“: Menge an radioaktiv kontaminierter Lauge, der bei einer Verdünnung 1:1.100 mit der „Menge zur Verdünnung“ verdünnt werden kann,

„unverdünnte Lauge“: Menge an ausgepresster Lauge, die nicht auf Trinkwasserniveau verdünnt wird und in die Oker gelangt,

„Verdünnungsfaktor Oker“: Quotient aus mittlerem Abfluss der Oker und „unverdünnte Lauge“,

Einwohner „Asse“: Anzahl der Einwohner die bei einem Verbrauch von 122 l/d pro Person im jeweiligen Szenarium versorgt werden würden,

Einwohner „Oker“: Anzahl der Einwohner die bei einem Verbrauch von 122 l/d pro Person mit Wasser der Oker, das zu 10 % zur Trinkwassernutzung verwendet wird im jeweiligen Szenarium versorgt werden würden

KM, K.-Mulde: Kreidemulde

In Tabelle 7-4 sind für einige Varianten des Szenarios II die resultierende Kollektivdosis und die Anzahl der Krebsfälle, die sich bei unterschiedlichen Szenarien eines nutzbaren Dargebotes an Trinkwasser ergeben, aufgelistet. Dabei liegt die sehr konservative Annahme zugrunde, dass sämtliches genutztes Trinkwasser aus dem Dargebot des Asse-Höhenzuges eine entsprechende Belastung in Höhe der in Kapitel 5 errechneten Aktivitätskonzentrationen aufweist.

Tabelle 7-4: Kollektivdosis in Sv/a und Krebsfälle pro Jahr bei unterschiedlichen Szenarien der Trinkwassernutzung im Szenario II mit Sorptionskoeffizienten nach /INE 2009/

	Szenarien der Trinkwassernutzung						
	alle Quel- len außer KM	Quellen K.-Mulde	frühere Nutzung	Kissen- brück	Wolfen- büttel extr. Men- gen	Wolfen- büttel realistisch	alles in die Oker
Rechenfall 1 (Abstandsgeschwindigkeit 10 m/a)							
Kollektivdosis "Asse"	3E-02	4E-03	2E-02	2E-03	3E-02	2E-02	0E+00
Krebsfälle "Asse"	2E-03	2E-04	9E-04	1E-04	2E-03	9E-04	0E+00
Kollektivdosis "Oker"	3E-03	3E-03	3E-03	3E-03	2E-03	3E-03	3E-03
Krebsfälle "Oker"	2E-04	2E-04	2E-04	2E-04	1E-04	2E-04	2E-04
Rechenfall 2 (Abstandsgeschwindigkeit 1 m/a)							
Kollektivdosis "Asse"	4E-02	5E-03	2E-02	3E-03	4E-02	2E-02	0E+00
Krebsfälle "Asse"	2E-03	3E-04	1E-03	2E-04	3E-03	1E-03	0E+00
Kollektivdosis "Oker"	4E-03	4E-03	4E-03	4E-03	3E-03	4E-03	4E-03
Krebsfälle "Oker"	2E-04	2E-04	2E-04	2E-04	2E-04	2E-04	2E-04
Rechenfall 3 (Abstandsgeschwindigkeit 0,3 m/a)							
Kollektivdosis "Asse"	2E-02	2E-03	9E-03	2E-02	9E-02	9E-03	0E+00
Krebsfälle "Asse"	9E-04	1E-04	7E-05	1E-03	5E-03	5E-04	0E+00
Kollektivdosis "Oker"	2E-03	2E-03	2E-03	1E-03	7E-03	2E-03	2E-03
Krebsfälle "Oker"	9E-05	1E-04	1E-04	8E-05	4E-04	1E-04	1E-04

Bezogen auf die Kontaminationen von Grundwasser unter der sehr konservativen Annahme, dass sämtliches genutztes Trinkwasser aus dem Dargebot des Asse-Höhenzuges die Aktivitätskonzentration der hier durchgeführten Berechnungen aufweisen würde, ergeben sich die folgenden Schlussfolgerungen:

- In der ungünstigsten Variante in Tabelle 7-4 wären einzelne zusätzliche letale Krebsfälle über Zeiträume von jeweils 1000 Jahren möglich (unter der Annahme, dass die ungünstigen Kontaminationsverhältnisse über diesen Zeitraum vorliegen). Das individuelle Risiko über die Lebenszeit einer Einzelperson würde maximal in der Größenordnung von  $10^{-4}$  bis  $10^{-5}$  liegen.
- Im Szenario I würden sich aufgrund der Nichtberücksichtigung rückhaltender und verzögernder Effekte beim Radionuklidtransport bis in das genutzte Grundwasser rechnerisch entsprechend höhere Kollektivdosen, bis in den Bereich von etwa 300 Sv/a, ergeben.

## 8 Diskussion der berechneten Strahlenexpositionen

Strahlenexpositionen wurden hier für zwei Szenarien berechnet, die beide einen auslegungsüberschreitenden Lösungszutritt in der Asse als Ausgangspunkt haben.

Das **Szenario I** ist ein Szenario, das sich stark an /GRS 2009/ orientiert. Es beinhaltet die vollständige Lösung aller Radionuklide des Asse-Inventars. Nach homogener Vermischung der Radionuklide in der Asse erfolgt 30 Jahre nach vollständigem Absaufen ein Auspressen der Lösung mit einer Rate von 10.000 m<sup>3</sup> im Jahr und damit eine Kontamination des genutzten Grundwassers. Es wird eine Verdünnung im Verhältnis 1:1.100 unterstellt, da das Wasser ansonsten als Trinkwasser nicht geeignet wäre. Die Verwendung kontaminierten Wassers und damit auch die Strahlenexposition beginnt unmittelbar nach dem vollständigen Absaufen, also nach 30 Jahren. Dieses Szenario wurde hier betrachtet, um zu /GRS 2009/ vergleichbare Ergebnisse zu erhalten, die aber – anders als in /GRS 2009/ - mit einem geeigneten radioökologischen Modell ermittelt wurden.

Das **Szenario II** baut auf Szenario I auf. Es berücksichtigt Löslichkeitsgrenzen für Uran und Thorium, geht ansonsten aber ebenfalls von der vollständigen Lösung der Radionuklide des Asse-Inventars aus. Das Durchdringen des Deckgebirges durch die Radionuklide wird beispielhaft an zwei Störungen untersucht. Eine stellt die kürzeste Verbindung zum oberflächennahen Grundwasser dar (Pfad I), die andere ist eine, über die sich dieser Vorgang wahrscheinlich tatsächlich abspielen könnte (Pfad II). Für die beiden Pfade wird die Rückhaltung und Verzögerung der Radionuklide mit spezifischen Sorptionskoeffizienten ermittelt. Die Kontamination des genutzten Grundwassers beginnt dann deutlich später, erfolgt aber über sehr lange Zeiträume. Ein wichtiger Faktor, der die Höhe der Kontamination beeinflusst, ist die Geschwindigkeit, mit der die Lösung durch die Gesteine des Deckgebirges dringen kann. Diese wird variiert, da sie insbesondere von der zukünftigen Auflockerung in der Umgebung der Schachanlage durch Setzungsprozesse abhängt. Dabei werden Auspressraten und damit maximale Dauern der Auspressung angesetzt, die bei den jeweiligen Abstandsgeschwindigkeiten plausibel sind.

### 8.1 Ergebnisse der Untersuchungen zum Szenario I

Für das Szenario I wurden in /GRS 2009/ sehr hohe Strahlenexpositionen ermittelt, nämlich bis zu etwa 2.000 mSv im Jahr. Die radioökologische Modellierung der Folgen war dabei fehlerhaft, da sogenannte Dosiskonversionsfaktoren aus /Pröhl 2002/ zur Berechnung der Strahlenexposition aus der Kontamination des Grundwassers herangezogen wurden, die für das Szenario I nicht anwendbar sind. Dosiskonversionsfaktoren sind nur bei der Berechnung von sehr langfristigen radiologischen Auswirkungen von Endlagern sinnvoll. Ihr Nachteil ist, dass eine anwendungsbezogene Anpassung, beispielsweise an kürzere Zeiträume, über die wie im Szenario I tatsächlich Freisetzungen stattfinden, ausgeschlossen ist. Für alle anderen Anwendungsgebiete als bei Endlagern wird daher auch nicht mit Dosiskonversionsfaktoren gearbeitet, sondern mit Modellen, bei denen der Anwender noch entsprechende

Randbedingungen festlegen und erforderlichenfalls spezifische Parameterwerte einfügen muss. Aus diesem Grund wurde hier ein angepasstes radioökologisches Modell zur Ermittlung der Strahlenexposition entwickelt (siehe Kapitel 3) und angewandt.

Die Neuberechnung ergab, dass die starke Dominanz des Thoriums für die Strahlenexposition in /GRS 2009/ keine wissenschaftliche Grundlage hat. Dies gilt auch wenn in den hier durchgeführten Berechnungen die Tochternuklide des Th-232 vollständig berücksichtigt werden.

Die Berechnungen wurden zur besseren Vergleichbarkeit sowohl für das Plutoniuminventar von 11,8 kg nach /GSF 2002/ durchgeführt (analog /GRS 2009/) als auch für ein erhöhtes Plutoniuminventar von 28 kg gemäß neuerer Erkenntnis (gemäß Schreiben der ESK/SSK-Ad-hoc-Arbeitsgruppe Asse vom 02.11.2009 an das Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit).

Ein wichtiger Faktor der Modellierung der Strahlenexposition ist der Grad an Konservativität, der angestrebt wird. Die Dosiskonversionsfaktoren waren in Anlehnung an den damaligen Stand der AVV zu § 47 StrlSchV /AVV 2005/ abgeleitet. Dies bedeutet eine sehr hohe Konservativität, da beispielsweise von sehr hohen Verzehrswerten kontaminierter Lebensmittel ausgegangen wird (siehe Tabelle 3-9). Dieses Vorgehen entspricht dem Vorgehen bei der Genehmigung von kerntechnischen Anlagen in Deutschland. In einer zweiten Wahl von Parameterwerten erfolgt eine Berechnung mit realistischeren Lebensgewohnheiten der Referenzpersonen, die an die Berechnungsgrundlagen Bergbau /BglBb 2010/ angelehnt ist. Dies äußert sich insbesondere in geringeren Raten des Verzehrs kontaminierter Lebensmittel, u. a. durch die Berücksichtigung von nicht regional erzeugten Lebensmitteln (siehe Tabelle 3-9). Die Berechnungsgrundlagen Bergbau wurden für die Hinterlassenschaften aus bergbaulichen Tätigkeiten mit erhöhter natürlicher Radioaktivität entwickelt, zunächst in Zusammenhang mit der Sanierung der Hinterlassenschaften des Uranerzbergbaus in der ehemaligen DDR. Sie stellen daher ein Instrumentarium dar, das nicht bei einer geplanten Tätigkeit, sondern bei der Sanierung einer existierenden Situation angewendet wird.



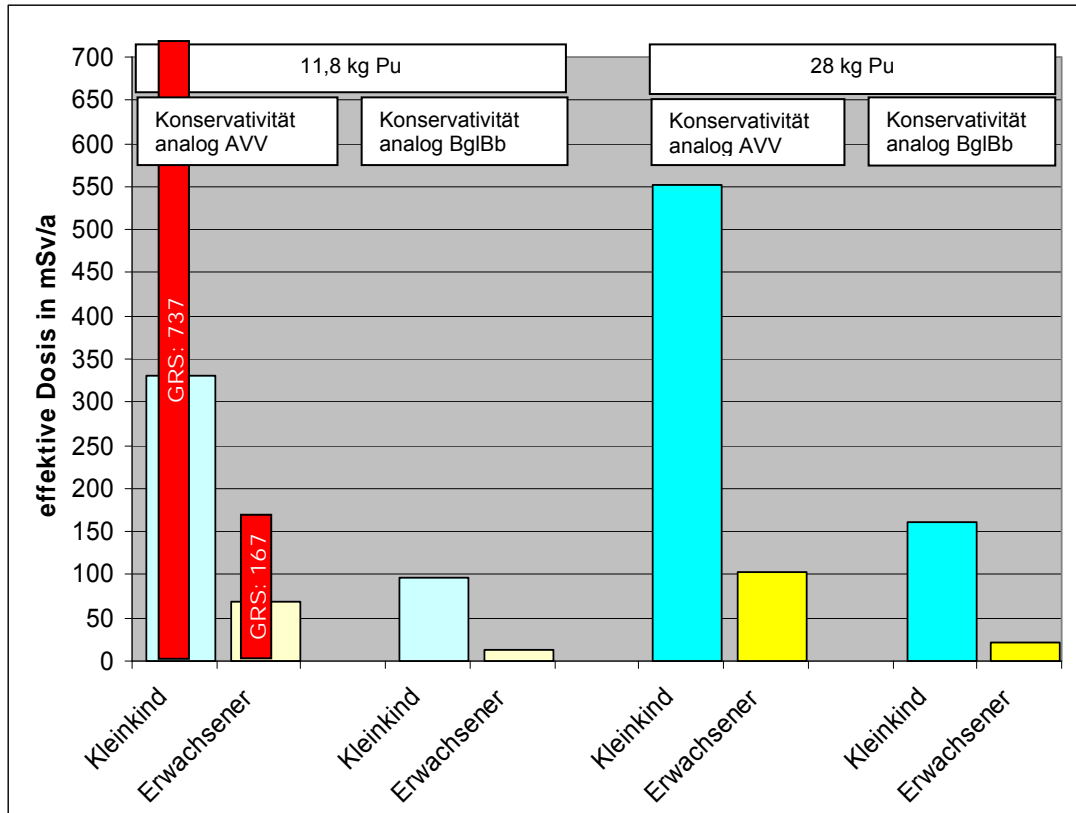


Abbildung 8-1: Effektive Dosis im Szenario I

Abbildung 8-1 zeigt die mit dem neuen radioökologischen Modell ermittelten Strahlenexpositionen im Szenario I im Vergleich. Angegeben sind die Höchstwerte nach Tabelle 4-4, also für den Zeitpunkt 40 Jahre nach Beginn des Absaufens. Die Ergebnisse zeigen:

- Das Plutoniuminventar hat einen hohen Einfluss auf die errechnete Dosis. Es sollte daher nicht mehr mit dem veralteten Inventar nach /GSF 2002/ gearbeitet werden.
- Die ermittelten Strahlenexpositionen sind geringer als in /GRS 2009/, aber immer noch sehr hoch im Vergleich mit Anforderungen, die für geplante Tätigkeiten (0,3 mSv effektive Dosis im Jahr) oder die Sanierung von Hinterlassenschaften des Uranerzbergbaus (1 mSv effektive Dosis im Jahr) gelten. Für Endlager haben die Reaktor-Sicherheitskommission und die Strahlenschutzkommission in /RSK/SSK 2008/ als radiologischen Bewertungsmaßstab für die Langzeitsicherheit von Endlagern für hochradioaktive Abfälle in tiefen geologischen Formationen empfohlen, für das Überprüfungskriterium „Effektive Individualdosis“ 0,1 mSv im Jahr bei wahrscheinlichen Entwicklungen und 1 mSv im Jahr bei weniger wahrscheinlichen Entwicklungen zu Grunde zu legen. Auch bei realistischeren Lebensgewohnheiten analog den Berechnungsgrundlagen Bergbau belaufen sich die effektiven Dosen noch auf bis zu 20 mSv im Jahr für Erwachsene und auf bis zu 160 mSv im Jahr für das Kleinkind im Alter  $\leq 1$  Jahr (für das Pu-Inventar von 28 kg).

- Die Strahlenexposition ergibt sich vor allem über den Konsum von Trinkwasser, den Verzehr von auf mit kontaminiertem Wasser berechneten Anbauflächen erzeugten Nahrungsmitteln sowie über den Verzehr von Fisch aus einem mit kontaminiertem Wasser gespeisten Fischteich. Weniger relevant sind dagegen die Expositionspfade, die sich durch Aufenthalt auf berechneten Flächen ergeben, sowie der Pfad „Viehtränke“ (siehe Abbildungen 8-2 bis 8-5).

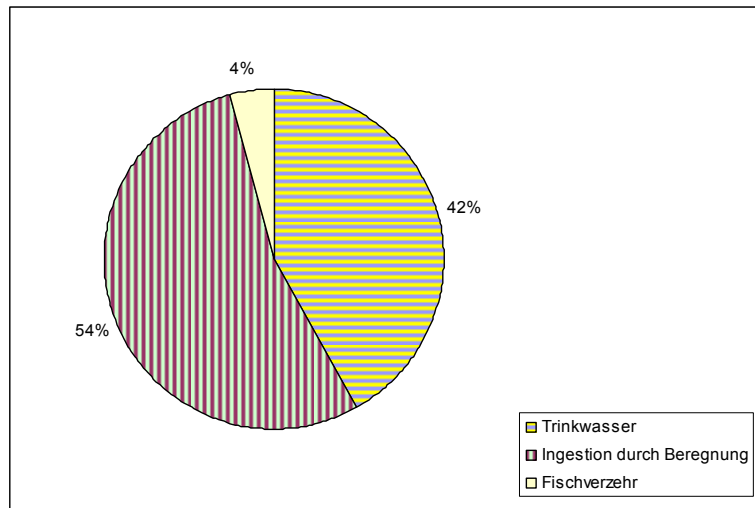


Abbildung 8-2: Beitrag der Expositionspfade zur effektiven Dosis des Kleinkinds im Alter  $\leq 1$  Jahr (Pu-Inventar 28 kg), 40 Jahre nach Beginn des Absaufens und mit Lebensgewohnheiten analog der AVV zu § 47 StrlSchV im Szenario I

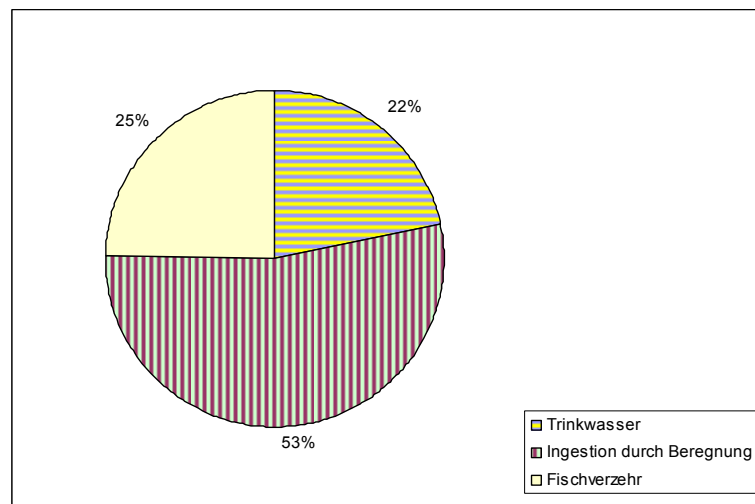


Abbildung 8-3: Beitrag der Expositionspfade zur effektiven Dosis des Erwachsenen (Pu-Inventar 28 kg), 40 Jahre nach Beginn des Absaufens und mit Lebensgewohnheiten analog der AVV zu § 47 StrlSchV im Szenario I

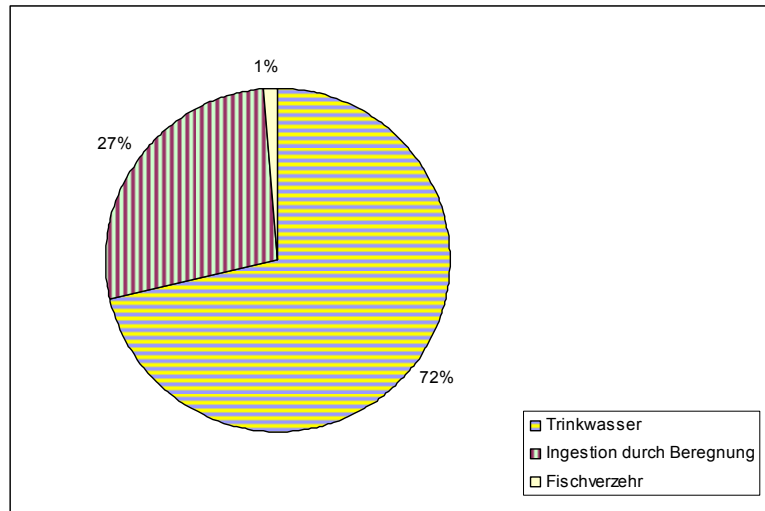


Abbildung 8-4: Beitrag der Expositionspfade zur effektiven Dosis des Kleinkinds im Alter  $\leq 1$  Jahr (Pu-Inventar 28 kg), 40 Jahre nach Beginn des Absaufens und mit Lebensgewohnheiten analog der Berechnungsgrundlagen Bergbau im Szenario I

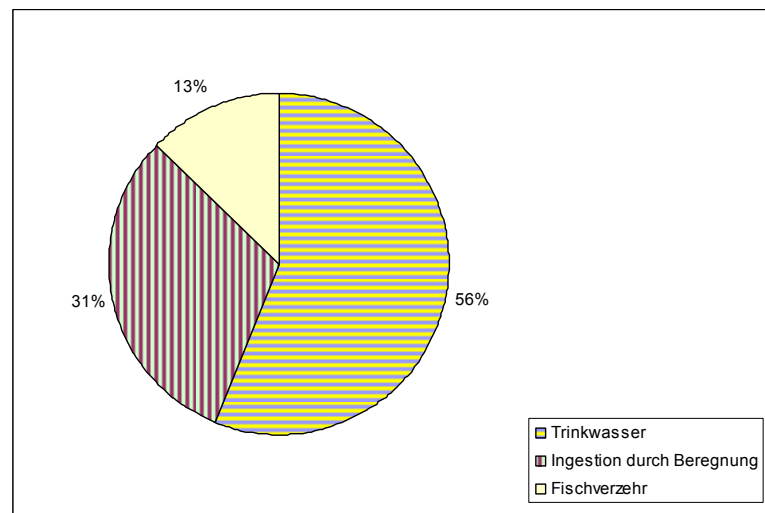


Abbildung 8-5: Beitrag der Expositionspfade zur effektiven Dosis des Erwachsenen (Pu-Inventar 28 kg), 40 Jahre nach Beginn des Absaufens und mit Lebensgewohnheiten analog der Berechnungsgrundlagen Bergbau im Szenario I

Die Dosisermittlung setzt voraus, dass eine lokale Trinkwassergewinnung stattfindet und Wasser als Trinkwasser, als Beregnungswasser, zur Viehtränke und zur Speisung eines Fischteichs Verwendung findet, obwohl die hohe Kontamination durch einfache Überwachungsmaßnahmen festgestellt werden könnte (siehe auch weiter unten).

Landwirtschaftlich genutzte Flächen, die mit kontaminiertem Wasser beregnet werden könnten, sind in der Umgebung der Asse vorhanden. Aus den Ausführungen zu Quellschüttungen in der Umgebung der Asse in Kapitel 7 ergibt sich, dass bei einer Auspressrate von 10.000 m<sup>3</sup> Lösung im Jahr aus der Asse (gemäß /GRS 2009/) das

notwendige Frischwasser zur Vermischung im Verhältnis 1:1100 nicht zur Verfügung steht. Ein Mischungsverhältnis von 1:100 wäre aber möglich. bei einer geringeren Auspressrate kann eine ähnliche Kontamination mit radioaktiven Stoffen des Beregnungswassers resultieren, wie sie den Berechnungen zugrunde liegt. Mit der Beregnungsrate nach /AVV 2005/ und /BglBb 2010/ würde sich – bei alleiniger Nutzung des gewinnbaren Grundwassers zur Beregnung – eine Fläche von etwa 2,3\*2,3 km<sup>2</sup> beregnen lassen. Von dieser Fläche könnten einige 1000 Personen mit Nahrungsmitteln im unterstellten Umfang versorgt werden. Die kollektive Dosis wäre deutlich geringer als bei der Trinkwassernutzung, durch die nach Tabelle 7-3 bis zu mehr als 100.000 Personen betroffen sein könnten. Die Individualrisiken wären dagegen höher und könnten bei extensivem Verzehr kontaminierter Lebensmittel mehr als 10 % über die Lebenszeit betragen. Dies würde aber voraussetzen, dass das Wasser zur Beregnung landwirtschaftlich genutzter Flächen genutzt würde, obwohl die hohe Kontamination durch einfache Überwachungsmaßnahmen festgestellt werden würde (siehe auch weiter unten).

Fischzucht in Teichen, die einen Zulauf haben, der durch die Auspressung von Lösung aus der Asse mit radioaktiven Stoffen kontaminiert werden könnte, konnte nicht identifiziert werden, ist jedoch für die Zukunft nicht auszuschließen. Es ist aber als sehr unwahrscheinlich anzusehen, dass eine ausreichend große Menge an Quellwasser für eine einzelne Fischzucht genutzt wird, da sich das Wasser auf einem größeren Gebiet verteilt.

In Kapitel 6 wurde gezeigt, dass bei geeigneter Überwachung des oberflächennahen Grundwassers sowie des Quellwassers in der Umgebung der Asse schon durch halbjährliche Messungen eine erhebliche Kontamination zuverlässig erkannt würde. Bei entsprechenden Nutzungsbeschränkungen kontaminierten Wassers könnten Strahlenexpositionen von mehr als 0,1 mSv mit Sicherheit vermieden werden. In einem Notfall – wie dem auslegungsüberschreitenden Lösungszutritt in der Asse – müsste auf diese Maßnahme zur Begrenzung der Strahlenexposition gegebenenfalls zurückgegriffen werden. Unabhängig davon sollte aber für die Bewertung der Vorgehensweise bei der geplanten Stilllegung der Asse nicht von zukünftigen Nutzungseinschränkungen des Grundwassers Kredit genommen werden.

## **8.2 Ergebnisse der Untersuchungen zum Szenario II**

Die Annahmen zur Lösung von Radionukliden und zur Ausbreitung von Radionukliden durch das Deckgebirge in /GRS 2009/ und hier entsprechend in Szenario I waren extrem pessimistisch. In der Realität würde nur ein Teil der Radionuklide in Lösung gehen und es käme zu den Transport der Radionuklide verzögernden Effekten im Deckgebirge. Detaillierte Untersuchungen zur Löslichkeit und zum Transport wären für einen Langzeitsicherheitsnachweis zu führen. Im vorliegenden Gutachten sollten nur erste Untersuchungen über mögliche Auswirkungen der Berücksichtigung dieser Effekte auf die ermittelte Strahlenexposition vorgenommen werden.

Nach einem Absaufen der Asse können sich Radionuklide aus den Abfällen nur solange in der Zutrittslösung lösen, bis diese eine Sättigung erreicht hat, die für die

einzelnen Elemente und ihre chemischen Gleichgewichtszustände spezifisch ist. Es wurde daher untersucht, ob für einzelne Radionuklide aus diesem Grund eine Begrenzung der löslichen Menge existiert. Das Ergebnis ist, dass die maximal möglichen Thorium- und Uran-Konzentrationen um einen Faktor 170 (für Thorium) bzw. 195 (für Uran) unter den Konzentrationen liegen, die sich rein rechnerisch aus den Inventaren und Volumina ergeben würden. Die Konzentrationen der anderen Radionuklide sind in dem unterstellten Lösungsvolumen dagegen durch das Inventar und nicht durch die Löslichkeit fester Phasen bestimmt.

Durch die Variierung der Pfade sowie der Abstandsgeschwindigkeiten in Verbindung mit plausiblen Auspressraten und Auspressdauern soll dargestellt werden, in welchem Rahmen sich mögliche Strahlenexpositionen bewegen könnten. Die Ergebnisse stellen aber weder obere noch untere Begrenzungen dar. Insbesondere war hier nicht zu untersuchen, welchen zukünftigen Einflüssen das Deckgebirge ausgesetzt sein kann und wie sich dies auf die Transportvorgänge auswirken würde. Einflüsse auf den Transport der Radionuklide können sich auch durch Schäden am Grubenbauwerk ergeben. Diese Untersuchungen wären im Rahmen eines Langzeitsicherheitsnachweises zu führen. Außerdem ist die Annahme der homogenen Vermischung der Radionuklide nach ihrer Lösung im Grubengebäude nicht notwendigerweise konservativ, da Teilmengen der Lösung höher kontaminiert sein können und so wenig genutzte Grundwasserentnahmen bei Einzelpersonen zu höheren Expositionen führen könnten.

Die hier für fünf Varianten ermittelten Strahlenexpositionen sind in Abbildung 8-6 im Überblick dargestellt. Es wurden jeweils die extrem ungünstigen Lebensgewohnheiten der Referenzpersonen analog der AVV zu § 47 StrlSchV zugrunde gelegt, außerdem der ungünstigste der beiden untersuchten Pfade durch das Deckgebirge. Darüber hinaus wurde unterstellt, dass das gesamte durchströmte Deckgebirge aus der Gesteinsschicht mit den für die radiologischen Folgen ungünstigsten Eigenschaften besteht. Zur Aufteilung der Gesamtdosis auf die einzelnen Expositionspfade siehe Abbildungen 5-9 bis 5-12.

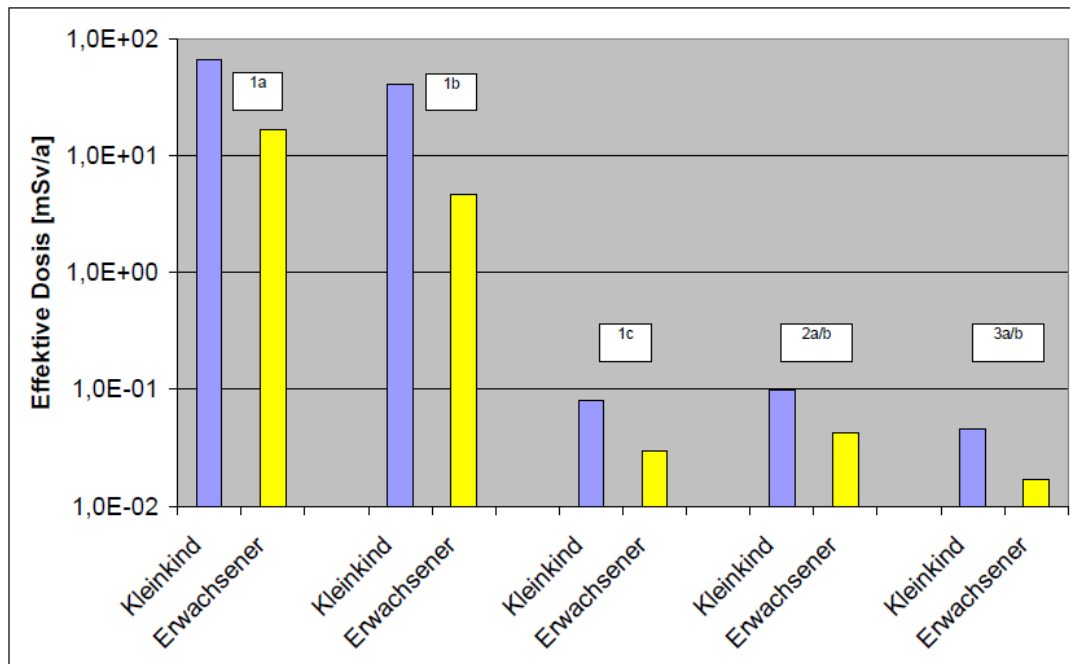


Abbildung 8-6: Strahlenexposition in die Rechenfällen mit zusammen fünf Varianten im Szenario II

Die ermittelten normierten Strahlenexpositionen für das Szenario II betragen:

- Bei hoher Abstandsgeschwindigkeit von 10 m/a (Rechenfall 1)
  - 67,5 mSv im Jahr (Kleinkind im Alter  $\leq 1$  Jahr) bzw. 16,9 mSv im Jahr (Erwachsener), wenn keine Sorption angenommen wird (Variante 1a),
  - 41 mSv im Jahr (Kleinkind im Alter  $\leq 1$  Jahr) bzw. 4,7 mSv im Jahr (Erwachsener), wenn für Plutonium keine Sorption angenommen wird, für alle anderen Elemente aber die Sorptionskoeffizienten aus /INE 2010/ angewendet werden (Variante 1b),
  - 0,08 mSv im Jahr (Kleinkind im Alter  $\leq 1$  Jahr) bzw. 0,03 mSv im Jahr (Erwachsener), wenn für alle Elemente die Sorptionskoeffizienten aus /INE 2010/ angewendet werden (Variante 1c),
- bei einer Abstandsgeschwindigkeit von 1 m/a (Rechenfall 2)
  - 0,098 mSv im Jahr (Kleinkind Alter  $\leq 1$  Jahr) bzw. 0,042 mSv im Jahr (Erwachsener), sowohl wenn für alle Elemente die Sorptionskoeffizienten aus /INE 2010/ angewendet werden als auch wenn für Plutonium die deutlich ungünstigeren Sorptionskoeffizienten des Strontiums zugrunde gelegt werden (Varianten 2a und 2b),

- bei einer Abstandsgeschwindigkeit von 0,3 m/a (Rechenfall 3)
  - 0,046 mSv im Jahr (Kleinkind Alter  $\leq 1$  Jahr) bzw. 0,017 mSv im Jahr (Erwachsener), sowohl wenn für alle Elemente die Sorptionskoeffizienten aus /INE 2010/ angewendet werden als auch wenn für Plutonium die deutlich ungünstigeren Sorptionskoeffizienten des Strontiums zugrunde gelegt werden (Varianten 3a und 3b).

Auf der Basis der hier durchgeführten Berechnungen ist es möglich, dass die von der Reaktor-Sicherheitskommission und der Strahlenschutzkommission in /RSK/SSK 2008/ als radiologischen Bewertungsmaßstab für die Langzeitsicherheit von Endlagern für hochradioaktive Abfälle in tiefen geologischen Formationen empfohlenen effektiven Individualdosen von 0,1 mSv im Jahr bei wahrscheinlichen Entwicklungen und 1 mSv im Jahr bei weniger wahrscheinlichen Entwicklungen nicht einzuhalten sind. Ob es gelingen könnte, zukünftige Dosen im Rahmen des genannten Schutzziels zu halten, hängt im wesentlichen von drei Faktoren ab:

- der tatsächlichen Lösung der Radionuklide (reduzierbar durch weitere technische Maßnahmen im Grubengebäude),
- der Stabilität des Grubengebäudes im Hinblick auf mögliche neue Auflockerungszonen im umgebenden Gestein bei der Konvergenz (reduzierbar durch weitere technische Maßnahmen der Verfüllung im Grubengebäude), sowie
- der zukünftigen Entwicklung des Deckgebirges, beispielsweise durch Erosions- oder Setzungsprozesse, und der zukünftigen Entwicklung hydrologischer Verhältnisse, wie des Grundwasserdargebots.

Es ist daher wichtig, ein Absaufen des Grubengebäudes, bevor ein für ausreichend sicher erachteter Zustand erreicht ist (sei es durch Vollverfüllung oder durch Rückholung der Abfälle), möglichst zu vermeiden. Kommt es dennoch zu einem vorzeitigen Absaufen, so sind technische Maßnahmen zu treffen, um die zukünftigen radiologischen Auswirkungen möglichst weitgehend zu begrenzen. Dies muss im Rahmen der Notfallmaßnahmen erfolgen.

Wie in Kapitel 7.3 ausgeführt, kann sich ausgehend von den ermittelten Strahlenexpositionen ein individuelles Risiko für eine letale Krebserkrankung über die Lebenszeit in der Größenordnung von bis zu  $10^{-4}$  ergeben.

Die Untersuchungen in Kapitel 6 haben ergeben, dass es möglich ist, die künstlichen Radionuklide durch Monitoring von Grund- und Quellwasser zu detektieren, wenn sie in einer Konzentration vorliegen, die zu der vorangehend für das Szenario II genannten Strahlenexpositionen führt. Für Radionuklide, die auch natürlich vorkommen, ist dies dagegen nicht möglich, da diese natürlich vorliegenden Radionuklide bei gleicher Berechnungsmethode zu deutlich höherer Strahlenexposition führen und aufgrund der Schwankungsbreite des natürlichen Vorkommens erst größere Veränderungen der Konzentration als durch die Asse bedingt erkannt werden könnten.

## **9 Diskussion der Berechnungen von Strahlenexpositionen in der früheren Untersuchung der GRS /GRS 2009/**

Die langfristige Freisetzung von Radioaktivität über den Grundwasserpfad kann bei nicht beherrschbaren Lösungszutritten in die Asse oder versagender Standsicherheit des Grubengebäudes der Asse nach derzeitigen Erkenntnissen nicht ausgeschlossen werden. Von der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) war 2009 ein Gutachten vorgelegt worden, in dem radiologische Folgen eines auslegungüberschreitenden Lösungszutritts in der Asse untersucht worden waren /GRS 2009/. Die Modellierung in diesem Gutachten ging davon aus, dass die vollständige Lösung aller Radionuklide des Asse-Inventars erfolgt, diese homogen vermischt werden, nach 30 Jahren mit einer Rate von 10.000 m<sup>3</sup> im Jahr ausgepresst werden und zu einer Kontamination des genutzten Grundwassers führen. Es wurde eine Verdünnung mit unkontaminiertem Wasser im Verhältnis 1:1.100 unterstellt, da das Wasser ansonsten als Trinkwasser nicht geeignet wäre. In /GRS 2009/ wurden für dieses Szenario Strahlenexpositionen bis zu etwa 2.000 mSv im Jahr ermittelt.

Bei der Annahme der vollständigen Lösung der radioaktiven Stoffe wurde in /GRS 2009/ nicht beachtet, dass die Menge an in der Asse enthaltenem Uran und Thorium weit größer ist, als die Menge, die überhaupt im maximalen Lösungsvolumen gelöst werden kann, bevor dieses an Uran und Thorium gesättigt ist. Auf diese Weise wurde die Freisetzung von Uran um etwa einen Faktor 195 und die von Thorium um etwa einen Faktor 170 überschätzt. Beim Transport durch das Deckgebirge treten darüber hinaus rückhaltende und verzögernde Effekte auf. Diese wurden in /GRS 2009/ nicht berücksichtigt.

Die radioökologische Modellierung der Folgen war in /GRS 2009/ fehlerhaft, da sogenannte Dosiskonversionsfaktoren aus /Pröhl 2002/ zur Berechnung der Strahlenexposition aus der Kontamination des Grundwassers herangezogen wurden, die für das Szenario nicht anwendbar sind. Die Verwendung von Dosiskonversionsfaktoren ist im Übrigen nur bei der Berechnung von sehr langfristigen radiologischen Auswirkungen von Endlagern sinnvoll. Dosiskonversionsfaktoren haben zwar den Vorteil, dass sich aus der Konzentration eines Radionuklids in Grundwasser mit einer einzigen Zahl die Folgedosis über alle Pfade ermitteln lässt. Nachteilig ist aber, dass eine anwendungsbezogene Anpassung, beispielsweise an Zeiträume, über die tatsächlich Freisetzungen stattfinden, ausgeschlossen ist. Für alle anderen Anwendungsgebiete als bei Endlagern wird daher auch nicht mit Dosiskonversionsfaktoren gearbeitet, sondern mit Modellen, bei denen der Anwender noch entsprechende Randbedingungen festlegen und spezifische Parameterwerte einfügen muss.

In /GRS 2009/ führte die Verwendung der Dosiskonversionsfaktoren dazu, dass auf der einen Seite ein Eintrag von Radionukliden auf landwirtschaftliche Flächen durch Berechnung über 10.000 Jahre unterstellt wurde. Auf der anderen Seite sind aber im Szenario in /GRS 2009/ nach etwa 220 Jahren alle radioaktiven Stoffe aus der Asse freigesetzt und mit dem Berechnungswasser ausgebracht. Es wurde daher implizit unterstellt, dass sehr viel mehr radioaktive Stoffe auf landwirtschaftlich genutzte



Flächen aufgebracht werden, als in der Asse überhaupt vorhanden sind. Außerdem wurden Strahlenexpositionen für Zeiten zwischen 40 und 130 Jahren angegeben, obwohl implizit eine weit längere Berechnungsdauer angesetzt war.

Die Neuberechnung zum Szenario I ergab darüber hinaus, dass die starke Dominanz des Thoriums für die Strahlenexposition in /GRS 2009/ keine wissenschaftliche Grundlage hat, sondern auf Fehler in Modellannahmen bzw. den Dosiskonversionsfaktoren beruht. Relevanter ist dagegen die Strahlenexposition durch Plutoniumisotope, weshalb es auch erforderlich ist, zukünftigen Berechnungen stets das aktualisierte Plutoniuminventar (28 kg statt der früher – auch in /GRS 2009/ - angenommenen 11,8 kg) zugrunde zu legen.

## Literaturverzeichnis

- Asse 2008 Asse GmbH: Strahlenschutz und Umgebungsüberwachung im Bereich der Schachtanlage Asse, Jahresbericht 2008
- AVV 2005 Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Entwurf der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zu § 47 StrlSchV, Stand 13.05.2005
- Beims 1997 Beims, U.: Materialien zur Altlastenbehandlung Simulation von Grundwasserströmungs- und Schadstofftransportprozessen in Lockergesteinsgrundwasserleitern im Rahmen der Altlastenbehandlung Institut für Forschung und Weiterbildung in der Umwelttechnik Dresden
- BglBb 2010 Bundesamt für Strahlenschutz: Berechnungsgrundlagen zur Ermittlung der Strahlenexposition infolge bergbaubedingter Umweltradioaktivität (Berechnungsgrundlagen - Bergbau), BfS-SW-07/10, Salzgitter, März 2010
- Bonka 2004 Vorlesung Radioökologie, Lehrgebiet Strahlenschutz in der Kerntechnik, RWTH Aachen, Bonka, Hans, Sommersemester 2004, Aachen
- Colenco 2006a Hydrogeologische Modellvorstellungen Bericht 4956/07 Revision 3, Colenco Power Engineering AG Baden, Schweiz, mit GSF Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Forschungsbergwerk Asse, Verfasser: W. Klemenz, J.-M. Lavanchy, Dr. G. Resele, A. Poller, November 2006
- Colenco 2006b Deckgebirgsmodellierung Phase IV, Grundwasserbewegung im Deckgebirge des Standortes Asse, Schlussbericht, Colenco Bericht 3331/71, Colenco Power Engineering AG, Baden, Schweiz, mit GSF Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Forschungsbergwerk Asse, Verfasser: A. Poller, Dr. G. Resele, Dr. J. Poppei, September 2006
- Colenco 2009 AF Colenco AG: Schachtanlage Asse II – Abschätzung der Trinkwasserdosis bei einem unterstellten Absaufen des Grubengebäudes, Memo 1299/04 (VI), 08.05.2009
- DStatis 2008 Statistisches Bundesamt Deutschland: Wasserabgabe an private Haushalte, Stand 2008, Download am 17.03.2009 unter <http://www.destatis.de/jetspeed/portal/cms/Sites/destatis/Internet/DE/Content/Statistiken/Umwelt/UmweltstatistischeErhebungen/Wasserwirtschaft/Tabellen/Content75/Wasserabgabe,templateld=renderPrint.psml>
- FB Asse 2001 FB Asse, R. Wallmüller (2001): Serie von Längs- und Querschnitten durch den Asse-Höhenzug, geologische Sohlenrisse im Gebiet der Schachtanlage Asse II
- FUGRO 2010 Schachtanlage Asse II, Radioökologisches Modell zur Berücksichtigung der gekoppelten Migration von Tochternukliden, FUGRO-HGN GmbH, Verfasser R. Gellermann, Oktober 2010
- GSF 2002 GSF – Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit: Bestimmung des nuklidspezifischen Aktivitätsinventars der Schachtanlage Asse, August 2002
- GRS 2009 GRS Braunschweig, Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Abschätzung potenzieller Strahlenexposition in der Umgebung der Schachtanlage Asse II infolge auslegungsüberschreitender Zutrittsraten der Deckgebirgslösung während der Betriebsphase, GRS – A – 3468, 21.04.2009.
- ICRP 2007 Die Empfehlung der Internationalen Strahlenschutzkommission (ICRP 2007): ICRP-Veröffentlichung 103, Deutsche Ausgabe herausgegeben vom Bundesamt für Strahlenschutz, März 2007

- 
- INE 2010 Zusammenstellung von Daten zur wissenschaftlich belastbaren Abschätzung potentieller Strahlenexpositionen in der Umgebung der Schachtanlage Asse II, Karlsruhe Institute of Technology (KIT), Institut für Nukleare Entsorgung (INE), KIT - Universität des Landes Baden-Württemberg und nationales Großforschungszentrum in der Helmholtz-Gemeinschaft, Verfasser B. Kienzler, M. Altmaier, V. Metz, Ch. Bube, Februar 2010
- LK Wolfenbüttel 2005 Landkreis Wolfenbüttel: Kreisatlas 2005, 2005
- NLWKN 2008 Niedersächsischer Landesbetrieb für Wasserwirtschaft, Küsten- und Naturschutz: Deutsches Gewässerkundliches Jahrbuch, Weser- und Emsgebiet, 2005, Norden 2008
- NLWKN 2009a Niedersächsischer Landesbetrieb für Wasserwirtschaft, Küsten- und Naturschutz: Immissionsüberwachung Forschungsbergwerk Asse, Jahresbericht 2008, 13.03.2009
- NLWKN 2009b Niedersächsischer Landesbetrieb für Wasserwirtschaft, Küsten- und Naturschutz: Hochwasserschutz in Niedersachsen, Hochwasserschutzplan Oker, 11.06.2009
- Öko-Institut 2009 Öko-Institut e. V.: Bewertung der Memo der Colenco AG „Schachtanlage Asse II – Abschätzung der Dosis bei einem unterstellten Absaufen des Grubengebäudes“, 18.12.2009
- Öko-Institut 2010 Öko-Institut e.V.: Neuberechnung zu den Auswirkungen eines auslegungsüberschreitenden Lösungszutritts in der Schachtanlage Asse II, Vorhaben UM09A03205, Darmstadt, 16.06.2010
- Prinz 1991 Prinz, H.; Abriß der Ingenieurgeologie mit Grundlagen der Boden und Felsmechanik, des Erd-, Grund-, und Tunnelbaus sowie der Abfalldeponien, 2., neu erarbeitete und erweiterte Auflage – Stuttgart: Enle, 1991, ISBN 3-432-92332-5
- Pröhl 2002 Pröhl, G., Gering, F.: Dosiskonversionsfaktoren zur Berechnung der Strahlenexposition in der Nachbetriebsphase von Endlagern nach dem Entwurf der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zu § 47 Strahlenschutzverordnung in Anlehnung an die Vorgehensweise im Rahmen des Planfeststellungsverfahrens des geplanten Endlagers Konrad. 15. Dezember 2002.
- RSK/SSK 2008 Reaktor-Sicherheitskommission und Strahlenschutzkommission: Gemeinsame Stellungnahme der RSK und der SSK zum GRS-Bericht „Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung hochradioaktiver Abfälle in tiefen geologischen Formationen“, verabschiedet von der RSK auf ihrer 408. Sitzung am 09.05.2008, verabschiedet von der SSK auf ihrer 224. Sitzung am 03.07.2008
- Schäfer 2002 Schäfer, W.; Wagner, Ch.; Einführung in die Transportmodellierung im Grundwasser, Rausch, R.; ISBN 3-443-01048-2, - Berlin; Stuttgart: Borntraeger, 2002

## **Anhang 1**

Zusammenstellung von Daten zur wissenschaftlich belastbaren  
Abschätzung potentieller Strahlenexpositionen in der Umgebung  
der Schachtanlage Asse II

erstellt vom Institut für Nukleare Entsorgung (INE)  
des Karlsruhe Institute of Technology (KIT)



# **Zusammenstellung von Daten zur wissenschaftlich belastbaren Abschätzung potentieller Strahlenexpositionen in der Umgebung der Schachanlage Asse II**

**Bernhard Kienzler, Marcus Altmaier, Volker Metz, Christiane Bube**

Karlsruhe Institute of Technology (KIT)  
Institut für Nukleare Entsorgung (INE)

KIT - Universität des Landes Baden-Württemberg und  
nationales Großforschungszentrum in der Helmholtz-Gemeinschaft

15. Feb. 2010

Anmerkung:

Dieser Bericht wurde von KIT-INE gemäß Angebot 20003358 vom 14. Januar 2010 im Auftrag des Öko-Instituts e.V., Darmstadt erstellt.

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

## Zusammenfassung

Es werden Daten zur wissenschaftlich belastbaren Abschätzung potentieller Strahlenexpositionen in der Umgebung der Schachtanlage Asse II zusammengestellt. Hierzu werden zunächst die relevanten geochemischen Bedingungen erarbeitet unter der Annahme, dass sich die Zutrittsrate in das Grubengebäude der Schachtanlage Asse II auf auslegungsüberschreitende Werte erhöht. Es wurden gemäß dem Auftrag durch das Öko-Institut Darmstadt vom 21. Januar 2010 die extrem vereinfachten Randbedingungen nach [1] unterstellt. Wie in dieser Arbeit geschehen, wurde das Abfallinventar sowie das gesamte Hohlraumvolumen der Schachtanlage Asse II (2.2 Mio. m<sup>3</sup>) als "Rührkessel" angenommen.

Die Ausarbeitung umfasst Angaben zur Löslichkeit von Actiniden und Technetium unter den geochemischen Bedingungen in den relevanten Oxidationsstufen. Diese umfassen das NaCl System und das MgCl<sub>2</sub>-System. Im NaCl-System betragen die zu erwartenden Lösungskonzentrationen für Th(IV): 10<sup>-6</sup>, U(VI): 10<sup>-6.5</sup>, Np(V): 10<sup>-4.5</sup>, Pu(IV): 10<sup>-8</sup>, Pu(V): 10<sup>-7</sup> und für Am(III): 10<sup>-8</sup> Mol/Liter. Im MgCl<sub>2</sub>-System ergeben sich folgende Konzentrationen Tc(IV): 10<sup>-6</sup>, Th(IV): 10<sup>-6</sup>, U(IV): 10<sup>-6</sup>, Np(IV): 10<sup>-6.5</sup>, Pu(III): 10<sup>-5</sup>, Pu(IV): 10<sup>-7.5</sup> und Am(III): 10<sup>-4.5</sup> Mol/Liter.

Sorptionsdaten der Radionuklide U, Np, Pu, Am, Ra und Tc für die Systeme Zement /Q-Lösung und Steinsalz/Q-Lösung bzw. NaCl-Lösung wurden recherchiert. Die angegebenen Werte gelten für die hochkonzentrierten Lösungen im Grubengebäude der Schachtanlage Asse.

Aus früheren Untersuchungen zur Sorption im Deckgebirge der Schachtanlage Asse [2] liegen Sorptionsdaten für <sup>14</sup>CO<sub>3</sub>, Se, Sr, Tc, Cs, Pb, Ra, Ac, Pa, U, Np, Pu und Am sowie Cm vor.

**Gliederung**

1. Einleitung .....	5
2. Aufgabenstellung .....	6
3. Geochemisches Milieu unter den vereinfachten Randbedingungen der Studie (Basisfall „Gesamtinventar“) .....	7
4. Abschätzung von Radionuklidlöslichkeiten für verschiedene geochemische Bedingungen .....	11
4.1 Allgemeines zu Radionuklidlöslichkeiten .....	11
4.2 Methoden zur Abschätzung von Radionuklidlöslichkeiten .....	12
4.3 Verwendete Einheiten und Größen .....	14
4.4 Betrachtete Szenarien .....	15
4.5 Abschätzung der RN-Löslichkeiten für Entwicklungszustände 1 und 3,(4) .....	18
4.5.1 Americium .....	18
4.5.2 Thorium .....	19
4.5.3 Uran .....	21
4.5.4 Neptunium .....	23
4.5.5 Plutonium .....	24
4.5.6 Technetium .....	28
4.6 Einfluss von Verdünnungseffekten auf die Radionuklidlöslichkeit .....	29
4.7 Zusammenfassende Darstellung der abgeschätzten Radionuklidlöslichkeiten .....	30
5. Rückhalteprozesse im Grubengebäude .....	31
6. Aufbereitung publizierter Sorptionsdaten im Deckgebirge der Schachtanlage Asse II ...	34
7. Zusammenfassung und Fazit.....	37
8. Referenzen.....	39



## Verzeichnis der Tabellen

Tab. I: Kenngrößen für den Basisfall "Gesamtinventar" nach Ref. [1].....	6
Tab. II Zeitlicher Verlauf der Prozesse und damit verbundene geochemische Bedingungen in der Schachanlage Asse II (für die in Studie [1] gestellten Randbedingungen) .....	10
Tab. III: Zusammenstellung wesentlicher Kriterien der Referenzsysteme und der erwarteten dominierenden Actinid-Oxidationsstufen.....	17
Tab. IV: Im Rahmen dieser Studie abgeschätzte Radionuklidlöslichkeiten. ....	30
Tab. V Hydratisierte Zement Masse in der Schachanlage Asse II (nach [24]):.....	33
Tab. VI Sorptionskoeffizienten (Rs) im System Zement/Q-Lösung nach ca. 9 Monaten .....	33
Tab. VII Sorptionskoeffizient (Rs) im System Steinsalz (ERAM)/Q- bzw. NaCl-Lösung .....	33
Tab. VIII Charakteristika der bei den Sorptionsstudien verwendeten Grundwässer .....	35
Tab. IX Mittlere Sorptionskoeffizienten im Deckgebirge der Schachanlage Asse nach Ref. [74].....	36

## Verzeichnis der Abbildungen

Abb. 1: Löslichkeitskurve von $\text{Nd}(\text{OH})_3(\text{am})$ und $\text{Cm}(\text{III})$ [40].....	18
Abb. 2: Löslichkeitsuntersuchung mit $\text{Nd}(\text{OH})_3(\text{am})$ in carbonatfreier 3.5 M $\text{MgCl}_2$ Lösung [33].....	19
Abb. 3: Löslichkeit von Thoriumhydroxid $\text{ThO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{am})$ in alkalischen Salzlösungen [44].	20
Abb. 4: Löslichkeit von $\text{ThO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{am})$ in NaCl und $\text{NaClO}_4$ Lösung [44].....	21
Abb. 5: Löslichkeit von U(VI) in alkalischer 5 M NaCl Lösung [50]. ....	22
Abb. 6: Löslichkeit von $\text{NpO}_2\text{OH}(\text{am})$ , $\text{AmO}_2\text{OH}(\text{am})$ und $\text{NpO}_2\text{OH}(\text{aged})$ in carbonatfreier 5 M NaCl/NaOH Lösung [32]. ....	23
Abb. 7: Löslichkeit von $\text{PuO}_{2+x}(\text{s,hyd})$ in 0.1 M NaCl [54].....	25
Abb. 8: Löslichkeit von $\text{PuO}_2(\text{am})$ in carbonatfreier 3.5 M $\text{MgCl}_2$ Lösung unter stark reduzierenden Bedingungen [57]. ....	26
Abb. 9: Zeitliche Abhängigkeit der Löslichkeit von Plutonium in 3.5 M $\text{MgCl}_2$ Lösung bei An- und Abwesenheit von Carbonat [33].....	27
Abb. 10 Americium Konzentration als Funktion des Am-Inventars in einem Zement - Q Lösungs-System.....	32
Abb. 11 Geologischer Schnitt durch den Asse Sattel im Bereich der Schachanlage Asse II (Schnitt A-B) .....	35

## 1. Einleitung

Im April 2009 legte die Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit [1] mbH, Braunschweig ihrem Auftraggeber, dem Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) einen Bericht über die "Abschätzung potentieller Strahlenexpositionen in der Umgebung der Schachanlage Asse II infolge auslegungsüberschreitender Zutrittsraten der Deckgebirgslösung während der Betriebsphase" vor. Dieser Bericht wurde über die Homepage des BfS publiziert [1]. In dieser Studie sollte mit Hilfe einfacher, möglichst konservativer Abschätzungen untersucht werden, welche radiologischen Auswirkungen zu erwarten sind, wenn sich die Zutrittsrate in das Grubengebäude der Schachanlage Asse II auf auslegungsüberschreitende Werte ( $\geq 200 \text{ m}^3 \text{ d}^{-1}$ ) erhöht. Die zu erwartenden Auswirkungen sollten nicht mit detaillierten Modellrechnungen, sondern mit Hilfe von Abschätzungen und verbalen Argumenten bewertet werden. Es wurde nur die Ausbreitung von Radionukliden in der Lösung betrachtet. Die Umlösung von anstehenden Gesteinen durch die zutretende Deckgebirgslösung wurde in die Betrachtungen einbezogen. Die Untersuchung sollte die zurzeit vorgesehenen bautechnischen Maßnahmen, wie die Verfüllung der Resthohlräume in den Firstspalten berücksichtigen. Die Autoren machten die Einschränkung, dass die Ergebnisse keine Prognose der tatsächlich zu erwartenden Strahlenexpositionen erlauben, da die zugrunde gelegten Annahmen zu grob seien. Es sei zudem ungewiss, ob es sich bei den zugrunde gelegten Annahmen für Einzelprozesse jeweils um ungünstige oder eher günstige Annahmen bezüglich der Ausbreitung der Radionuklide im Gesamtsystem handelt. Die in [1] verwendeten Kenngrößen sind in der Tab. I angegeben.

Die Abschätzungen potenzieller Strahlenexpositionen in der Umgebung der Schachanlage Asse II infolge auslegungsüberschreitender Zutrittsraten der Deckgebirgslösung während der Betriebsphase [1] basiert auf dem Kenntnisstand zum Porenvolumen in der Schachanlage Asse II, zur Auflösung von Carnallit, den Radionuklidinventaren, und den Lösungszutritten in das Grubengebäude. Es wurden Szenarien zum möglichen Ablauf des Lösungszutritts in das Grubengebäude definiert. Es wird unterstellt, dass das Radionuklidinventar der eingelagerten radioaktiven Abfällen vollständig im Porenvolumen gelöst und die kontaminierte Lösung in das Deckgebirge, bzw. die Biosphäre freigesetzt wird. Es werden zunächst drei Basisfälle betrachtet, in denen lediglich das Inventar der radioaktiven Stoffe variiert wird. Eine Berücksichtigung der endlichen Löslichkeit einiger dosisrelevanter Radionuklide und Radionuklidrückhaltung durch Sorptionsprozesse wird nicht unterstellt.

Die vorliegende Studie zielt nicht darauf ab realistische Szenarien zu entwickeln, sondern soll auf der Basis der in [1] genannten Vorgaben Daten zur Löslichkeit und Sorption von Radionukliden zusammenzustellen.

**Tab. I: Kenngrößen für den Basisfall "Gesamtinventar" nach Ref. [1]**

Parameter	Status	Wert
Inventar	LAW und MAW	Gesamtinventar
Mobilisierungsdauer der Abfälle	instantan in Lösung	0 a
initiales Porenvolumen	ungünstige Annahme: Verfüllung Resthohlräume mit Sorelbeton	$1.3 \cdot 10^6 \text{ m}^3$
Porenvolumen nach Carnallitumlösung	Umlösung bis IP19	$2.2 \cdot 10^6 \text{ m}^3$
Radionuklidkonzentrationen in der Grube	homogen	-
Dauer des Lösungszutritts	durchschnittlich $200 \text{ m}^3/\text{d}$	30 a
Austrittsort	desintegrierter Bereich der Steinsalzbarriere	500 m Teufe
Schachtverschluss	dicht (nicht betrachtet)	-
Resthohlraumverfüllung im Nahbereich	ungünstige Annahme: vollständig mit Sorelbeton	-
Firstspaltverfüllung	ist erfolgt	-
Versatzinjektionen	keine	-
Biosphäre: Verdünnungsfaktor	Trinkwasserqualität	1100

## 2. Aufgabenstellung

Im Januar 2010 beauftragte das Öko-Institut e.V. das KIT-INE, die bei KIT-INE und in der zugänglichen Literatur vorhandenen Daten zu recherchieren und aufzubereiten, um eine wissenschaftlich belastbaren Abschätzung der potentiellen Strahlenexpositionen in der Umgebung der Schachanlage Asse II zu ermöglichen. Es sollte insbesondere der Einfluss der Löslichkeiten auf die mobilisierbaren Radionuklidkonzentrationen quantifiziert und die im Grubengebäude und außerhalb stattfindende Sorption bewertet werden. Basis für diese Bewertung sind die in der Tab. I angegebenen Kenngrößen. Bezüglich der Radionuklid-Löslichkeiten werden die langlebigen Actiniden und Technetium in ihren relevanten Wertigkeitsstufen betrachtet. Hinsichtlich der Rückhaltung durch Sorption werden alle verfügbaren Daten berücksichtigt.

Es wurde vereinbart, in einem ersten Schritt die vereinfachenden Randbedingungen, wie sie in Ref. [1] gewählt worden waren, beizubehalten und das Abfallinventar sowie das gesamte Hohlraumvolumen der Schachanlage Asse II ( $2.2 \text{ Mio. m}^3$ ) als "Rührkessel" anzusetzen.

### 3. Geochemisches Milieu unter den vereinfachten Randbedingungen der Studie (Basisfall „Gesamtinventar“)

Ausgehend von einer möglichen Erhöhung der Zutrittsrate der Deckgebirgslösungen wird in Studie [1] unterstellt, dass entweder gesättigte oder untersättigte NaCl-Lösungen in das Grubengebäude fließen. Zunächst wird sich die Lösung an den großen verfügbaren Steinsalz-/Salzversatzflächen in der Südwestflanke des Grubengebäudes mit NaCl aufsättigen. In [1] werden keine Aussagen über das Verhalten der Lösung und der Abfallprodukte gemacht. Es wird lediglich angenommen, dass sich die NaCl-Lösung durch Auflösen von Carnallit in eine MgCl<sub>2</sub>-reiche Salzlösung („R-Lösung“) umwandelt und dabei das freie Porenvolumen in der Schachanlage von 1.3 Mio m<sup>3</sup> auf 2.2 Mio m<sup>3</sup> vergrößert. In Studie [1] wird angenommen, dass die Radionuklide sich homogen in dem finalen Porenvolumen verteilen („Rührkessel-Modell“). Es liegt auf der Hand, dass die Annahme einer instantanen und vollständigen Durchmischung der Lösungen im gesamten komplexen Grubengebäude der Schachanlage Asse eine starke Vereinfachung darstellt. Belastbarere Ergebnisse können erzielt werden, wenn die ablaufenden Prozesse für die einzelnen Einlagerungskammern analysiert und bewertet werden. In der jetzigen Studie werden orientierende Abschätzungen zum Ausmaß der Radionuklidfreisetzung auf Grundlage des stark vereinfachenden Modells aus [1] gemacht, da zum einen die Ergebnisse leichter mit den Annahmen und Abschätzungen aus [1] verglichen werden können und zum anderen detaillierte Analysen für die Verhältnisse in den einzelnen Einlagerungskammern einen erheblich höheren Aufwand verursachen würden.

Unter Verwendung der in Studie [1] gestellten Randbedingungen bzw. Annahmen können Abschätzungen zu den geochemischen Prozessen vorgenommen werden, die die Radionuklidfreisetzung bzw. –rückhaltung im Bereich der Einlagerungskammern betreffen. Diese Abschätzungen beruhen auf Erkenntnissen aus

- (a) Experimenten zum Verhalten von Zement in konzentrierten Salzlösungen (z.B. [3-5];
- (b) Experimenten im Gebindemaßstab zur Korrosion zementierter Abfallsimulate in konzentrierten Salzlösungen ([6-9]),
- (c) Experimenten zur Radionuklidsorption an Zementkorrosionsprodukten in konzentrierten Salzlösungen [10-13]
- (d) Experimenten zur Metallkorrosion in konzentrierten Salzlösungen [14-16],
- (e) weiteren Literaturstudien,
- (f) geochemischen Modellrechnungen zur Umsetzung von Asse-spezifischen Abfallprodukten in konzentrierten Salzlösungen unter den in Studie [1] gestellten Randbedingungen.

Nach dem Zutritt von Salzlösung in eine Einlagerungskammer wird diese mit den in den Kammern vorhandenen Abfallprodukten, Versatzstoffen sowie anstehenden Salzen reagieren. Infolge der chemischen Auslaugungs- und Auflösungsprozesse werden Radionuklide – begrenzt durch Löslichkeits- und Sorptionsphänomene - in Lösung gehen. Durch Konvergenz und andere Triebkräfte kommt es zu einer Auspressung von kontaminierten Lösungen aus den Einlagerungskammern. In Tab. II wird eine orientierende Darstellung des zeitlichen Verlauf derjenigen geochemischen Prozesse gegeben, die die Radionuklidfreisetzung bzw. –rückhaltung in den Einlagerungskammern wesentlich beeinflussen. Die in der vorliegenden Studie gemachten Aussagen zu den geochemischen Prozessen sollen einen Überblick bieten und keine detaillierte Beschreibung aller relevanten geochemischen Prozesse. Dement-

sprechend wird auch nicht analysiert, inwieweit sich Ungewissheiten (z.B. Unsicherheiten im Datenbestand) bezüglich der geochemischen Prozesse auf die Radionuklidfreisetzung bzw. –rückhaltung auswirken können.

Das geochemische Milieu in den Einlagerungskammern (bzw. in dem „Rührkessel-Modell“) wird durch die Zusammensetzungen und Mengenverhältnisse der festen, flüssigen und gasförmigen Kammerinhaltsstoffe definiert. Wichtige Parameter des geochemischen Milieus sind neben dem pH-Wert das Redoxpotential, die Konzentrationen der Hauptlösungskomponenten (Magnesium, Calcium, Natrium, Kalium, Chlorid und Sulfat), die Konzentration an gelöstem anorganischen Kohlenstoff sowie der Festphasenbestand. Während der Festphasenbestand bei der Sorption der Radionuklide von Bedeutung ist, sind die Löslichkeiten der Radionuklide ausschließlich von der Lösungszusammensetzung (Gehalte der Hauptlösungskomponenten und Spurenkomponenten, wie Carbonatspezies und Komplexbildner) abhängig.

Neben der Stoffmenge an Salzlösung, die in eine Einlagerungskammer eindringen wird, sind für die Entwicklung der geochemischen Prozesse folgende Stoffinventare an Makrokomponenten von Bedeutung:

- Zementstein (das Inventar der Actiniden Am, Pu und U befindet sich überwiegend in zementhaltigen Abfallmatrices, d.h.in 200 Liter Fässer und selbstabschirmenden Betonbehältern VBA [17]);
- Eisen;
- organische Abfallkomponenten, die zu (an)organischen Kohlenstoffverbindungen (bspw. Isosaccharinsäure oder  $\text{CO}_3^{2-}$ ) umgesetzt werden können;
- Salze (Versatz und anstehendes Gestein);
- Nitrat.

In der Studie [1] wurde für den Basisfall „Gesamtinventar“ angenommen, dass noch vorhandene Resthohlräume mit geeignetem Material, wie z.B. Sorelbeton, verfüllt sind und sich dieser Verfüllstoff „inert verhält“<sup>a</sup>. Eine Reihe experimenteller und theoretischer Studien zeigen, dass Sorelbeton und andere Sorelphasen-haltige Verfüllstoffe geeignet sind, das geochemische Milieu in einem günstigen Bereich (mit schwach alkalischem pH und niedrigen  $\text{CO}_3^{2-}$ -Konzentrationen in Lösung zu puffern) und zur Sorption von Actiniden dienen [12, 18-23].

Die in die Einlagerungskammern eindringende Salzlösung ist innerhalb einer vergleichsweise kurzen Zeit gesättigt bezüglich der anstehenden und im Versatz vorkommenden Salze. Gemäß Studie [1] ist zunächst eine gesättigte NaCl-Lösung zu betrachten (Entwicklungszustand 1 in Tab. II), die sich infolge der Reaktion mit anstehendem Carnallit zu einer R-Lösung entwickelt (Entwicklungszustände 2 bis 4 in Tab. II). Zu Veränderungen der Lösungszusammensetzung kommt es, wenn die Salzlösung in die mehr oder weniger beschädigten Abfallgebände eindringt und beginnt, ausgehend von Kontaktstellen und Rissen, die Abfallmatrix zu korrodieren. Bereits durch die Reaktion geringer Anteile der zementierten Abfallprodukten mit gesättigter NaCl-Lösung wird die Lösung stark alkalisch. Durch eine Carnallit-Aufsättigung der Lösung steigt deren  $\text{MgCl}_2$ -Gehalt und deren pH-Wert nimmt ab. Bei einer Umsetzung des gesamten Inventars an Zementstein in den in Tab. I definierten Lösungsvolumen resultiert ein schwach alkalischer pH-Wert. Der pH-Wert und weitere geochemische Eigenschaften werden in der folgenden Tabelle (Tab. II) für verschiedene Entwicklungszustände der Schachanlage Asse nach dem Lösungszutritt angegeben. Diese

---

<sup>a</sup> Im Basisfall „MAW“ wurde allerdings „eine chemisch wirksame Verfüllung mit Sorelbeton“ der MAW-Kammer unterstellt.

Angaben beruhen auf geochemischen Modellrechnungen in einem quasi geschlossenen System, wie sie in mehreren Studien durchgeführt und beschrieben wurden (z.B. [24]).

Vor und während des Zutritts der Salzlösung in die Einlagerungskammern steht die Lösung im Kontakt mit dem in der Grubenluft vorhandenen Sauerstoff. Es ist also davon auszugehen, dass die zutretende Salzlösung O<sub>2</sub>-gesättigt ist und in der ersten Zeit nach dem Lösungszutritt ein oxidierendes Redoxpotential vorherrscht (Entwicklungszustand 1). Bei Kontakt mit O<sub>2</sub>-gesättigter Lösung kommt es zu aerober Korrosion des Stahls der Abfallbehälter ausgehend von Lackbeschädigungen bzw. Unterwanderung des Lackes. Durch die Korrosion wird Sauerstoff verbraucht. Nach der Reduktion des Sauerstoffs in der Salzlösung stellt sich ein anaerobes bis redox-neutrales Milieu ein (Entwicklungszustand 2). Die Fe-Korrosion setzt sich unter anaeroben Bedingungen mit einer deutlich geringeren Rate fort und führt zu reduzierenden Bedingungen (Entwicklungszustand 3 und 4).

Die zeitliche Entwicklung der Konzentration von Carbonat in Lösung ist von Einlagerungskammer zu Einlagerungskammer unterschiedlich, da die Mengen an eingelagerten organischer Abfallkomponenten stark variieren. In der vorliegenden Studie wird CO<sub>3</sub><sup>2-</sup> in Lösung gemäß den Randbedingungen der Studie [1] betrachtet. Die Konzentration von Carbonat in Lösung wird zunächst durch den CO<sub>2</sub>-Gehalt in der Grubenluft bestimmt (Entwicklungszustand 1) und durch Calcit ausfällung stark begrenzt. Nach Durchlaufen eines intermediären Entwicklungszustands 2 wird in einem Zeitraum von wenigen Jahren bis Jahrzehnten die Konzentration von Carbonat in der Lösung bei anderen pH-Werten und geochemischen Randbedingungen durch die Bildung metastabiler Mg-Ca-Carbonatfestphasen begrenzt (Entwicklungszustand 3).

Durch eine etwaige mikrobielle Zersetzung organischer Abfallkomponenten ist die Produktion gewisser Mengen an organischen Zwischenprodukten (bspw. Isosaccharinsäure) und anorganischen Kohlenstoffverbindungen (bspw. CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>) zu erwarten. Neben den organischen Abfallkomponenten sind in den Abfällen in großem Umfang Nährstoffe für Mikroorganismen enthalten, wie beispielsweise Nitrate. Gemäß den Randbedingungen der Studie [1] übersteigt aber das Zementinventar bei Weitem das Inventar an (an)organischem Kohlenstoff, so dass die Konzentration von Carbonat in Lösung langfristig durch die Bildung stabiler Mg-Ca-Carbonatfestphasen begrenzt wird (Entwicklungszustand 4).

Für die Mobilisierung bzw. Rückhaltung der Radionuklide sind neben den o.g. Makrokomponenten auch Kammerinhaltsstoffe von Bedeutung, die in vergleichsweise geringen Konzentrationen auftreten. Hierzu zählen komplexierende Stoffgruppen wie beispielsweise Acetate, Oxalate, Tartrate und EDTA. Nach Referenz [25] belaufen sich die eingelagerten Mengen auf 46.4 kg EDTA und etwa 40.5 Tonnen andere Komplexbildner. Die Gesamtmenge dieser Komplexbildner beläuft sich auf  $1.4 \times 10^5$  mol, d.h. die maximale Konzentration in den Lösungen nach Tab. I berechnet sich zu  $6 \times 10^{-5}$  mol l<sup>-1</sup>. Die Auswirkungen dieser geringen Konzentration sind in den Kap. 5 und 6 bewertet.

Tab. II Zeitlicher Verlauf der Prozesse und damit verbundene geochemische Bedingungen in der Schachtanlage Asse II (für die in Studie [1] gestellten Randbedingungen)

	Entwicklungs- zustand 1	Entwicklungs- zustand 2	Entwicklungs- zustand 3	Entwicklungs- zustand 4
<b>dominierende Randbedingungen</b>	Flutung der Abfallkammern	Carnallit-Aufsättigung	nach Carnallit-Aufsättigung	langfristige Bedingungen
<b>Zeitraum</b>	etwa 1 Jahr bei einer Zutrittsrate von $200 \text{ m}^3 \text{ d}^{-1}$	wenige Jahre	wenige Jahre bis Jahrzehnte	nach wenigen Jahrzehnten beginnend: Jahrhunderte / Jahrtausende
<b>Lösungstyp</b>	gesättigte NaCl-Lösung	ansteigender $\text{MgCl}_2$ -Gehalt	konzentrierte $\text{MgCl}_2$ -Lösung (R-Lösung)	konzentrierte $\text{MgCl}_2$ -Lösung (R-Lösung)
<b>Dichte (kg L<sup>-1</sup>)</b>	1.2	$1.2 \leq \rho \leq 1.3$	$\approx 1.3$	$\approx 1.3$
<b>Reaktionen mit Abfallgebinden</b>	Kontakt mit Zement (zement. Gebinde, VBA, Salzbeton); Korrosion von Abfallbehältern	Kontakt mit Zement (zement. Gebinde, VBA, Salzbeton); Korrosion metall. Abfälle	Alteration zementhaltiger Gebinde: VBA beginnend, Fässer vollständ. Korrosion metall. Abfälle	Alteration zementhaltiger Gebinde: VBA und Fässer vollständig; Korrosion metall. Abfälle; Degradation organischer Abfälle (z.B. Isosaccarinsäure Bildung)
<b>"pH"-Wert (-log(m<sub>H+</sub>))</b>	$\approx 12.8$ <sup>(f)</sup> nach Kontakt mit zementhaltigen Gebinden	$8.7 \leq \text{pH} \leq 12.8$ <sup>(f)</sup>	schwachalkalisch $\approx 8.7$ <sup>(f)</sup>	schwachalkalisch $\approx 8.7$ <sup>(f)</sup>
<b>Redoxbedingungen</b>	oxidierend	anaerob bis redox-neutral	reduzierend (Eisenkorrosion)	reduzierend (Eisenkorrosion)
<b>Carbonat in Lösung</b>	begrenzt durch Luft- $\text{CO}_2$ ( $\text{pCO}_2 \sim 10^{-3.5}$ ) Calcit ausfällung	intermediärer $\text{CO}_3^{2-}$ -Gehalt ( $\text{pCO}_2 < 10^{-3.5}$ )	begrenzt durch metastabile Carbonate	abnehmender $\text{CO}_3^{2-}$ -Gehalt durch Bildung stabiler Carbonate
<b>RN-Freisetzung aus unfixierten Abfallprodukten</b>	instantan	instantan	instantan	instantan
<b>RN-Freisetzung aus fixierten Abfallprodukten</b>	diffusionskontrolliert aus Fässern; keine aus intakten VBA <sup>(a)(b)</sup>	zunehmende Freisetzungsrates durch Oberflächenvergrößerung; keine aus intakten VBA <sup>(a)(b)</sup>	instantan aus Fässern; diffusionskontrolliert aus VBA	instantan

(a) – (f) siehe Seite 7

## 4. Abschätzung von Radionuklidlöslichkeiten für verschiedene geochemische Bedingungen

### 4.1 Allgemeines zu Radionuklidlöslichkeiten

Die Löslichkeit von Actiniden und langlebigen Spaltprodukten ist während der letzten Jahrzehnte international in zahlreichen Arbeiten untersucht worden. Hierbei wurde zum einen darauf abgezielt, experimentell gut abgesicherte Löslichkeitsdaten unter anderem als Basis von Quelltermabschätzungen zu Verfügung zu stellen, andererseits wurden hierauf basierend thermodynamische Daten als Grundlage für geochemische Modellrechnungen abgeleitet. Aussagen zu Actinidlöslichkeiten basieren somit auf einer im Allgemeinen sehr guten Datenbasis.

Nicht alle Stoffe sind in wässriger Lösung beliebig stark löslich. Löslichkeitsgrenzen sind relevant. Die Löslichkeit einer Substanz in Lösung stellt einen spezifischen Stoffparameter dar und wird im Allgemeinen durch drei Faktoren bestimmt:

- Löslichkeitsbestimmende Festphasen (Löslichkeitsprodukte,  $\log K^{\circ}_{sp}$ )
- Komplexierungsreaktionen (Komplexbildungskonstanten,  $\log \beta^{\circ}$ )
- Ion-Ion Wechselwirkungsprozesse (Aktivitätskoeffizienten  $\gamma$ )

Die im Experiment gemessene Löslichkeit lässt sich als Summation dieser Einflussgrößen auffassen. Eine thermodynamische Parametrisierung erfordert die Systematisierung bzw. Separation dieser Effekte und ist entsprechend anspruchsvoll. Im Rahmen der OECD-NEA sind in verschiedenen Publikationen unter anderem die thermodynamischen Daten für Am, Th, U, Np und Pu zusammengestellt und evaluiert worden [26-31]. Diese Daten wurden im Wesentlichen zur Beschreibung niedrig-salinarer Systeme abgeleitet und eignen sich nicht zur Modellierung von Actinidlöslichkeiten in hochsalinaren Lösungen. Generell ist die Modellierung in hochsalinaren Lösungen dadurch erschwert, dass hier die Ion-Ion Wechselwirkungsprozesse eine nicht zu vernachlässigende Bedeutung haben. Eine adäquate Beschreibung dieser Systeme erfordert deshalb das Vorhandensein belastbarer und vollständig parametrisierter Modellparameter z.B. im Rahmen des Pitzer Modells [32]. Dieses ist nicht für alle relevanten Systeme durchgehend gegeben. Zum Beispiel gibt es keine Pitzerparameter für Actinidcarbonatkomplexe in  $MgCl_2$  Lösungen. Als Konsequenz hieraus steht die Feststellung, dass für verschiedene geochemische Systeme eine Modellierung der Radionuklidlöslichkeiten aufgrund von unvollständigen thermodynamischen Datenbasen nicht zielführend ist. Sie wird auch im Rahmen dieser Studie nicht für die Abschätzung von Radionuklidlöslichkeiten herangezogen. Konzentrationen werden vielmehr durch den Vergleich der zu bewertenden Systeme mit experimentell hinreichend gut untersuchten analogen Referenzsystemen abgeschätzt

Im Rahmen früherer Arbeiten des KIT-INE (damals FZK-INE) im Rahmen der Stilllegung des Forschungsbergwerks Asse II wurden verschiedene experimentelle Studien durchgeführt, die im Rahmen dieser Bewertung herangezogen werden. Es wird einerseits auf den Abschlussbericht zum Projekt „Experimentelles Programm zur Bestätigung der Ergebnisse von standortspezifischen Modellrechnungen für die Schachanlage Asse, Teil 3: Löslichkeitsexperimente zur Absicherung der thermodynamischen Datenbasis“ [33] Bezug genommen, andererseits der derzeit noch in Bearbeitung befindliche Abschlussbericht zum Projekt „Studie zur Abschätzung der standortspezifischen Pu- und Am-Löslichkeiten - Experimentelle Arbeiten



zur Absicherung der Modellrechnungen und Maximalkonzentrationen für Plutonium und Americium [34]. Darüber hinaus werden Daten aus Publikationen des KIT-INE und anderer Institutionen in offenen, internationalen Fachjournalen betrachtet.

Die im Rahmen dieser Studie abgeschätzten Radionuklidlöslichkeiten stellen die Radionuklidkonzentrationen in Lösung dar, die in einem Szenario unter Abwesenheit jeglicher Sorptionseffekte zu erwarten sind. Es ist jedoch bekannt, dass im realen System an verschiedenen Materialien des Nahfeldes und auch im Deckgebirge Sorptionsprozesse stattfinden werden. Diese werden in Kapitel 5 weiter ausgeführt. Sorptionsprozesse führen prinzipiell zu einer Entfernung aquatischer Spezies aus dem wässrigen Milieu. Eine Betrachtung von reinen Radionuklidlöslichkeiten muss somit als Grenzfall maximal erreichbarer Konzentrationen charakterisiert werden.

## **4.2 Methoden zur Abschätzung von Radionuklidlöslichkeiten**

Die Radionuklidlöslichkeit wird im Rahmen dieser Studie für zwei verschiedene geochemische Milieus (siehe Kap. 4.3) abgeschätzt, die sich aus den in Tab. II genannten Entwicklungszuständen ableiten. Das geochemische Milieu beeinflusst das Löslichkeitsverhalten von Radionukliden entscheidend, da die unten ausgeführten Abhängigkeiten der Actinidlöslichkeit von Hauptparametern des geochemischen Milieus existieren. Damit die in Kapitel 4.6 zusammengefassten Radionuklidkonzentrationen transparent und das angewendete Vorgehen systematisch nachvollziehbar ist, werden die wesentlichen Kriterien und Strategien nachfolgend skizziert und die jeweiligen Einzelfälle in Kapitel 4.5 diskutiert.

Zur Abschätzung der Radionuklidlöslichkeiten werden folgende allgemeine Kriterien herangezogen:

**Unterteilung der real vorliegenden Mischlösungen entsprechend dem dominierenden Kation in reine NaCl bzw. MgCl<sub>2</sub> Systeme.** Die Charakteristika der Hauptkomponenten (Kationen und Anionen) des geochemischen Milieus beeinflussen das Löslichkeitsverhalten von Actiniden in Lösung. Gerade für Na- und Mg-Systeme sind aufgrund der unterschiedlichen Ladung von Na<sup>+</sup> und Mg<sup>2+</sup> bzw. der Tendenz der Mg-Systeme die Carbonatkomplexierung einzugrenzen, Unterscheidungen unerlässlich. Die zur Beurteilung der Ion-Ion-Wechselwirkungseffekten unbedingt notwendige Ionenstärke wird primär durch die Hauptkomponenten definiert.

**Beurteilung des Einflusses des „pH“-Wertes (besser: molale H<sup>+</sup>-Konzentration).** Das Löslichkeitsverhalten und die Speziation von Actiniden sind über große Bereiche sehr stark vom pH-Wert der Lösung abhängig. Dementsprechend können sich ggf. schon relativ geringe Änderungen im pH-Wert der Lösung stark auf die Actinidkonzentration in Lösung auswirken. Eine möglichst genaue Eingrenzung des zu betrachteten pH Bereichs ist erforderlich.

**Beurteilung des Redoxmilieus bzw. der dominanten Actinidoxidationsstufen.** Die Löslichkeit und Speziation von Actiniden ist stark von der Oxidationsstufe derselben abhängig. Diese korrelieren mit dem vorliegenden geochemischen Milieu. Eine Unterteilung in reduzierende, redox-neutrale und oxidierende geochemische Randbedingungen ist somit zwingend notwendig.

**Identifizierung löslichkeitsbestimmender Actinidfestphasen.** Actiniden können in Abhängigkeit der geochemischen Randbedingungen in verschiedenen Festphasen vorliegen.

Da diese sich im Löslichkeitsverhalten stark unterscheiden können, ist eine Einschätzung der unter den gegebenen Bedingungen löslichkeitsbestimmenden Festphasen erforderlich. In diesem Kontext sind ebenfalls kolloidale Spezies tetravalenter Actiniden zu betrachten, die einen starken Beitrag zur Gesamtkonzentration eines Elements in Lösung liefern können.

**Bewertung der Löslichkeitserhöhung durch komplexierende Liganden (Carbonat).** Im aquatischen System sind prinzipiell Hydrolysereaktionen und die Ausbildung von Actinidhydroxidkomplexen zu erwarten. Darüber hinaus können jedoch unterschiedliche Liganden mit Actiniden wechselwirken und deren Löslichkeit stark erhöhen. Als zentral relevanter Ligand ist die Konzentration des freien Carbonats in Lösung einzuschätzen und nachfolgend eine Löslichkeitserhöhung durch Carbonatkomplexierung zu bewerten. Im Rahmen der hier vorgestellten Studie werden keine weiteren Liganden betrachtet.

**Einschätzung des Effektes der Ionenstärke auf Löslichkeit.** Durch Ion-Ion-Wechselwirkungsprozesse wird die Löslichkeit teilweise stark erhöht. Es wurden gerade bei starken Wechselwirkungen, z.B. dem Vorliegen höher geladener Actinidspezies in hochsalinaren Systemen, bei gleichem pH-Wert mit steigender Ionenstärke Löslichkeitserhöhungen von mehreren Größenordnungen gefunden. Keinesfalls dürfen Untersuchungen für geringe Ionenstärken, wie sie in der Literatur größtenteils dokumentiert sind oder relativ leicht durch Modellrechnungen basierend auf vereinfachenden Modellen für Aktivitätskoeffizienten zugänglich sind, auf hochsalinare Bedingungen übertragen werden.

Das hier skizzierte Vorgehen liefert eine Reduktion des komplexen realen Systems auf ein Modellsystem für welches belastbare Aussagen begründet möglich sind und anhand dessen eine erste Einschätzung von Radionuklidlöslichkeiten erfolgen kann. Es stellt keineswegs eine umfassende Analyse sämtlicher bekannter Effekte im realen System dar.

Im einfachsten Fall kann für ein bestimmtes Szenarium die Radionuklidlöslichkeit aus vorhandenen Experimenten direkt abgeleitet oder zumindest belastbar interpoliert werden. Aufgrund spezifischer experimenteller Schwierigkeiten oder wegen des Mangels an geeigneten experimentellen und analytischen Methoden ist eine Reihe von Systemen jedoch nicht experimentell zugänglich. In solchen Fällen ist es notwendig, auf geeignete Analoga zurückzugreifen. Aus Gründen der einfacheren Handhabung werden z.B. oftmals die nicht-radioaktiven Lanthaniden Nd(III) und Eu(III) als Analoga für Am(III) untersucht. Im Falle der penta- und hexavalenten Actiniden sind die aquatische Chemie und die Gleichgewichtskonstanten von Np(V) bzw. U(VI) im Allgemeinen sehr gut bekannt und experimentell abgesichert, wohingegen zuverlässige Untersuchungen mit Pu(V) und Am(V) oder Pu(VI) sehr selten sind. Die Bestimmung der Löslichkeit und Speziation für Actiniden in (wie in den zuletzt genannten Beispielen) instabilen Oxidationsstufen ist wegen der Überlagerung von Redoxreaktionen außerordentlich schwierig. In solchen Fällen ist es vorzuziehen, abgesicherte Daten von Oxidationsstufenanaloga als Abschätzung zu benutzen.

Die meisten chemischen Eigenschaften der Actinidenelemente in den Oxidationsstufen An(III, IV, V oder VI), mit Ausnahme des Redox-Verhaltens, weisen ausgeprägte Ähnlichkeiten und Analogien auf [35, 36]. Die systematischen Trends im Verhalten korrelieren oft mit der effektiven Ladung und dem Ionenradius. Dieses wohlbekannte chemische Prinzip der Oxidationsstufenanalogien und systematischer Trends in der Actinidenreihe kann man dazu heranziehen, die nachfolgenden drei Einflussgrößen zu beurteilen oder abzuschätzen.

### **(1) Löslichkeitsbestimmende isostrukturelle Festphasen (Löslichkeitsprodukte)**

Actiniden (und ebenso Lanthaniden) in derselben Oxidationsstufe und ähnlicher Größe bilden Oxide, Hydroxide und Carbonatfestphasen mit analogen Stöchiometrien und Kristallstrukturen. Dies gilt für alle Oxidationsstufen von An(III) bis An(VI). Kleine Unterschiede in den Ionenradien der Metallionen können jedoch signifikante Unterschiede in den Gitterenergien und somit auch in den Löslichkeitskonstanten bewirken so dass eine direkte quantitative Analogie nicht gegeben ist. Anhand systematischer Trends kann jedoch eine Interpolation dieser Größen erfolgen.

### **(2) Lösungsspezies und Komplexe (Komplexbildungskonstanten)**

Die Hydrolyse- und Komplexbildungskonstanten von Metallionen mit vergleichbarer Elektronenkonfiguration korrelieren mit der Stärke der elektrostatischen Wechselwirkungsenergie  ${}^{\text{el}}E_{\text{M-L}}$  zwischen dem Metallion und den negativ geladenen Liganden [35-38]. Die systematische Abnahme der stufenweisen Komplexbildungskonstanten lässt sich mit Hilfe eines relativ einfachen elektrostatischen Ansatzes [39] beschreiben. Diese systematischen Zusammenhänge bieten die Möglichkeit zur Beurteilung experimentell unsicherer Daten für intermediäre Spezies oder zur sinnvollen Abschätzung unbekannter Reaktionen und deren Gleichgewichtskonstanten.

### **(3) Aktivitätskoeffizienten (Ion-Ion Wechselwirkungsparameter)**

Der Aktivitätskoeffizient aquatischer Spezies wird durch die Wechselwirkungen mit den anderen Ionen in der Lösung sowie mit den Lösungsmittelmolekülen ( $\text{H}_2\text{O}$ ) bestimmt. Für Aquoionen oder Komplexe mit gleicher Ladung und Symmetrie haben kleine Unterschiede im Ionenradius üblicherweise sehr geringfügige oder vernachlässigbare Auswirkungen auf den Aktivitätskoeffizienten [26]. Demzufolge können die Ion-Ion Wechselwirkungseffekte (bzw. entsprechende Wechselwirkungskoeffizienten im Rahmen des SIT- oder Pitzer-Modells) für die Aquoionen und die analogen Komplexe von mehreren Actiniden einander gleichgesetzt werden.

Im Rahmen dieser Studie werden die angegebenen Actinidkonzentrationen direkt aus Löslichkeitsexperimenten in realen aquatischen Systemen abgeleitet. Diese Vorgehensweise hat den Vorteil, dass eine systematische Unterschätzung der Löslichkeit, wie sie in Modellrechnungen basierend auf thermodynamischen Daten für ideal kristalline Festphasen zu beobachten ist, nicht auftritt. Andererseits ist prinzipiell nicht auszuschließen, dass in den Löslichkeitsexperimenten, auf Grund von kinetischen Effekten, die Löslichkeit von metastabilen Festphasen gemessen und somit systematisch zu hohe Werte gefunden werden. Ebenfalls wird im Rahmen dieser Betrachtungen die Möglichkeit der Mischkristallbildung („solid solutions“), die gleichfalls zu einer thermodynamischen Stabilisierung der Festphasen und somit zu einer Löslichkeitserniedrigung führen kann, nicht belastet.

## **4.3 Verwendete Einheiten und Größen**

Actinidlöslichkeiten und die hieraus abgeleiteten Gleichgewichtskonstanten sind in der Literatur teilweise auf der molaren Konzentrationsskala ( $c_i = \text{mol l} / \text{Liter Lösung}$ ), teilweise auf der molalen Konzentrationsskala ( $m_i = \text{mol i} / \text{kg H}_2\text{O}$ ) angegeben. Die im Rahmen dieser Studie abgeleiteten Radionuklidkonzentrationen werden auf der molaren Konzentrationsskala angegeben. Es handelt sich hierbei selbstredend um eine elementspezifische und nicht isotopenspezifische Größe. Liegen für ein Radionuklid verschiedene Isotope mit unterschiedlichen Halbwertszeiten vor, ist die angegebene Gesamtkonzentration dieses Elements ent-

sprechend der isotopischen Zusammensetzung aufzuteilen. Anhand der Konzentrationen eines bestimmten Isotops in Lösung ist die Aktivität dieses Nuklids in Lösung zu berechnen.

Da die Säure/Base-Eigenschaften eines wässrigen Systems die Löslichkeit entscheidend beeinflussen, wird eine eindeutige und thermodynamisch befriedigende Definition notwendig. Eine genauere Betrachtung der Größe „pH“ in salinaren Systemen ist somit sinnvoll. Für eine detaillierte Darstellung und Diskussion dieser Problematik siehe [33].

Der pH-Wert ist definiert als der negative dekadische Logarithmus der  $H^+$  Aktivität:

$$pH = -\log a_{H^+} = -\log m_{H^+} - \log \gamma_{H^+}$$

Während in verdünnten Lösungen ( $I < 0.1$ ) diese Definition eindeutig und nach Kalibration von pH-Elektroden mit Standard pH-Puffern auch direkt messbar ist, treten in salinaren Lösungen verschiedene Probleme auf. Erstens ist hier der Term  $\gamma_{H^+}$  in obiger Gleichung, der absolute (reale) Einzelionen-Aktivitätskoeffizient des  $H^+$ -Ions, nicht mehr zugänglich. Darüber hinaus treten bei Verwendung von Kombinationselektroden am Diaphragma Diffusionspotentiale auf, die das gemessene Potential systematisch beeinflussen. Als Konsequenz sind direkt in Salzlösungen gemessene „pH“ Werte rein operative experimentelle Werte (bezeichnet durch  $pH_{exp}$ ), die keine direkte thermodynamische Relevanz haben.

Im Gegensatz hierzu sind die in Lösung vorliegenden  $H^+$ -Konzentrationen sowohl auf der molaren (Mol  $H^+$  pro Liter) als auch der molalen Konzentrationskala (Mol  $H^+$  pro kg  $H_2O$ ) eindeutig definiert. Experimentell sind diese aus den experimentell primär bestimmten operativen  $pH_{exp}$  Werten und einem für die jeweiligen Matrixsysteme empirisch bestimmten Faktor „A“ bestimmbar, wobei wiederum molare und molale Skalen differenziert werden müssen.

$$-\log M_{H^+} = pH_{exp} + A_M \quad (\text{molare Skala})$$

$$-\log m_{H^+} = pH_{exp} + A_m \quad (\text{molale Skala})$$

Durch geochemische Modellierung wird zumeist die molale  $H^+$  Konzentration zugänglich sein. Diese kann in Aktivitäten umgerechnet werden indem eine Konvention hinsichtlich der Aktivitätskoeffizienten definiert wird, z.B. entsprechend der in EQ3/6 implementierten Konvention. Es resultiert ein konventioneller pH-Wert, in diesem Beispiel:

$$pH_{(EQ3/6)} = -\log m_{H^+} - \log \gamma_{H^+}^{(EQ3/6)}$$

Im Rahmen dieser Studie wird ausschließlich auf molale  $H^+$  Konzentrationen ( $-\log [H^+]$ ) Bezug genommen. Im Text wird jedoch aus Gründen der einfacheren Lesbarkeit hiervon abweichend weiter pauschal von „pH“ Werten gesprochen.

#### **4.4 Betrachtete Szenarien**

In Kapitel 4 wurde für das in dieser Studie zu unterstellende „Rührkesselmodell“ die erwartete zeitliche Entwicklung des geochemischen Milieus abgeleitet. In Tab. II werden hierbei vier verschiedene Entwicklungsstufen differenziert und mit den jeweils ablaufenden geochemischen Prozessen korreliert.

Für das vorherrschende geochemische Milieu sind hinsichtlich der Relevanz für die in Kapitel 4.5 abgeleiteten Radionuklidkonzentrationen drei deutlich unterschiedliche Phasen zu charakterisieren.

**Entwicklungszustand 1)** Vorliegen primärer geochemischer Bedingungen durch Zutritt einer gesättigten NaCl Lösung. Durch den Kontakt mit Zement werden stark alkalische Bedingungen eingestellt wobei das Redoxmilieu oxidierend bleibt. In Lösung kann  $\text{CO}_2(\text{g})$  aus der Luft aufgenommen werden, welches jedoch durch Ausfällung von  $\text{CaCO}_3(\text{s})$  so stark begrenzt wird, dass eine relevante Carbonatkomplexierung von Actiniden nicht betrachtet werden muss.

**Entwicklungszustand 2)** Im Zeitrahmen von 1-5 Jahren werden sich kontinuierlich modifizierende geochemische Bedingungen einstellen. Die Magnesiumkonzentration wird stark ansteigen und der pH-Wert durch Ausfällung von Mg-hydroxidphasen auf  $-\log [\text{H}^+] = 8.7$  ansteigen. Parallel hierzu werden primär aufgrund der Stahlkorrosion reduzierende Bedingungen eingestellt.

**Phase 3, 4)** Hinsichtlich des geochemischen Milieus unterscheiden sich die Entwicklungszustände 3 und 4 nur unwesentlich. Beide stellen eindeutig Magnesiumchlorid-dominierte, carbonathaltige Systeme dar in denen die Carbonatkonzentration in Lösung durch Magnesiumhydroxochlorocarbonat Festphasen kontrolliert wird. In Phase 4 wird zusätzlich eine chemische Degradation der Organik unterstellt, die zur Bildung von organischen Substanzen wie Isosaccharinsäure führen könnte. Da im Rahmen dieser Studie ein Einfluss von Organik nicht bewertet wird, können die mit Phasen 3 und 4 beschriebenen Bedingungen zusammengefasst werden. Eine Carbonatkomplexierung von Actiniden kann hier nicht vernachlässigt werden.

In dieser orientierenden Studie werden Radionuklidkonzentrationen für die Entwicklungszustand 1 und die Entwicklungszustände 3,4 abgeleitet. Eine detaillierte Analyse des intermediären Entwicklungszustands 2 erfolgt nicht. Bezüglich der Radionuklidlöslichkeiten im Entwicklungszustand 2 ist unwahrscheinlich, dass hier geochemische Bedingungen auftreten können, die zu Radionuklidlöslichkeiten deutlich oberhalb denen in den vorhergehenden bzw. nachfolgenden Entwicklungszuständen führen.

Da in dieser Studie durchgehend das „Rührkesselmodell“ zugrunde gelegt werden soll, werden keine  $\text{CaCl}_2$  dominierten Systeme berücksichtigt. Angesichts der unterstellten Lösungsmengen und der unterstellten vollständigen Equilibrierung des Gesamtsystems ist das Zementinventar deutlich zu niedrig um ein Umkippen des geochemischen Milieus in  $\text{CaCl}_2$  reiche Lösungen zu ermöglichen. Bei einer Betrachtung auf Kammerebene wo in einigen Kammern ein wesentlich höheres Verhältnis von Zement zu  $\text{MgCl}_2$  dominierter Lösung auftreten kann, sind diese Prozesse jedoch bekannt. Die Tatsache, dass in dieser Studie keine  $\text{CaCl}_2$  dominierten Systeme untersucht werden, ist somit als Resultat aus dem zu unterstellenden „Rührkesselmodell“ anzusehen.

Es ist bekannt, dass in konzentrierten Salzlösungen prinzipiell radiolytische Prozesse auftreten können. Zum Beispiel haben Rai et al. [40] in  $\text{PuO}_2(\text{am})$  Löslichkeitsexperimenten einen deutlichen Anstieg der Pu Löslichkeit mit radiolytisch erzeugten stark oxidierenden Bedingungen korreliert. Hierzu ist anzumerken, dass angesichts der vergleichsweise sehr niedrigen Radionuklidinventare in der Asse und dem Vorhandensein eines enormen Überschusses an Eisen bzw. Stahl, sämtliche Szenarien basierend auf Radiolyse oder „Strahleneffekten“ als gänzlich irrelevant zu kennzeichnen sind. Im Gegensatz zu einem Endlager für hochaktive Abfälle, in dem Radiolyseprozesse im Nahfeld sicherlich auftreten werden, wird das geochemische Redox-Milieu in der Asse und hiermit korreliert das Verhalten der Radio-

nuklide, definitiv einzig durch die vorhandenen nicht-radioaktiven Hauptkomponenten bestimmt.

Entsprechend der Ausführungen in Kapitel 4.2 werden die Radionuklidkonzentrationen über den Vergleich mit gut untersuchten Referenzsystemen abgeleitet. Die für diese Studie wesentlichen Charakteristika sind in der Tab. III zusammengefasst. Da sich die Actinidoxidationsstufen bei oxidierenden und reduzierenden geochemischen Bedingungen stark ändern können, erfolgt zusätzlich eine Bezeichnung der relevanten Oxidationsstufen.

In der weiteren Diskussion wird aus Gründen der besseren Lesbarkeit die in Kapitel 4.4 beschriebene Entwicklungszustand 1 als „NaCl-System“ beschrieben, die Entwicklungszustände 3,(4) als „MgCl<sub>2</sub>-System“.

**Tab. III: Zusammenstellung wesentlicher Kriterien der Referenzsysteme und der erwarteten dominierenden Actinid-Oxidationsstufen**

	<b>Entwicklungszustand 1 „NaCl System“</b>	<b>Entwicklungszustand 3,(4) „MgCl<sub>2</sub> System“</b>
<b>Referenzsystem</b>	5.6 m NaCl	> 4.0 m MgCl <sub>2</sub>
Carbonat	carbonatfrei	Carbonat vorhanden
pH Bedingungen	- log [H <sup>+</sup> ] = 12.8	- log [H <sup>+</sup> ] = 8.7
Redoxbedingungen	Oxidierend	Reduzierend
<b>Actinid-Oxidationsstufe</b>		
Americium	Am(III)	Am(III)
Thorium	Th(IV)	Th(IV)
Uran	U(VI)	U(IV)
Neptunium	Np(V)	Np(IV)
Plutonium	Pu(IV), Pu(V)	Pu (III), Pu(IV)
Technetium	Tc(VII)	Tc(IV)

## 4.5 Abschätzung der RN-Löslichkeiten für Entwicklungszustände 1 und 3,(4)

Die Abschätzung der Radionuklidlöslichkeiten wird nach Elementen geordnet dargestellt. Hierbei werden zuerst diejenigen Elemente (Americium, Thorium) bearbeitet, die als gut etablierte Analoga für die drei- und vierwertigen Actiniden verwendet werden.

### 4.5.1 Americium

Americium tritt in endlagerrelevanten wässrigen Systemen generell in der dreiwertigen Oxidationsstufe auf. Das Vorliegen fünfwertiger Americiumspezies ist lediglich in extrem oxidierenden Modellsystemen beobachtet worden und für die Bedingungen dieser Studie irrelevant. Eine Zusammenstellung diverser Arbeiten zu Americium und eine detaillierte Diskussion der vorgeschlagenen thermodynamischen Konstanten ist in [27] gegeben.

Thermodynamische Daten und Löslichkeitsuntersuchungen zu Americium basieren zu einem Teil auf Experimenten mit diesem Element selbst. Aufgrund der schwierigen Handhabung größerer Mengen dieses vergleichsweise stark radioaktiven Materials und den nicht optimalen spektroskopischen Eigenschaften sind jedoch oftmals Analogien verwendet worden. Anhand von spektroskopischen Untersuchungen mit dem „perfekten“ Analogon Cm(III) oder aus Löslichkeitsuntersuchungen mit dem inaktiven Analogon Nd(III) konnte eine sehr gute Datenbasis aufgebaut werden. Eine thermodynamische Beschreibung der Löslichkeit von Am in carbonathaltigen  $MgCl_2$  Lösungen ist jedoch nicht erfolgt.

#### NaCl System (Entwicklungszustand 1)

Das NaCl System wird über die in Abb. 1 dargestellte Arbeit [41] eingeschätzt. Unter hochalkalischen Bedingungen liegt die Löslichkeit für das Analogon Neodym bei  $10^{-8}$  M. Dieser Wert wird durch parallele Untersuchungen mit Cm(III) gestützt. Untersuchungen der Löslichkeit von amorphem  $Am(OH)_3(am)$  von [42] und [43] bei niedrigen Ionenstärken liegen bei  $[Am] < 10^{-10}$  M, Arbeiten von Runde [44] in 5 M NaCl bei  $10^{-9}$  M.

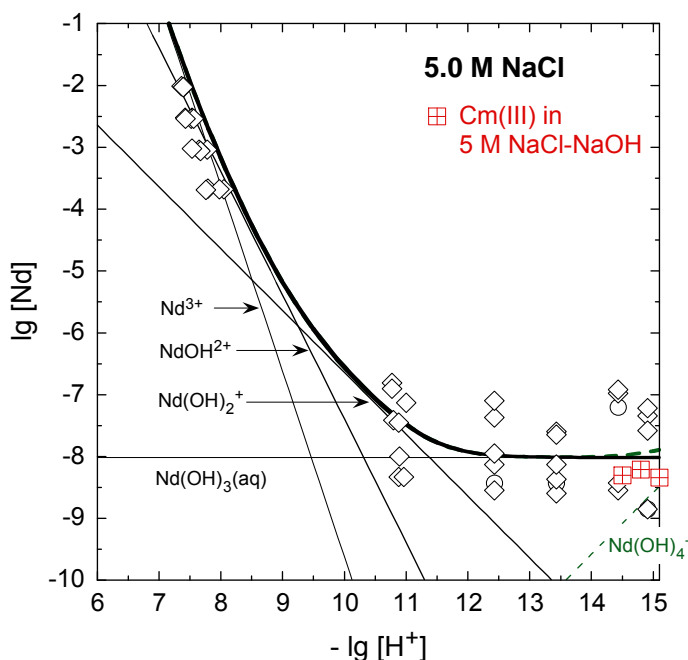


Abb. 1: Löslichkeitskurve von  $Nd(OH)_3(am)$  und  $Cm(III)$  [41].

Die Americiumkonzentration im „NaCl System“ (Entwicklungszustand 1) wird auf  $10^{-8}$  M abgeschätzt.

### **MgCl<sub>2</sub> System (Entwicklungszustand 3,4)**

Für das Verhalten von Americium im MgCl<sub>2</sub> System wird wiederum auf die Arbeiten von Neck et al [41] verwiesen. Diese stellt eine umfassende Beschreibung des carbonatfreien Systems dar. In **Abb. 2** werden die Untersuchungen in 3.5 M MgCl<sub>2</sub> Lösung dargestellt, die Neodymlöslichkeit bei pH 8.7 liegt bei  $10^{-4.5}$  M. Der Einfluss von Carbonat auf die Löslichkeit dreiwertiger Actiniden in MgCl<sub>2</sub> Lösung ist erstmals im Rahmen des Projekts [34] untersucht worden. Hierbei wurde im carbonathaltigen System kein Anstieg der Löslichkeit oberhalb der Konzentrationen im carbonatfreien Systems gefunden, vielmehr wurden bei  $-\log [H^+] \sim 8.4$  etwa eine Größenordnung niedrigere Werte als in dem analogen carbonatfreien System bei gleichem pH gemessen. Dieses Verhalten ist mit einer nicht näher charakterisierten Bodenkörpertransformation begründet. Da unklar ist, wie diese Löslichkeit im Carbonatsystem zu erklären ist und von pH 8.4 auf 8.7 extrapoliert werden kann, wird von diesen Untersuchungen kein Kredit genommen.

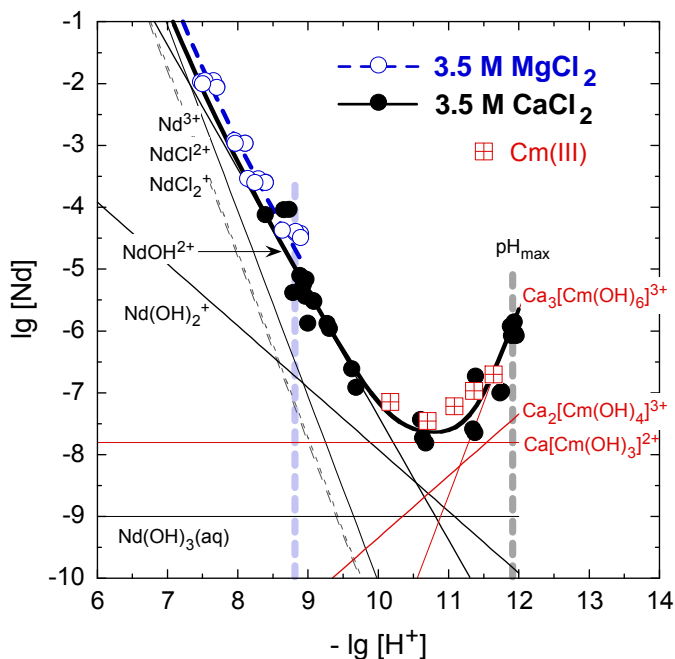


Abb. 2: Löslichkeitsuntersuchung mit Nd(OH)<sub>3</sub>(am) in carbonatfreier 3.5 M MgCl<sub>2</sub> Lösung [34]

Die Americiumlöslichkeit im MgCl<sub>2</sub> System (Entwicklungszustand 3,(4)) wird zu  $10^{-4.5}$  M abgeschätzt.

### **4.5.2 Thorium**

Thorium liegt in wässriger Lösung generell in der vierwertigen Oxidationsstufe vor. Als gut etabliertes Analogon für andere vierwertige Actinide ist es am KIT-INE über viele Jahre hinweg eingehend untersucht worden. Thorium(IV) ist sicherlich das bei weitem am besten untersuchte Actinid in einer vierwertigen Oxidationsstufe. Eine aktuelle Publikation der OECD-



NEA gibt eine umfassende Zusammenstellung des Kenntnisstandes zu thermodynamischen Daten und Löslichkeit von Thorium [31].

### **NaCl System (Entwicklungszustand 1)**

Die Thoriumkonzentration im NaCl System ist aus Arbeiten des KIT-INE [45] direkt ableitbar. Wie in Abb. 3 gezeigt, liegt die Löslichkeit von amorphem Thoriumhydroxid  $\text{ThO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{am})$  in alkalischen NaCl Lösungen nach Entfernung kolloidaler Spezies auf einem Konzentrationsniveau von  $10^{-8}$  M. Ohne Phasenseparation ist die Thoriumkonzentration in Lösung durch kolloidale bzw. polymere Th(IV)-Spezies deutlich auf ein Konzentrationsniveau um  $10^{-6}$  M erhöht. Diese wird als relevant angesehen und zur Abschätzung der Thoriumlöslichkeit belastet. Arbeiten von Nabivanets et al. [46] bei niedriger Ionenstärke (siehe Abb. 4) bestätigen diesen Befund.

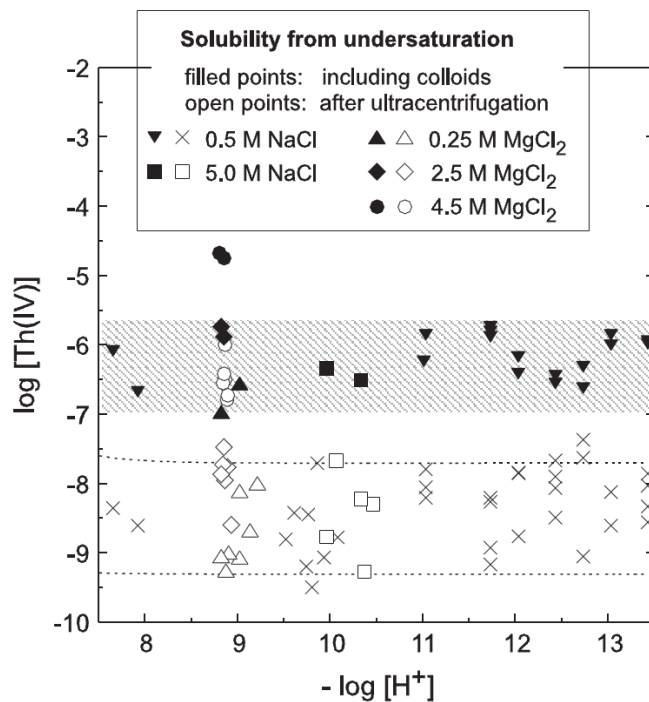


Abb. 3: Löslichkeit von Thoriumhydroxid  $\text{ThO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{am})$  in alkalischen Salzlösungen [45].

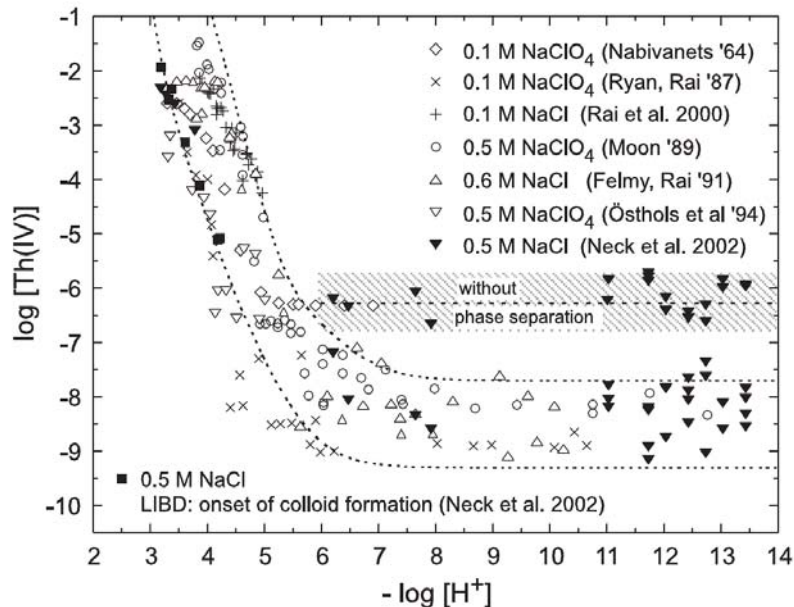


Abb. 4: Löslichkeit von  $\text{ThO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{am})$  in NaCl und  $\text{NaClO}_4$  Lösung [45].

**Die Thoriumlöslichkeit im NaCl System (Entwicklungszustand 1) wird auf  $10^{-6}$  M abgeschätzt.**

#### ***MgCl<sub>2</sub> System (Entwicklungszustand 3,4)***

In Abb. 3 sind die Löslichkeiten von  $\text{ThO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{am})$  in konzentrierten  $\text{MgCl}_2$  Lösungen abgebildet. Wie in [45] und detailliert in [33] dargestellt, wird analog zu den Betrachtungen für das NaCl System von dem Vorliegen kolloidalen Th(IV)-Spezies im Konzentrationsbereich von  $10^{-6}$  M ausgegangen. Die in 4.5 M Lösung gemessenen ausgesprochen hohen Konzentrationen um  $10^{-4.5}$  M (siehe Abb. 3) werden nicht belastet, da hier eindeutig von experimentellen Artefakten ausgegangen werden muss. Untersuchungen zur Carbonatkomplexierung von Thorium [47, 48] haben gezeigt, dass eine Löslichkeitserhöhung über das Konzentrationsniveau der Th(IV)-Kolloide ( $10^{-6}$  M) hinaus, angesichts der niedrigen Carbonatkonzentrationen, auch bei Unterstellung großer Ionenstärkeeffekte nicht zu erwarten ist.

**Die Thoriumkonzentration im  $\text{MgCl}_2$  System (Entwicklungszustand 3,(4)) wird auf  $10^{-6}$  M abgeschätzt.**

### **4.5.3 Uran**

Uran liegt unter oxidierenden oder redox-neutralen Bedingungen als sechswertiges Uranyl-kation  $\text{UO}_2^{2+}$  vor. Unter reduzierenden Bedingungen ist die vierwertige Oxidationsstufe bevorzugt. Die verschiedenen Arbeiten zu Löslichkeit und Thermodynamik von Uran sind im Rahmen von Projekten der OECD-NEA zusammengestellt und bewertet worden [27, 49].

#### ***NaCl System (Entwicklungszustand 1)***

Im NaCl System ist ausschließlich die Löslichkeit von sechswertigen Uranverbindungen zu betrachten, vierwertige Uranverbindungen sind irrelevant. Im Rahmen von Projektarbeiten für FB Asse [33] wurden erste orientierende Löslichkeitsexperimente des KIT-INE zur Löslichkeit von Uran(VI) in alkalischen NaCl Lösungen vorgestellt. Diese wurden im Rahmen von F&E

Arbeiten des KIT-INE anschließend stark erweitert und auf verschiedenen Konferenzen vorgestellt [50]. In Teilen wurden sie publiziert [51]. Diese bislang noch größtenteils unveröffentlichten Daten werden im Rahmen dieser Studie zur Abschätzung der Uranlöslichkeit herangezogen.

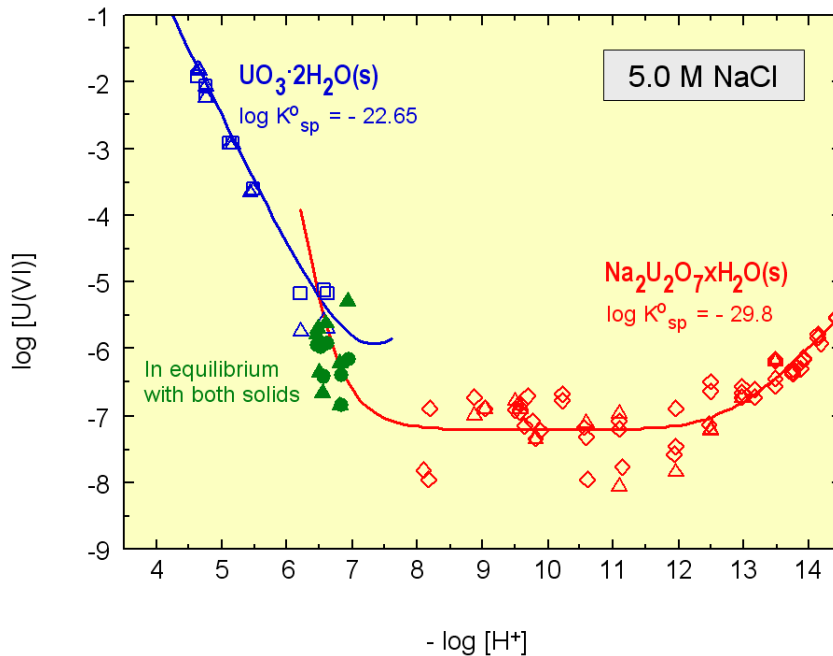


Abb. 5: Löslichkeit von U(VI) in alkalischer 5 M NaCl Lösung [50].

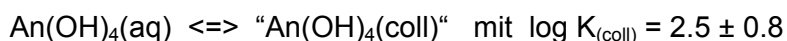
Aus Abb. 5 ist ersichtlich, dass die Konzentration in alkalischer carbonatfreier 5 M NaCl durch einen Natriumdiuranat Bodenkörper kontrolliert wird. Ab pH 12 kommt es zu einem langsamen Anstieg der Löslichkeit der mit der Ausbildung anionischer Uranylhydroxidkomplexe erklärt werden kann.

**Die Urankonzentration im NaCl System (Entwicklungszustand 1) wird zu  $10^{-6.5}$  M abgeschätzt.**

### **MgCl<sub>2</sub> System(Entwicklungszustand 3,4)**

Die Einschätzung des Verhaltens von vierwertigem Uran in Magnesiumchloridlösung wird in Analogie zu dem gut untersuchten Th(IV) System vorgenommen. Dieses wurde in Unterkapitel 4.5.2 diskutiert.

In [33, 45] wurde ein Ansatz zur quantitativen Abschätzung von Eigenkolloiden detailliert beschrieben. Experimentelle Untersuchungen weisen darauf hin, dass stabile An(IV)-Kolloide entsprechend folgendem Gleichgewicht beschrieben werden können:



mit:  $\text{“An}(\text{OH})_4(\text{am})\text{“} \rightleftharpoons \text{An}(\text{OH})_4(\text{aq})$

Das Konzentrationsniveau der in obiger Gleichung eingesetzten aquatischen Tetrahydroxidkomplexe kann als Summe der Löslichkeitsprodukte der entsprechenden Actinidhydroxidfestphasen ( $\log K_{\text{sp}}^{\circ}(\text{AnO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{am}))$ ) und der Komplexbildungskonstanten dieser Spezies ( $\log \beta_{1,4}^{\circ}$ ) berechnet werden. Eine wesentliche Ionenstärkeabhängigkeit dieser Neutralspezies ist nicht zu erwarten. Siehe hierzu auch Abb. 3.

Unter Verwendung von  $\log K_{sp}^{\circ}(\text{UO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}) = -54.5$  und  $\log \beta_{14} = 46.0$  [27] resultiert für die Konzentration an  $\text{U}(\text{OH})_4(\text{aq})$  ein Wert von  $10^{-8.5}$  M. Dieses führt in Kombination mit der Gleichgewichtskonstante für die Kolloidbildung ( $\log K_{(\text{coll})} = 2.5$ ) für die Konzentration an Uran(IV)-Kolloiden zu einem Wert von  $10^{-6}$  M. Die in Kapitel 4.5.2 für die Carbonatkomplexierung von Thorium(IV) im  $\text{MgCl}_2$  System getroffenen Aussagen sind auf das hier diskutierte analoge U(IV) System übertragbar.

**Die Urankonzentration im  $\text{MgCl}_2$  System (Entwicklungszustand 3,(4)) wird zu  $10^{-6}$  M abgeschätzt.**

#### 4.5.4 Neptunium

Neptunium liegt nach derzeitigem Kenntnisstand in nicht reduzierenden endlagerrelevanten wässrigen Systemen im fünfwertigen Oxidationszustand vor. Die vierwertige Oxidationsstufe ist lediglich unter stark reduzierenden Bedingungen stabil. Thermodynamische Daten und eine Bewertung verschiedener Löslichkeitsuntersuchungen sind in [27, 28] zusammengestellt.

##### **NaCl System (Entwicklungszustand 1)**

Im Rahmen eines Projektes für das FB Asse [33] wurde die Löslichkeit von fünfwertigem Neptunium in 5 M NaCl experimentell untersucht. Abb. 6 ist diesem Bericht entnommen und zeigt den Vergleich mit verschiedenen Löslichkeitsexperimenten mit Np(V) und dem analogen Am(V) System.

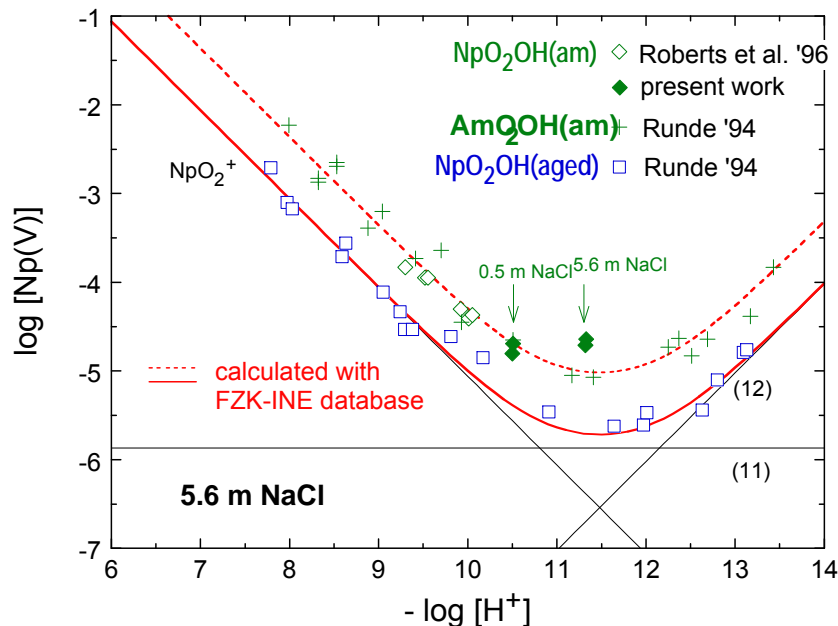


Abb. 6: Löslichkeit von  $\text{NpO}_2\text{OH(am)}$ ,  $\text{AmO}_2\text{OH(am)}$  und  $\text{NpO}_2\text{OH(aged)}$  in carbonatfreier 5 M NaCl/NaOH Lösung [33].

Aus Abb. 6 ist ersichtlich, dass der initial ausfallende  $\text{NpO}_2\text{OH(am)}$  Bodenkörper sich langsam in eine gealterte Festphase  $\text{NpO}_2\text{OH(aged)}$  mit einer halben Größenordnung geringeren Löslichkeit umwandelt. Es werden in dieser Studie für die Einschätzung der Neptuniumlöslichkeit die Werte für das frisch ausgefallene Neptuniumhydroxid zugrunde gelegt.

**Die Neptuniumkonzentration im NaCl System (Entwicklungszustand 1) wird zu  $10^{-4.5}$  M abgeschätzt.**

#### ***MgCl<sub>2</sub> System (Entwicklungszustand 3,4)***

Die Löslichkeit von Np(IV) im MgCl<sub>2</sub> System wird anhand des analogen Thorium(IV) Systems bewertet. Entsprechend der Vorgehensweise, die in Kapitel 4.5.3 für Uran(IV) hergeleitet und begründet wurde, wird unter Verwendung thermodynamischer Daten aus [27] für Np(IV) eine etwas geringere Konzentration des Tetrahydroxokomplexes Np(OH)<sub>4</sub>(aq) auf dem Konzentrationsniveau um  $10^{-9}$  M erwartet. Wird die Kolloidbildung hinzugerechnet ( $\log K_{\text{coll}} = 2.5$ ), resultiert für die Konzentration an Np(IV)-Kolloiden ein Wert von  $10^{-6.5}$  M. Eine nennenswerte Carbonatkomplexierung ist in Analogie zu dem Th(IV) System und entsprechend [52-54] nicht zu erwarten.

**Die Neptuniumkonzentration im MgCl<sub>2</sub> System (Entwicklungszustand 3,(4)) wird zu  $10^{-6.5}$  M abgeschätzt.**

### **4.5.5 Plutonium**

Die wässrige Chemie des Plutoniums ist sehr komplex, da hier verschiedene Oxidationsstufen (Pu(III, IV, V, VI) teilweise sogar koexistent vorliegen können. Unter reduzierenden Bedingungen sind im hier betrachteten Kontext die drei- und vierwertige Oxidationsstufen relevant, im redox-neutralen und mäßig oxidierendem Medium die vier- und fünfwertige, sodann mit zunehmend oxidierendem Medium auch der sechswertige Oxidationszustand. In den letzten Jahren sind von KIT-INE grundlegende Arbeiten zur Plutoniumlöslichkeit und Speziation durchgeführt worden [55-58], die auch die Untersuchung hochsalinärer Systeme einschließt. Im Rahmen von Projekten der OECD-NEA wurden umfangreich thermodynamische Daten und Arbeiten zur Plutoniumlöslichkeit zusammengestellt und evaluiert [27, 28].

#### ***NaCl System (Entwicklungszustand 1)***

Im NaCl System sind vier- und fünfwertige Plutoniumverbindungen zu erwarten. Die nachfolgenden Betrachtungen sind entsprechend der verschiedenen Oxidationsstufen unterteilt.

#### ***Pu(IV) Löslichkeit im NaCl System (Entwicklungszustand 1)***

Die Löslichkeit von Pu(IV) und eine Quantifizierung von Pu(IV)-Kolloiden ist von KIT-INE experimentell untersucht worden. In der Arbeit von Neck et al. [55] wurde die Löslichkeit der PuO<sub>2+x</sub>(s,hyd) Festphase eingehend untersucht. In Abb. 7 ist für 0.1 M NaCl Lösung die Löslichkeit von Pu(IV), Pu(V) und Pu(IV)-Kolloiden dargestellt.

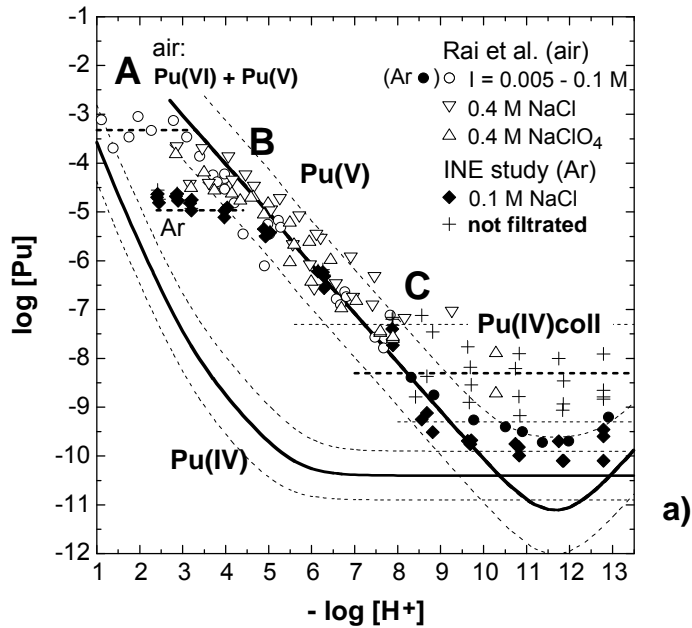


Abb. 7: Löslichkeit von  $PuO_{2+x}(s,hyd)$  in 0.1 M NaCl [55].

Es ist aus Abb. 7 ersichtlich, dass im betrachteten pH Bereich die Konzentration von  $Pu(OH)_4(aq)$  Komplexen sehr niedrig ( $< 10^{-10}$  M) ist. Dieses Verhalten ist bekannt [27] - Lierse und Kim [59] berichten in vergleichsweise salinärer 1 M  $NaClO_4$  Lösung ebenfalls von  $Pu(IV)$  Konzentrationen kleiner  $10^{-10}$  M bei pH 10 und 11 nach Abtrennung kolloidaler Fraktionen. Die  $Pu(IV)$  Gesamtkonzentration wird im betrachteten pH Bereich von kolloidalen  $Pu(IV)$ -Spezies dominiert. Diese werden in Übereinstimmung mit den Abschätzungen in [33, 45] auf dem Konzentrationsniveau um  $10^{-8.3}$  M gefunden. Die erwartete Konzentration von  $Pu(IV)$ -Kolloiden steht in Einklang mit einem von Fujiwara et al. [60] publizierten Modell zur Polymerbildung. Wie für das Th(IV) System ausgeführt (siehe Kap. 4.5.2) ist keine starke Ionenstärkeabhängigkeit der kolloidalen An(IV)-Spezies zu erwarten.

**Die Plutonium(IV)konzentration im NaCl System (Entwicklungszustand 1) wird mit  $10^{-8}$  M abgeschätzt.**

#### ***Pu(V) Löslichkeit im NaCl System (Entwicklungszustand 1)***

Zur Ableitung der  $Pu(V)$  Löslichkeit im NaCl System wird ebenfalls die oben erwähnte Arbeit von Neck et al. [55] betrachtet. Die  $Pu(V)$  Konzentration bei pH = 12.8 liegt in 0.1 M NaCl, wie in Abb. 7 dargestellt, bei  $10^{-9}$  M. Arbeiten von Rai et al. [40] zeigen in Löslichkeitsexperimenten mit  $PuO_2(am, hyd)$  in 0.4 und 4.4 m NaCl bei pH 5-8 eine lediglich schwache Abhängigkeit der Löslichkeit von der Ionenstärke. Da nicht eindeutig ist, wie diese Tendenz zu leicht steigenden  $Pu(V)$ -Konzentrationen angesichts der sich mit dem pH ändernden  $Pu(V)$  Speziation in Lösung auf pH 12.8 extrapoliert werden darf, wird ein vergleichsweise hoher Ionenstärkeeffekt resultierend in einer Löslichkeitserhöhung um zwei Größenordnungen angenommen.

**Die Plutonium(V)konzentration im NaCl System (Entwicklungszustand 1) wird zu  $10^{-7}$  M abgeschätzt.**

### MgCl<sub>2</sub> System (Entwicklungszustand 3,4)

Im MgCl<sub>2</sub> System sind drei- und vierwertige Plutoniumverbindungen zu erwarten. Die nachfolgenden Betrachtungen sind entsprechend der Oxidationsstufen unterteilt.

#### Pu(III) Löslichkeit im MgCl<sub>2</sub> System (Entwicklungszustand 1)

Für carbonatfreie 3.5 M MgCl<sub>2</sub> Lösung konnte in Arbeiten des KIT-INE gezeigt werden, dass unter stark reduzierenden Bedingungen (Anwesenheit von korrodierendem Fe Pulver) von dem Vorliegen eines schwerlöslichen PuO<sub>2</sub>(am) Bodenkörpers ausgegangen werden kann. Im Sinne einer reduktiven Auflösung dieser Phase sind Pu(III) Konzentrationen um 10<sup>-7.5</sup> M zu erwarten [58]. In Experimentansätzen mit Pu(III) Ausgangslösung aus der Übersättigung wird ein starkes Absinken der anfänglich sehr hohen Pu(III) Löslichkeit auf das Konzentrationsniveau des Experiments mit initial eingesetztem PuO<sub>2</sub>(am) Bodenkörper gefunden. Dieses konnte im Rahmen von F&E Arbeiten des KIT-INE anhand von EXAFS Untersuchungen [61] mit der Transformation einer anfänglich ausgefällten Pu(III) Festphase in eine unter diesen Bedingungen stabilere PuO<sub>2</sub>(am) Festphase korreliert werden. Siehe hierzu auch Abb. 8.

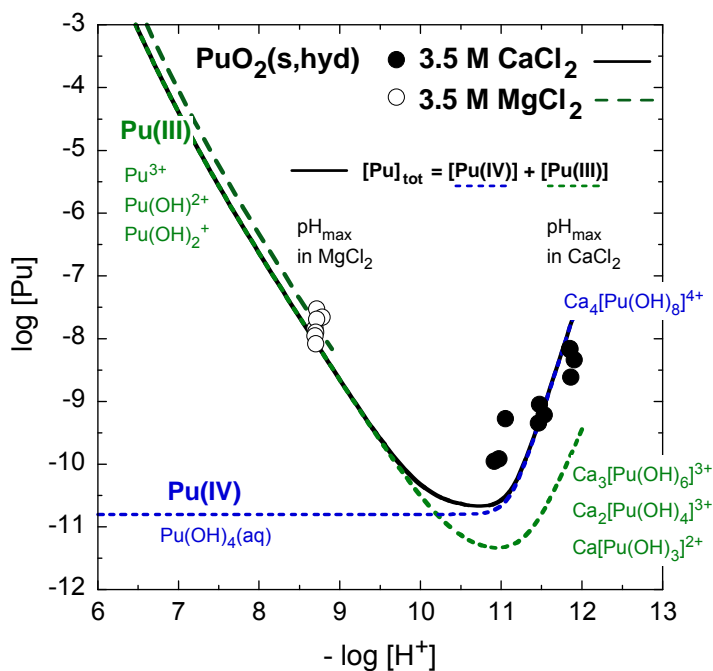


Abb. 8: Löslichkeit von PuO<sub>2</sub>(am) in carbonatfreier 3.5 M MgCl<sub>2</sub> Lösung unter stark reduzierenden Bedingungen [58].

In neueren Projektarbeiten für FB Asse [34] wurde darüber hinaus auch die Löslichkeit in carbonathaltiger 3.5 M MgCl<sub>2</sub> Lösung untersucht. Die Ergebnisse werden in Abb. 9 dargestellt. Es wurden hier sowohl Experimente mit PuO<sub>2+x</sub>(am) Festkörper aus der Untersättigung, als auch mit Pu(III) Ausgangslösung aus der Übersättigung durchgeführt.

Während die Daten aus der Untersättigung denen im carbonatfreien System entsprechen, liegen die Daten aus der Pu(III) Übersättigung im carbonathaltigen System wesentlich höher. Auch nach einem Jahr werden noch Löslichkeiten um 10<sup>-5.5</sup> M gefunden. Dieses konnte anhand von EXAFS Untersuchungen [62] mit der Existenz bisher nicht näher charakterisierter

dreiwertiger Plutoniumfestphasen erklärt werden. In dieser Studie werden diese unerwartet hohen Pu-Konzentrationen belastet.

**Die Plutonium(III)konzentration im  $MgCl_2$  System (Entwicklungszustand 3,(4)) wird zu  $10^{-5}$  M abgeschätzt.**

Es ist festzustellen, dass das Verhalten von Plutonium unter stark reduzierenden Bedingungen, insbesondere bei Anwesenheit von Carbonat und salinaren Bedingungen, nicht ausreichend untersucht ist. Aufgrund einer in diesem Falle völlig unzureichenden thermodynamischen Datenbasis entziehen sich diese Systeme derzeit prinzipiell einer Analyse durch geochemische Modellrechnungen. Ein besserer Kenntnisstand kann hier ausschließlich durch gezielte experimentelle Untersuchungen erreicht werden.

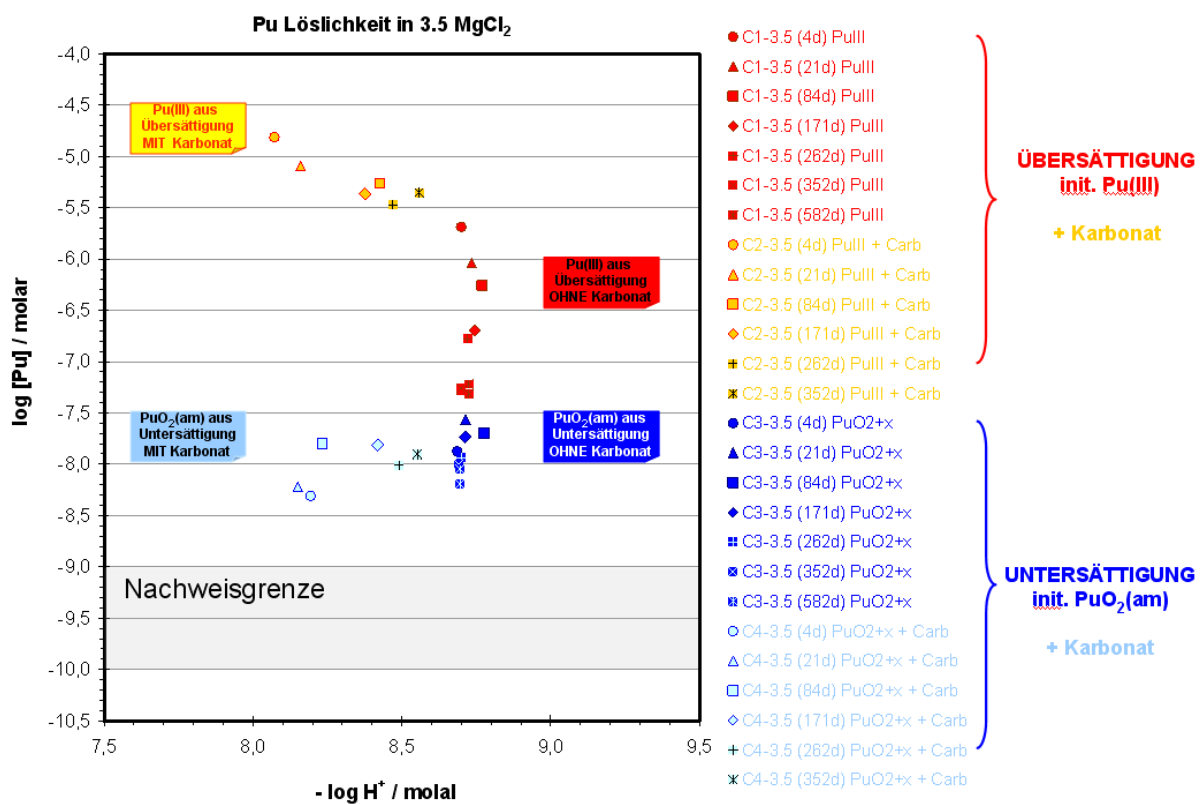


Abb. 9: Zeitliche Abhängigkeit der Löslichkeit von Plutonium in 3.5 M  $MgCl_2$  Lösung bei An- und Abwesenheit von Carbonat [34].

### ***Pu(IV) Löslichkeit im $MgCl_2$ System (Entwicklungszustand 3,4)***

Die Abschätzung der Pu(IV) Löslichkeit im  $MgCl_2$  System lehnt sich hinsichtlich der Betrachtung kolloidaler Pu(IV) Spezies an die oben ausgeführten Abschätzungen für tetravalentes Plutonium im NaCl System bzw. den Ausführungen zu U(IV) Kapitel 5.4.3. und Np(IV) Kapitel 5.4.4. an. Entsprechend den Arbeiten im Thorium(IV) System [47, 48] und Untersuchungen im Plutonium(IV) System [63] [53] wird unter den gegebenen Bedingungen keine Konzentrationserhöhung durch Ausbildung von Carbonatkomplexen oberhalb des durch Pu(IV) Kolloide definierten Konzentrationsniveaus erwartet.



**Die Plutonium(IV)konzentration im  $\text{MgCl}_2$  System (Entwicklungszustand 3,(4)) wird mit  $10^{-7.5}$  M abgeschätzt.**

#### 4.5.6 Technetium

Unter nicht reduzierenden Bedingungen liegt Technetium in wässriger Lösung als anionisches Perotechnetat  $\text{TcO}_4^-$  vor. Im reduzierenden Milieu ist das vierwertige Technetium relevant. Im Rahmen des OECD-NEA Projektes sind verschiedene Löslichkeitsuntersuchung und thermodynamische Daten zusammengestellt und bewertet worden [29].

##### ***NaCl System (Entwicklungszustand 1)***

Entsprechend dem derzeitigen Kenntnisstand kann davon ausgegangen werden, dass im betrachteten NaCl System für Perotechnetat ausgesprochen hohe Löslichkeiten zu erwarten sind. Für die im Rahmen dieser Studie betrachteten geochemischen Bedingungen ist keine Löslichkeitsbegrenzung abzuleiten.

**Die Technetium(VII)konzentration im NaCl System (Entwicklungszustand 1) ist nicht löslichkeitslimitiert.**

##### ***MgCl<sub>2</sub> System (Entwicklungszustand 3,4)***

Das unter reduzierenden Bedingungen vorliegende vierwertige Technetium ist bisher nicht in konzentrierten, carbonathaltigen  $\text{MgCl}_2$  Lösungen untersucht worden. Die Analogie von Tc(IV) und Thorium(IV) ist nicht überzeugend, stellt hier jedoch einen gangbaren Ansatz zur ersten orientierenden Abschätzung einer Löslichkeitsbegrenzung für Technetium(IV) dar. Arbeiten von Meyer et al. [64] und Eriksen et al. [65] zur Löslichkeit von  $\text{TcO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{am})$  werden in [66] diskutiert. Ähnlich dem Verhalten von Thorium (siehe Kapitel 4.5.2, Abb. 4 wird für Technetium(IV) zwischen pH 3 und 10 ein Plateau auf dem Konzentrationsniveau von  $10^{-8}$  M gefunden. Wird dieses Plateau mit dem Vorliegen ladungsneutraler Technetiumhydroxokomplexe korreliert und für Tc(IV) die gleiche Tendenz zur Kolloidbildung wie im Th(IV) System unterstellt, würden Tc(IV)-Kolloide im Konzentrationsbereich um  $10^{-6}$  M erwartet werden. Da die Tendenz zur Bildung von Carbonatkomplexen eher gering ist, Eriksen et al. [65] finden bei pH 8 im Gleichgewicht mit 100%  $\text{CO}_2(\text{g})$  lediglich eine Löslichkeitserhöhung von einer Größenordnung, wird im betrachteten Fall eine Löslichkeitserhöhung durch Carbonatkomplexierung oberhalb des Konzentrationsniveaus der Tc(IV)-Kolloide nicht erwartet.

**Die Technetium(IV)konzentration im  $\text{MgCl}_2$  System (Entwicklungszustand 3,(4)) wird zu  $10^{-6}$  M abgeschätzt.**

## 4.6 Einfluss von Verdünnungseffekten auf die Radionuklidlöslichkeit

Die in Abschnitt 4.5 untersuchten Systeme stellen hochsalinare NaCl bzw. MgCl<sub>2</sub> Lösungen dar. Für diese geochemischen Randbedingungen wurden Radionuklidkonzentrationen abgeleitet, die sowohl im Gleichgewicht mit den entsprechenden löslichkeitsbestimmenden Festphasen stehen und sämtliche Effekte von Ion-Ion Wechselwirkungen auf die Radionuklidlöslichkeit empirisch berücksichtigen.

Werden hochsalinare wässrige Lösungen mit niedrigsalinaren Lösungen verdünnt, ändert sich drastisch das geochemische Milieu und dieses wiederum Radionuklidlöslichkeit und Speziation. In einigen Fällen, die unten anhand von zwei Beispielen diskutiert werden, ist nicht davon auszugehen, dass sich die Löslichkeit und Speziation linear mit der Verdünnung entwickelt, d.h. eine zehnfache Verdünnung führt nicht zwingend zu einer zehnfach kleineren Konzentration und Beibehaltung der Speziation. Werden die für hochkonzentrierte Salzlösungen angegebenen Radionuklidlöslichkeiten auf niedrigsalinare Bedingungen übertragen, z.B. durch Ansetzen eines tausendfachen Verdünnungsfaktors hin zu Trinkwasserqualität, sind chemische Effekte (Ionestärkeeffekt) zu berücksichtigen.

- a) Die Radionuklidlöslichkeit kann als Funktion von Menge und Art der Hauptkomponenten des geochemischen Milieus entscheidend durch Ionenstärkeeffekte beeinflusst werden. Diese können zu starken nichtlinearen Löslichkeitserhöhungen bei gleichem pH Wert ( $-\log [H^+]$ ) führen. In Kapitel 4.5.1 ist in Abb. 2 die Löslichkeit für dreiwertige Actiniden (Am(III)) über die Analogie zu Neodymlöslichkeitsexperimenten in 3.5 M MgCl<sub>2</sub> Lösung abgeleitet worden. In [34] sind Neodym- und Curiumlöslichkeiten bei verschiedenen MgCl<sub>2</sub> Konzentrationen untersucht worden. Die Nd(III) Konzentrationen betragen bei  $-\log [H^+] = 8.7$ :

$$\begin{array}{ll} 10^{-4.5} \text{ M (in 3.5 M MgCl}_2\text{)} & 10^{-4.8} \text{ M (in 2.5 M MgCl}_2\text{)} \\ 10^{-5.6} \text{ M (in 1.0 M MgCl}_2\text{)} & 10^{-6.6} \text{ M (in 0.25 M MgCl}_2\text{)} \end{array}$$

Ein Vergleich dieser Löslichkeiten und MgCl<sub>2</sub>-Konzentrationen zeigt eindeutig, dass die Löslichkeit mit sinkender Ionenstärke hier nicht linear absinkt. Bei einer angenommenen Verdünnung der 3.5 M MgCl<sub>2</sub> auf eine 1 M MgCl<sub>2</sub> (Faktor 3.5) wird die Löslichkeit etwa um das Zehnfache, und die Löslichkeit in 2.5 M und 0.25 M MgCl<sub>2</sub> um fast zwei Größenordnungen und nicht nur eine erniedrigt.

- b) In Kapitel 4.5 werden an mehreren Stellen Radionuklidkonzentrationen unter Berücksichtigung von Eigenkolloiden vierwertiger Actiniden abgeleitet. Bezüglich der Kolloidbildung vierwertiger Actiniden ist zu konkretisieren, dass diese Spezies, wie in [45] beschrieben, im Gleichgewicht mit entsprechenden Actinidfestphasen stehen. Werden die Kolloide, wie im Fall eines Transports aus dem Grubengebäude, aus dem Gleichgewicht mit den Festphasen entfernt, stellen sie keine stabilen und keine migrierenden Spezies dar. Die Löslichkeit wird unter diesen Bedingung durch nicht-kolloidale Actinid(IV)spezies bestimmt.

## 4.7 Zusammenfassende Darstellung der abgeschätzten Radionuklidlöslichkeiten

Die in Kapitel 4.5 abgeleiteten Radionuklidlöslichkeiten werden in Tab. IV zusammengefasst. Es werden Aussagen für die in Kapitel 3 abgeleiteten geochemischen Randbedingungen Entwicklungszustand 1 – „NaCl System“ und Entwicklungszustand 3,(4) – „MgCl<sub>2</sub> System“ getroffen. Die Abschätzung der Radionuklidkonzentrationen erfolgt über das in Kapitel 4.2 definierte Vorgehen und Beachtung der in Kapitel 4.4 dargestellten Annahmen und Vereinfachungen.

Tab. IV: Im Rahmen dieser Studie abgeschätzte Radionuklidlöslichkeiten.

Radionuklid (Oxidationsstufe)	Entwicklungszustand 1 „NaCl System“	Entwicklungszustand 3,4 „MgCl <sub>2</sub> System“
	log [Konzentration] [Mol / Liter]	log [Konzentration] [Mol / Liter]
Tc(IV)	<i>nicht relevant</i>	-6
Tc(VII)	keine Begrenzung	<i>nicht relevant</i>
Th(IV)	-6	-6
U(IV)	<i>nicht relevant</i>	-6
U(VI)	-6.5	<i>nicht relevant</i>
Np(IV)	<i>nicht relevant</i>	-6.5
Np(V)	-4.5	<i>nicht relevant</i>
Pu(III)	<i>nicht relevant</i>	-5
Pu(IV)	-8	-7.5
Pu(V)	-7	<i>nicht relevant</i>
Am(III)	-8	-4.5

## 5. Rückhalteprozesse im Grubengebäude

Im Rahmen dieser Studie werden Sorptionsprozesse im Grubengebäude bewertet, die an den zementierten Abfallprodukten und am Steinsalz stattfinden. Während der Wechselwirkungen der Lösungen mit den Abfallprodukten finden zahlreiche miteinander gekoppelte geochemische Reaktionen statt. Diese sind im Detail sehr komplex. Dennoch lassen sich die ablaufenden Prozesse auf Grundlage chemischer Gesetzmäßigkeiten auf wenige grundlegende Prinzipien zurückführen.

1. Die Radionuklidkonzentration ist am Höchsten im Abfallprodukt. Jede Mobilisierung in eine Lösung führt zur Verdünnung.
2. Die primär aus der Abfallmatrix mobilisierten Radionuklide unterliegen gemäß dem geochemischen Milieu verschiedenen chemischen Reaktionen, wie Redox-, Hydrolyse- und Komplexierungsreaktionen sowie der Bildung von Eigenkolloiden oder Bindung an Fremdkolloide. Die als Ionen, Komplexe oder kolloidal mobilisierten Radionuklidspezies können auf Feststoffoberflächen der (geo-)technischen Barriere durch Sorptionsprozesse, wie Adsorption, Chemisorption, Ionenaustausch, Inkorporation, zurückgehalten werden oder im Falle von Übersättigung in sich bildende neue Festphasen, wie sekundäre Radionuklid(misch-)phasen, eingebaut werden. Das Zusammenwirken der simultan ablaufenden Prozesse von Korrosion der Abfallprodukte und Remineralisierung beeinflusst das geochemische Milieu und dadurch die Löslichkeit und Sorption der Radionuklidspezies.
3. In diesem Kontext können Sorptionsreaktionen in Konkurrenz zu Auflöse-/Ausfällungsreaktionen gesehen werden. Ein geochemisches System wird sich langfristig immer durch verschiedene Reaktionen in einen energetisch begünstigten Zustand begeben. Dies bedeutet, dass sich auch feste Phasen auflösen und darin enthaltene Radionuklide in eine stabilere Sorptionsphase überführt werden können. Für Auflöse-/Ausfällungsreaktionen können die Prozesse mit thermodynamischen / geochemischen Methoden berechnet werden. Für Sorptionsprozesse in hochkonzentrierten Salzlösungen existieren heute weder geeignete Sorptionsmodelle noch die entsprechenden Datenbasen. Aus diesem Grund wird konservativ unterstellt, dass entweder feste thermodynamisch definierte Phasen oder aber Sorptionsphasen die Lösungskonzentrationen des jeweiligen Elements bestimmen. Diese Annahme bedeutet, dass im Fall der Radionuklide die sich einstellende Konzentration in der Lösung entweder durch die thermodynamischen Löslichkeiten oder durch Sorptionsprozesse bestimmt ist. Diese Aussage ist wichtig für solche Nuklide, die in hinreichend großen Mengen vorhanden sind um die Löslichkeiten zu übersteigen. Falls eine Festphase entstehen kann, definiert diese die Lösungskonzentration, wenn keine Festphase gebildet werden kann, wird die Lösungskonzentration durch die Sorption an den verfügbaren Oberflächen bestimmt.

Ein Beispiel für die in 3. genannte Bedingungen zeigt **Abb. 10** für die Americium-Rückhaltung in einem Lösungs-Feststoff System aus Zement und  $MgCl_2$ -Lösung [3]. Hierbei wurde der Americium-Gehalt der Proben systematisch variiert und die Lösungskonzentration gemessen. Auf der rechten Skala ist der berechnete Sorptionskoeffizient angegeben, der zwischen 250 und 2500 ml  $g^{-1}$  liegt. Für Uran(VI) konnte gezeigt werden, dass mit abnehmendem U-Inventar (Entfernung von der Konzentration, die zur Bildung von festen Phasen

erforderlich ist) die Lösungskonzentration überproportional abnimmt c [3]. Das gleiche Verhalten wurde auch für Plutonium [67] gezeigt.

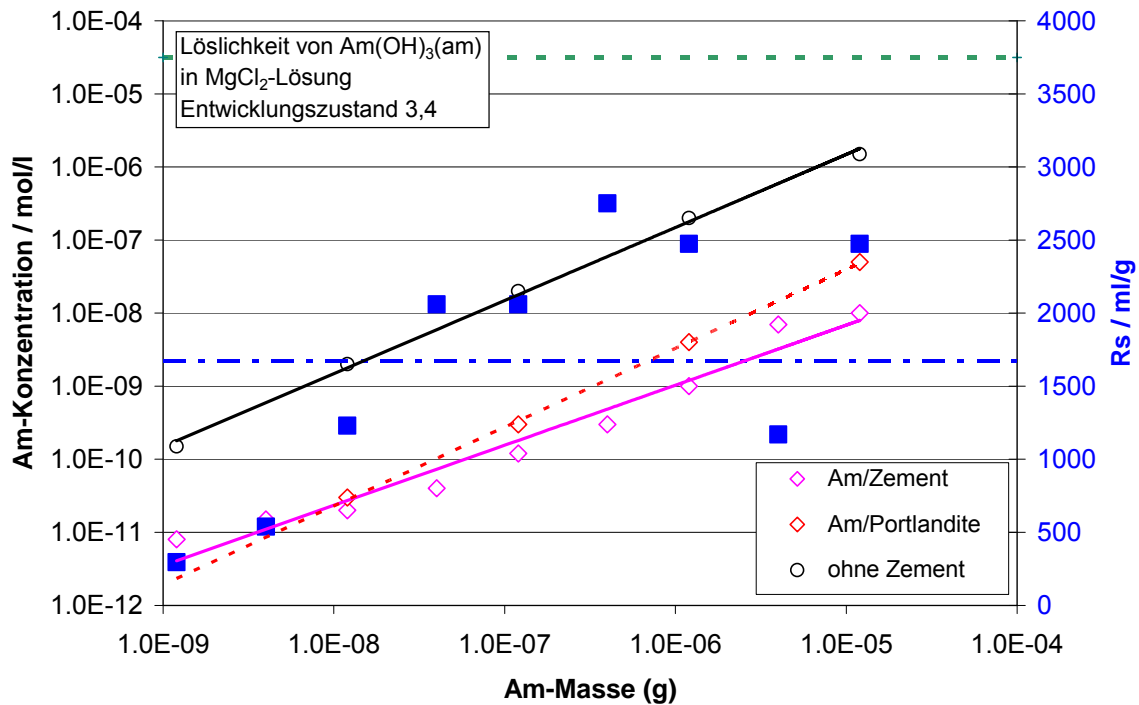


Abb. 10 Americium Konzentration als Funktion des Am-Inventars in einem Zement - Q Lösungssystem.

Die strich-punktierte blaue Linie stellt den mittleren  $R_s$ -Wert dar

Sorption kann an allen verfügbaren festen Phasen im Grubengebäude stattfinden. Wichtige sorbierende Stoffe sind, neben den Abfallprodukten, Steinsalz und Baustoffe, die zur Abdichtung errichtet wurden. Korrodierter Stahl (Eisenphasen) von den Gebinden und Sorelphasen sind ebenfalls vorhanden, werden aber hier nicht betrachtet, da Daten nur für bestimmte geochemische Bedingungen außerhalb des betrachteten Bereichs [1] zur Verfügung stehen. Auch kann die relevante Masse an Steinsalz (Verfüllung der Südwestflanke der Schachanlage) in dieser Studie nicht angegeben werden.

Standortspezifische Sorptionsdaten für bestimmte Stoffe und Bedingungen wurden im Rahmen des "Experimentelles Programm zur Bestätigung der Ergebnisse von standortspezifischen Modellrechnungen für die Schachanlage Asse, Teil 4: Standortspezifische Sorptionsdaten" von KIT-INE ermittelt. Die Beschreibung der untersuchten Systeme und eine Teilmenge der Daten wurden 2003 publiziert [10].

In den folgenden Ausführungen werden die Sorptionskoeffizienten sowohl im Grubengebäude als auch im Deckgebirge als lineare  $R_s$  ( $K_d$ ) Werte angegeben.

$$R_s = \frac{\text{Konzentration des Elements in der festen Phase}}{\text{Konzentration des Elements in der flüssigen Phase}}$$

Zur Anwendung der Sorptionskoeffizienten wird die Menge der reagierenden Feststoffe benötigt. Mengenangaben zum hydratisiertem Zement in der Schachanlage Asse II finden sich in Ref. [25] (siehe Tab. V):

**Tab. V Hydratisierte Zement Masse in der Schachanlage Asse II (nach [25]):**

Normalbeton:	26736 t	davon hydrat. Zement:	5989 t
Portlandzementstein			12065 t
Schwerbeton:	10635 t	davon hydrat. Zement	1702 t
Portlandzement Mörtel			7767 t
<b>Summe</b>			<b>27523 t</b>

In Tab. VI sind die Bandbreiten der Sorptionsdaten (nach etwa 9 Monaten Reaktionszeit) der untersuchten Radionuklide im System Zement/Q-Lösung angegeben. In diesen Experimenten wurden relevante Komplexbildner berücksichtigt. Die Oxidationsstufen der Radionuklide sind Am(III), Np(V), Pu(IV,V), U(VI), Ra(II), Tc(VII).

**Tab. VI Sorptionskoeffizienten (Rs) im System Zement/Q-Lösung nach ca. 9 Monaten**

Element	Rs / ml/g		
	ohne EDTA	0.1 mM EDTA	1 mM EDTA
Am	7710 - 3615	800 - 317	300 - 132
Np	1673 - 1026	1577 - 1008	1693 - 1217
Pu	4767 - 3860	5153 - 3830	3196 - 2273
Ra	20 - 7	31 - 11	15 - 7
Tc	18 - 10	23 - 3	15 - 3
U	8943 - 4840	6310 - 3817	4140 - 2233

Im Rahmen der Untersuchungen zur "Nuklidmigration im Deckgebirge des Endlagers für radioaktive Abfälle Morsleben, Teil 1: Sorption im Grubengebäude" [68] wurde die Sorption einiger Radionuklide an festem Steinsalz untersucht. Die Ergebnisse sind in Tab. VII angegeben.

**Tab. VII Sorptionskoeffizient (Rs) im System Steinsalz (ERAM)/Q- bzw. NaCl-Lösung**

Lösung	Element	Rs nach 280 Tagen / ml/g				
		ohne EDTA	EDTA 0.01mM	EDTA 0.1mM	EDTA 1mM	Zitronensäure 1mM
Q-Lösung	Pu	20	16	5.9	2.5	3.8
	Th	135	28	5.4	3.4	7.3
	Np	0.2			0.3	0.3
	U	0.4			0.5	0.7
NaCl-Lösung	Pu	301	27	2.5	0.3	1.6
	Th	85	4.9	0.3		1.6
	Np	71			11	2.7
	U					0.2

Im Rahmen des ERAM Untersuchungsprogramms wurden von INE zusammen mit FZD die Sorption von  $^{14}\text{C}$  Carbonat an Salzbeton (pH 10.6) und an Sorelzement (pH 9) in NaCl-Lösung und in  $\text{MgCl}_2$ -Lösung untersucht. Es zeigte sich eine starke Zeitabhängigkeit. Für

beide Feststoffe wurden Sorptionskoeffizienten  $R_s \sim 3000 \text{ ml g}^{-1}$  im NaCl-System und deutlich niedrigere Werte im  $\text{MgCl}_2$ -System  $R_s \sim 2$  bis  $11 \text{ ml g}^{-1}$  gefunden. Die Werte für das NaCl/Zementsystem sind in Übereinstimmung mit publizierten Daten [69-72].

Die Berechnung der gelösten Konzentration eines nicht-löslichkeits-kontrollierten Elementes an festen Phasen erfolgt nach folgender Formel:

A: Gesamtmasse bzw. gesamte Aktivität des Elements

M: Masse des sorbierenden Stoffes (Zement oder Steinsalz) im relevanten Volumen (Grubengebäude)

V: Porenvolumen im relevanten Volumen (Grubengebäude)

c: gelöste Konzentration

$$c = \frac{A}{M \cdot R_s + V} \quad (\text{Dimensionen beachten!})$$

Es steht außer Frage, dass es bei einer Freisetzung von Radionukliden in Lösung zu Wechselwirkungen mit sorbierenden Festphasenoberflächen kommt und letztlich die Konzentration der nicht-löslichkeitslimitierten Radionukliden in der Lösung vermindert wird. Zur belastbaren Quantifizierung dieser Prozesse sind vertiefende Betrachtung und Kenntnis von Stoffmengen, -inventaren, etc. und des lokalen geochemischen Milieus erforderlich.

## 6. Aufbereitung publizierter Sorptionsdaten im Deckgebirge der Schachanlage Asse II

In [1] wird der Austritt von kontaminierten Lösungen aus dem Grubengebäude an der Südflanke im oberen Bereich des Salzlösungszutritts in 500 m Teufe unterstellt. Die Ausbreitung der aus dem Grubengebäude austretenden Lösungen im Deckgebirge wird nicht berücksichtigt. Es wird angenommen, dass die aus der Grube austretende Lösung direkt in das oberflächennahe Grundwasser gelangt, das in die Biosphäre übertritt.

Der kürzeste Lösungstransportpfad kann durch mehrere 100 Meter mächtige möglicherweise geklüftete Buntsandstein und Muschelkalk Schichten vertikal nach oben stattfinden (siehe Abb. 11). Auf der Verlängerung dieses Schnittes wurden Bohrungen durchgeführt und aus den Bohrkernen Proben für Sorptionsuntersuchungen hergestellt. In diesen Bohrungen R5 und R6 wurden auch hydraulische Leitfähigkeitswerte (für das ungestörte System) und Gesteinsporositäten in Tiefen bis 500 m bestimmt [73, 74].

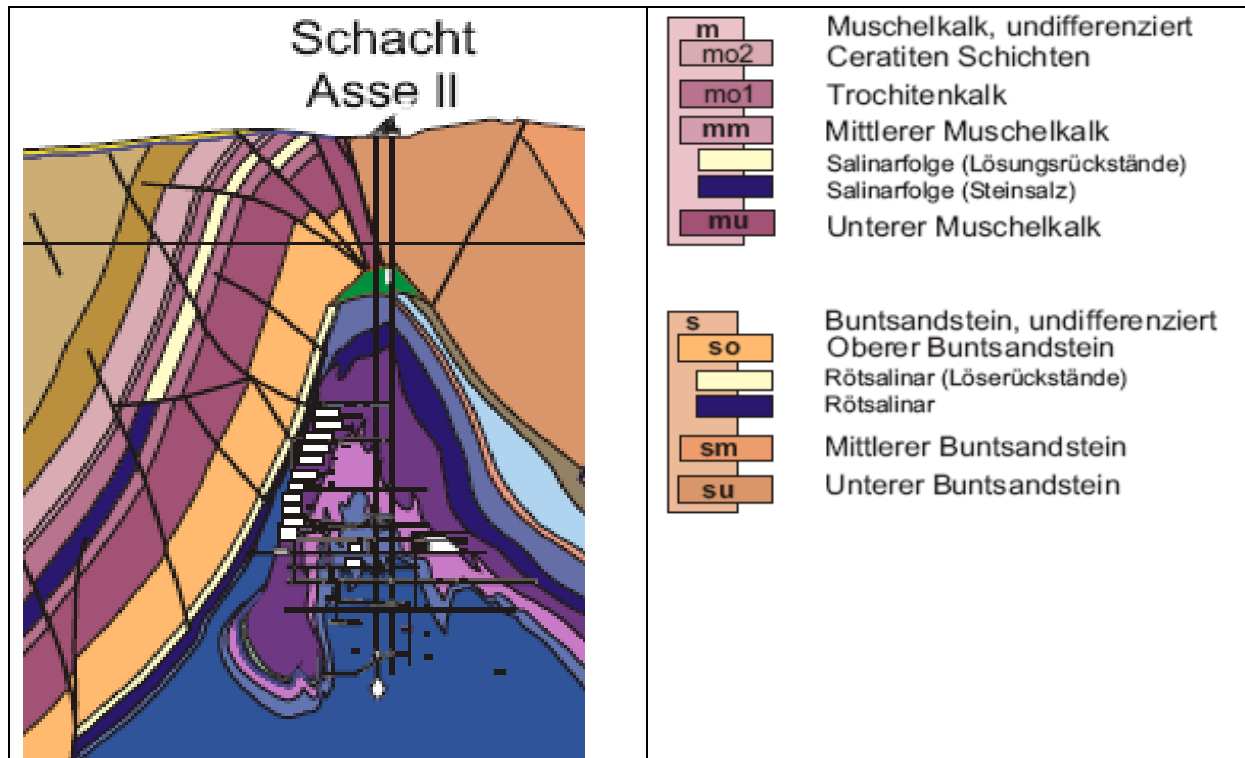


Abb. 11 Geologischer Schnitt durch den Asse Sattel im Bereich der Schachtanlage Asse II (Schnitt A-B)

Im Auftrag der GSF wurde die Sorption von zahlreichen Radionukliden an Proben aus Bohrungen in das Deckgebirge des Asse-Sattels von verschiedenen Labors [2, 75, 76] durchgeführt. Es wurde versucht, für das jeweilige Gestein bzw. Schicht typische Porenwässer zu gewinnen (H1, H5, H10 und H15). In Tab. VIII sind die wesentlichen Daten der verwendeten Grundwässer zusammengestellt [2].

Tab. VIII Charakteristika der bei den Sorptionsstudien verwendeten Grundwässer

	H1	H5	H10	H15
pH	6.3	6.0	6.75	6.65
Redoxpot. / mV	147	203	131	143
Na <sup>+</sup> (mg/kg)	25.4	15.6	99.6	10.7
Ca <sup>2+</sup> (mg/kg)	328.9	551.4	74.0	277.2
Mg <sup>2+</sup> (mg/kg)	43.8	44.3	67.4	47.9
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (mg/kg)	742.1	1228.8	217.9	675.9
Cl <sup>-</sup> (mg/kg)	77.4	51.0	78.6	34.2
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (mg/kg)	159.0	216.4	436.8	215.6
CO <sub>2</sub> (g) (mg/kg)	171.4	113.9	174.4	140.5
Ionenstärke / mol	0.039	0.060	0.020	0.034

Neben den Grundwässern wurden auch modifizierte Lösungen, wie z.B. MgCl<sub>2</sub>-Lösungen (bis 1 mol l<sup>-1</sup>) verwendet [76, 77]. Die Ergebnisse sind besonders für den Übergang der kon-



taminierten Lösung in das Deckgebirge von Bedeutung. In der Tab. IX sind die mittleren Sorptionskoeffizienten im Deckgebirge der Schachanlage Asse angegeben. Für die Bezeichnung der Gesteine in Tab. IX wird auf die Legende der Abb. 11 verwiesen (mo: oberer Muschelkalk; mm: mittlerer Muschelkalk; mu: unterer Muschelkalk; so: oberer Buntsandstein).

Von folgenden Oxidationsstufen der Radionuklide kann ausgegangen werden: I(-I), Cs(I), Sr(II), Pb(II), Ra(II), Am(III), Cm(III), Np(V), Pu(IV,V), U(VI), Ra(II), Tc(VII). Für Se, Ac und Pa liegen keine Angaben vor.

**Tab. IX Mittlere Sorptionskoeffizienten im Deckgebirge der Schachanlage Asse nach Ref. [75]**

Gestein	Rs (ml/g)					
	mo	mm2	mm	mu	mu 1-3	so
CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup>	3	2	1.5	9	8	1.8
Se	0.04	0.4	0.05	0.1	0.08	0.3
Sr	7	3	1.3	1.5	1	49
Tc	1.4	0.1	0.5	1.3	7	0.5
I	12.6	1	3	0.6	0.5	1.4
Cs	1500	120	540	870	280	339
Pb	140	50	70	75	75	74
Ra	138	39	50	60	125	5830
Ac	2000	311	140	227	400	676
Pa	10000	4000	3000	4000	4000	12718
U	15	0.5	4	3.5	3	2.4
Np	370	2.5	20	50	40	9.8
Pu	6000	361	3000	2000	1000	5866
Am	10000	900	10000	10000	5000	13182
Cm	1000	217	4000	438	500	125

Die Sorptionsdaten in Tab. IX für die Tracer <sup>14</sup>CO<sub>3</sub>, Se, Sr, Tc, Cs, Pb, Ra, Ac, Pa, U, Np, Pu, Am, und Cm an den Muschelkalk- und Buntsandstein-Systemen sind weitgehend plausibel, lediglich im Falle des Cm scheinen die angegebenen Werte im Vergleich zum chemisch ähnlichen Am zu niedrig zu liegen. Der geringe Rs-Wert für Cm in [2] könnte darauf beruhen, dass der Sorptionskoeffizient auf Basis der Nachweisgrenze berechnet wurde. Leider sind keine Angaben zu dreiwertigen Lanthaniden (z.B. Nd) verfügbar, um diese Diskrepanz aufzuklären. Leider war es damals (Bode 1989 [2]) nicht möglich, die Redoxspeziation der Actiniden und des Technetiums bei den Experimenten durchzuführen.

Nach [76, 77] nimmt der Sorptionskoeffizient bei nahezu allen untersuchten Elementen in einer 1 mol l<sup>-1</sup> MgCl<sub>2</sub>-Lösung um etwa eine Größenordnung ab. Die gemessenen Porositäten der untersuchten Gesteinsschichten variierten zwischen 25 % und 0.3% [2]. Zwar sind die relevanten Gesteine (und Lösungen) in den Studien berücksichtigt, doch erfordert die Anwendung dieser Sorptionsdaten für den Radionuklidtransport durch das Deckgebirge zahlreiche Annahmen über die Art, Länge und Porosität des Transportpfades. Diese sind nicht Gegenstand dieser Studie.

## 7. Zusammenfassung und Fazit

In der vorliegenden Zusammenstellung von Daten zur wissenschaftlich belastbaren Abschätzung potentieller Strahlenexpositionen in der Umgebung der Schachtanlage Asse II werden orientierende Abschätzungen zum Ausmaß der Radionuklidfreisetzung aus den Abfällen bzw. ihre Rückhaltung auf Grundlage des stark vereinfachenden Modells aus [1] gemacht. Die Betrachtungen dieser Studie basieren auf verschiedenen Konzepten, Modellen und experimentellen Arbeiten. Die in der vorliegenden Studie gemachten Aussagen zum Radionuklidverhalten sollen einen Überblick bieten und keine detaillierte Beschreibung aller relevanten geochemischen Prozesse beinhalten. Im Rahmen dieser Studie soll nicht untersucht werden, wie sich Unsicherheiten in diesen Einflussgrößen auf die Gesamtbewertung des untersuchten Systems auswirken. Ebenfalls sollte das unterstellte „Rührkesselmodell“ nicht kritisch beurteilt werden und keine stärker detaillierte Betrachtung der Prozesse, etwa auf Kammerebene, durchgeführt werden. Die Tatsache, dass im Rahmen dieser Studie die Untersuchungen auf Basis eines vereinfachenden Ansatzes getroffen wurden, bedeutet nicht, dass eine vertiefte Analyse wesentlicher Determinanten (z.B. des geochemischen Milieus, der Radionuklidlöslichkeiten im Multikomponentensystem, Sorptionsprozessen im Nahfeld und im Deckgebirge, zeitlicher Entwicklungen) nicht durchführbar oder nicht zielführend wäre.

Die durchgeführte Studie liefert Löslichkeitsdaten für die Elemente, von denen ausgegangen werden kann, dass ihre Löslichkeit unter den vereinfachenden Randbedingungen, wie sie in Ref. [1] gewählt worden waren, begrenzt sind. Es handelt sich um die Actiniden Th, U, Np, Pu, Am und um das Spaltprodukt Tc in ihren relevanten Wertigkeitsstufen. Aufgrund des zeitlichen Verlaufs des unbeherrschbaren Lösungszutritts in die Schachtanlage Asse II können die geochemischen Bedingungen, d.h. Zusammensetzung und pH-Werte der Salzlösungen, in bestimmte Entwicklungszustände gegliedert werden.

Die Radionuklidlöslichkeiten wurden in dieser Studie für ein Szenarium abgeschätzt in dem Radionuklidlöslichkeiten in reinen NaCl und carbonathaltigen  $MgCl_2$  Lösungen betrachtet wurden. Die Werte konnten direkt aus Löslichkeitsexperimenten oder aus gut begründeten Analogien gewonnen werden. Diese Herangehensweise liefert eine Reduktion des komplexen realen Systems auf ein Modellsystem für welches belastbare Aussagen begründet möglich sind und anhand dessen eine erste Einschätzung von Radionuklidlöslichkeiten erfolgen kann. Sie stellt jedoch keine umfassende Analyse sämtlicher bekannter Effekte im realen System dar.

Die vorliegende Studie zeigt, dass bei Berücksichtigung der thermodynamischen Löslichkeiten der Actiniden, die maximale gelösten Thorium- und Uran-Konzentrationen um einen Faktor 170 (Th) bzw. 195 (U) unter den Konzentrationen liegen, die sich rein rechnerisch aus den Inventaren und Volumina ergeben würden [1]. Die Konzentrationen der anderen Radionuklide sind in dem unterstellten Lösungsvolumen durch das Inventar und nicht durch die Löslichkeit fester Phasen bestimmt. Die Ionenstärke beeinflusst neben den Sorptionseffekten die im Grundwasser (an der Oberfläche) zu erwartenden Konzentrationen. Die Löslichkeit von Am nimmt mit sinkender Ionenstärke nicht linear ab. Bei einer Verdünnung der R-Lösung um einen Faktor 10 nimmt die Am Löslichkeit um 2 Größenordnungen ab.

Die Konzentrationen der vierwertigen Actiniden wurden unter Berücksichtigung von Eigenkolloiden abgeleitet. Die Kolloide stehen im Gleichgewicht mit den entsprechenden Actiniden-

festphasen. Werden die Kolloide beim Transport aus dem Grubengebäude aus dem Gleichgewicht mit den Festphasen entfernt, stellen sie keine stabilen Spezies mehr dar. Die Löslichkeit außerhalb des Grubengebäudes ist dann ausschließlich durch die nicht-kolloidalen Actinid(IV)spezies definiert.

Sorptionsdaten der Radionuklide U, Np, Pu, Am, Ra und Tc wurden im Rahmen Asse-spezifischer Untersuchungen im Auftrag des HMGU sowie für das BfS für den Standort E-RAM von INE ermittelt. Die Untersuchungen bezogen sich auf die Wechselwirkungen der Radionuklide in Feststofflösungssystemen aus Zementstein und  $MgCl_2$ -reicher Lösung, Steinsalz und  $MgCl_2$ -reicher Lösung sowie Steinsalz und NaCl-gesättigter Lösung. Darüber hinaus wurden weitere Systeme untersucht, deren Interpretation für die hier unterstellten vereinfachenden Randbedingungen schwierig ist. In der vorliegenden Studie werden Sorptionsdaten der genannten Systeme auch bei Anwesenheit von Komplexbildnern in den Lösungen aufgeführt.

Aus früheren Untersuchungen, besonders der Dissertation von Wolfgang Bode [2] wurden Sorptionsdaten an Proben aus mehreren Bohrungen in das Deckgebirge der Schachtanlage Asse recherchiert und aufgeführt. Daten liegen vor für  $^{14}CO_3$ , Se, Sr, Tc, Cs, Pb, Ra, Ac, Pa, U, Np, Pu und Am sowie Cm. Die genannten Daten sind plausibel, lediglich im Falle des Cm scheinen die genannten Werte im Vergleich zu Am zu niedrig.

Während die Löslichkeitsdaten thermodynamisch begründet sind, erfordert die Anwendung von Sorptionsdaten Kenntnisse über die Massen bzw. Oberflächen der sorbierenden Stoffe. Im Falle des Zementes sind die Zahlen vorhanden, schwieriger sieht es mit den Daten für Steinsalz im Nahbereich (z.B. als Versatz in den Kammern oder Strecken) aus. Auch die Anwendung für das Deckgebirge erfordert Annahmen über die Art und Größe sowie die Porosität des Transportpfades. Aus diesem Grunde sind wir der Meinung, dass die Prognose der Radionuklidlöslichkeiten innerhalb der Einlagerungskammern eine höhere Belastbarkeit aufweist im Vergleich zur Radionuklidrückhaltung durch Sorptionsphänomene innerhalb und außerhalb der Einlagerungskammern. Insgesamt sind weitere Sorptionssysteme, die für die Einlagerungskammern relevant sind (Fe-Korrosionsprodukte), untersucht worden, so dass die Radionuklidrückhaltung in den einzelnen Lagerkammern genauer auch über lange Zeiten vorhergesagt werden kann. Dies gilt auch für Fälle, in denen Austauschprozesse und Nachlösung von Carnallitit unterstellt werden.

Die vorliegende Studie basiert auf einigen Volumen-/Zeit-Abschätzungen gemäß der Studie Ref. [1]. Aus den oben genannten Gründen erscheint es uns nicht gerechtfertigt bei der Abschätzung einer potentiellen Strahlenexposition in der Umgebung der Schachtanlage Asse II während der Betriebsphase oder danach lediglich Verdünnungsprozesse im Grubengebäude oder im Deckgebirge zu unterstellen. Die Methoden, wie wissenschaftlich belastbare Abschätzungen potentieller Strahlenexpositionen möglich sind, wurden dargestellt.

## 8. Referenzen

- [1] GRS, "Abschätzung potentieller Strahlenexpositionen in der Umgebung der Schachanlage Asse II infolge auslegungsüberschreitender Zutrittsraten der Deckgebirgslösung während der Betriebsphase," Bundesamt für Strahlenschutz (BfS), Salzgitter [http://www.endlager-as-se.de/cae/servlet/contentblob/610320/publicationFile/37351/006\\_fu38\\_exposition\\_info\\_loesungszutritt.pdf](http://www.endlager-as-se.de/cae/servlet/contentblob/610320/publicationFile/37351/006_fu38_exposition_info_loesungszutritt.pdf), 2009.
- [2] W. Bode, "Untersuchungen zur Bestimmung der Rückhalteeigenschaften von Gesteinen über der Schachanlage Asse II gegenüber gelösten Radionukliden Bericht 16/89," GSF TL 28/89, 11.1989 1989.
- [3] P. Vejmelka, G. Rudolph, W. Kluger, and R. Köster, "Die Konditionierung radioaktiver Abfallösungen durch Zementierung," Forschungszentrum Karlsruhe KfK 4800, 1990.
- [4] W. Schüßler, P. Vejmelka, H. Hofmann, A. Bauer, D. Hentschel, S. Bäurer, T. Kisely, C. Nies, V. Metz, and B. Kienzler, "Teil 1: Geochemisches Milieu," FZK-INE, Karlsruhe FZK-INE 001/02, 2002.
- [5] W. Schüßler, P. Vejmelka, V. Metz, V. Neck, M. Altmaier, C. Marquardt, A. Seibert, and B. Kienzler, "Teil 2: Elementlöslichkeiten unter standortspezifischen Bedingungen," FZK-INE, Karlsruhe FZK-INE 008/03, 2003.
- [6] B. Kienzler, P. Vejmelka, H.-J. Herbert, H. Meyer, and C. Altenhein-Haese, "Long-term leaching experiments fo full-scale cemented waste forms: Experiments and modeling," *Nuclear Technology*, vol. 129, pp. 101-118, 2000.
- [7] B. Kienzler, M. Schlieker, W. Schüßler, V. Metz, D. Hentschel, C. Nies, N. Kerner, A. Seither, H. Meyer, and G. Bracke, "Langzeit Auslaug- und Korrosionsexperimente an zementierten 1:1 Gebinden in der Schachanlage Asse: Probennahme und Auswertung 2001," Forschungszentrum Karlsruhe FZKA 6716, 2002.
- [8] B. Kienzler, M. Schlieker, A. Bauer, Volker Metz, and H. Meyer, "Langzeit Auslaug- und Korrosionsexperimente an zementierten 1:1 Gebinden in der Schachanlage Asse: Probennahme und Auswertung 2003," Forschungszentrum Karlsruhe FZKA 7059, 2004.
- [9] B. Kienzler, V. Metz, and A. Bauer, "Interactions of cemented waste forms with salt brines: Results after 25 years full-scale tests," in *5<sup>th</sup> International Seminar on Radioactive Waste Products (RADWAP 2008)*, Würzburg, Germany, 27 - 31 October, 2008.
- [10] J. Lützenkirchen, P. Vejmelka, V. Metz, and B. Kienzler, "Site specific sorption data for the Asse salt mine," in *The 9th International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation ICM '03*, Oxford, England, September 21 – 25, 2003.
- [11] J. Lützenkirchen, P. Vejmelka, B. Kienzler, G. Lösch, M. Schlieker, and V. Metz, "Teil 4: Standortsspezifische Sorptionsdaten," FZK-INE, Karlsruhe FZK-INE 015/03, 2004.
- [12] V. Metz, J. Lützenkirchen, P. Vejmelka, and B. Kienzler, "Np sorption onto cement and Mg(OH)<sub>2</sub>-based backfill material in altered q-brine," in *SOPRO 2004*, Forschungszentrum Karlsruhe, March 25-26, 2004, pp. 101-117.
- [13] V. Metz, B. Kienzler, J. Lützenkirchen, and P. Vejmelka, "Interaction of Np with cement corrosion products in Q-brine. ," in *Internat. Workshop Mechanisms and Modeling of Waste/Cement Interactions, May 8-12, 2005* Meiringen, CH, 2005.
- [14] W. Hauser, E. Smailos, and R. Köster, "Long-term corrosion behaviour of metallic drums for low- and medium level waste forms.," in *Internat. Symp on Conditioning of*

- Radioactive Wastes for Storage and Disposal*, Utrecht, NL, June 21-25, 1982, 1983, pp. 283-92.
- [15] W. Hauser, B. Fiehn, S. Drobnik, and D. Wieme, "Korrosionsverhalten lackbeschichteter Normalstahlbehälter bei der Zwischen- und Endlagerung schwachradioaktiver Abfälle," Kernforschungszentrum Karlsruhe KfK 4300, 1988.
- [16] P. Kreis and J. P. Simpson, "Hydrogen gas generation from the corrosion of iron in cementitious environments," in *Corrosion problems related to nuclear waste disposal* London: European Federation of Corrosion, 1992.
- [17] B. Förster and G. Marggraf, "Konzeptionelles Modell für die Verfüllung der Einlagerungsbereiche," in *Unterlagen zum Stilllegungskonzept des HMGU*, [http://www.endlager-asse.de/cln\\_137/DE/AsseService/HistorischeDokumente/Stilllegungskonzept.html](http://www.endlager-asse.de/cln_137/DE/AsseService/HistorischeDokumente/Stilllegungskonzept.html) Salzgitter: Bundesamt für Strahlenschutz (BfS), 2006.
- [18] W. Schussler, V. Metz, B. Kienzler, and P. Vejmelka, "Geochemically based source term assessment for the Asse salt mine - modelling and experimental results," *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, vol. 66, pp. A690-A690, 2002.
- [19] M. Altmaier, V. Metz, V. Neck, R. Müller, and T. Fanghänel, "Solid-liquid equilibria of  $Mg(OH)_2(cr)$  and  $Mg_2(OH)_3Cl_4H_2O(cr)$  in the system Mg-Na-H-OH-Cl- $H_2O$  at 25°C," *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol. 67, pp. 3595-3601, 2003.
- [20] M. Oestreich, "Untersuchungen zur Phasenbildung in basischen  $MgCl_2$ -Lösungen. Diplomarbeit," in *Chemie und Physik*. vol. Diplom Freiberg: TU Bergakademie 2009, p. 129.
- [21] V. Metz, W. Schüßler, P. Vejmelka, H. Hofmann, A. Bauer, and B. Kienzler, "Teil 5: Wirksamkeit eines Mg-Depots zur Kontrolle des Karbonatgehaltes in Salzlösungen und resultierende Fällungsprozesse," FZK-INE, Karlsruhe FZK-INE 003/02, 2002.
- [22] V. Metz, W. Schüßler, B. Kienzler, and T. Fanghänel, "Geochemically derived non-gaseous radionuclide source term for the Asse salt mine - assessment for the use of a  $Mg(OH)_2$ -based backfill material," *Radiochim. Acta*, vol. 92, pp. 819-825, 2004.
- [23] V. Metz, P. Vejmelka, B. Kienzler, C. M. Marquardt, A. Seibert, and T. Fanghanel, "The effect of a Mg-oxychloride-brucite backfill material on the Pu behavior in  $MgCl_2$ -NaCl-brines," *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, vol. 68, pp. A511-A511, 2004.
- [24] B. Kienzler, V. Metz, J. Lützenkirchen, E. Korthaus, and T. Fanghänel, "Geochemically based safety assessment," *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol. 44, pp. 470-476, 2007.
- [25] B. Buchheim, H. Meyer, and G. Stolzenberg, "Bestimmung eines Quellterms für chemische und chemotoxische Stoffe in den Einlagerungsbereichen der Schachanlage Asse mit radioaktiven Abfällen und Versatzstoffen," GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Forschungsbergwerk Asse <http://www.endlager-asse.de/cae/servlet/contentblob/610054/publicationFile/37368/buchheim2004.pdf>, 2004.
- [26] I. Grenthe, J. Fuger, R. J. M. Konings, R. J. Lemire, A. B. Muller, C. Nguyen-Trunc, and H. Wanner, *Chemical Thermodynamics of Uranium*: North Holland Publisher, 1992.
- [27] R. Guillaumont, T. Fanghänel, J. Fuger, I. Grenthe, V. Neck, D. A. Palmer, M. H. Rand, F. J. Mompean, M. Illemassene, C. Domenech-Orti, and K. Ben-Said, *Update on the Chemical Thermodynamics of Uranium, Neptunium, Plutonium, Americium and Technetium*: Elsevier Science, 2003.
- [28] R. J. Lemire, *Chemical Thermodynamics of Neptunium and Plutonium*: Elsevier Science, 2001.

- [29] J. A. Rard, M. H. Rand, G. Anderegg, and H. Wanner, *Chemical Thermodynamics of Technetium*: Elsevier Science, 1999.
- [30] R. J. Silva, G. Bidoglio, M. H. Rand, P. B. Robouch, H. Wanner, and I. Puigdomenech, *Chemical Thermodynamics of Americium*: Elsevier Publisher, 1995.
- [31] M. Rand, J. Fuger, I. Grenthe, V. Neck, and D. Rai, *Chemical Thermodynamics of Thorium* vol. 11. Paris: OECD Publications, 2008.
- [32] K. S. Pitzer, *Activity coefficients in electrolyte solutions*, 2. ed. Boca Raton, Fl., USA: CRC Press, Inc., 1991.
- [33] V. Neck, M. Altmaier, R. Müller, V. Metz, and B. Kienzler, "Teil 3: Löslichkeitsexperimente zur Absicherung der thermodynamischen Datenbasis," FZK-INE, Karlsruhe FZK-INE 007/03, 2003.
- [34] M. Altmaier, "Studie zur Abschätzung der standortspezifischen Pu- und Am-Löslichkeiten - Experimentelle Arbeiten zur Absicherung der Modellrechnungen und Maximalkonzentrationen für Plutonium und Americium. Abschlussbericht in Bearbeitung.," KIT-INE, Karlsruhe 2010.
- [35] G. R. Choppin, "Solution Chemistry of the Actinides," *Radiochim. Acta* vol. 32, p. 43 1983.
- [36] G. R. Choppin and E. N. Rizkalla, "Solution chemistry of actinides and lanthanides," in *Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths*. vol. 18 Gschneidner K.A.Jr and L. Eyring, Eds. Amsterdam: North Holland, 1994, p. 559.
- [37] C. F. Baes, Jr. and R. E. Mesmer, *The hydrolysis of cations*. New York: Wiley, 1976.
- [38] I. Grenthe and I. Puigdomenech, "Modelling in Aquatic Chemistry," Paris, F: Nuclear Energy Agency, 1997.
- [39] V. Neck and J. I. Kim, "An electrostatic approach for the prediction of actinide complexation constants with inorganic ligands - Application to carbonate complexes," *Radiochim. Acta*, vol. 88, pp. 815-822, 2000.
- [40] D. Rai, D. A. Moore, A. R. Felmy, G. R. Choppin, and R. C. Moore, "Thermodynamics of the  $\text{PuO}_2^+-\text{Na}^+-\text{OH}^--\text{Cl}^--\text{ClO}_4^--\text{H}_2\text{O}$  system: use of  $\text{NpO}_2^+$  Pitzer parameters for  $\text{PuO}_2^+$ ," *Radiochim. Acta*, vol. 89, pp. 491-498, 2001.
- [41] V. Neck, M. Altmaier, T. Rabung, J. Lutzenkirchen, and T. Fanghanel, "Thermodynamics of trivalent actinides and neodymium in  $\text{NaCl}$ ,  $\text{MgCl}_2$ , and  $\text{CaCl}_2$  solutions: Solubility, hydrolysis, and ternary Ca-M(III)-OH complexes," *Pure and Applied Chemistry*, vol. 81, pp. 1555-1568, 2009.
- [42] R. J. Silva, "The solubilities of crystalline neodymium and americium trihydroxides," Lawrence Berkeley Laboratory, Berkeley, California, USA Report LBL-15055, 1982.
- [43] S. Stadler and J. I. Kim, "Hydrolysis reactions of Am(III) and Am(V)," *Radiochim. Acta*, vol. 44/45, 1988.
- [44] W. Runde, "Chemisches Verhalten von drei- und fünfwertigem Americium in salinen  $\text{NaCl}$ -Lösungen," in *Institut für Radiochemie*. vol. PhD: Technische Universität München, 1993.
- [45] M. Altmaier, V. Neck, and T. Fanghanel, "Solubility and colloid formation of Th(IV) in concentrated  $\text{NaCl}$  and  $\text{MgCl}_2$  solution," *Radiochimica Acta*, vol. 92, pp. 537-543, 2004.
- [46] B. I. Nabivanets and L. N. Kudritskaya, "Hydroxocomplexes of thorium(IV)," *Ukr. Khim. Zh.*, vol. 30, p. 891 1964.

- [47] M. Altmaier, V. Neck, R. Muller, and T. Fanghanel, "Solubility of  $\text{ThO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{am})$  in carbonate solution and the formation of ternary Th(IV) hydroxide-carbonate complexes," *Radiochimica Acta*, vol. 93, pp. 83-92, 2005.
- [48] M. Altmaier, V. Neck, M. A. Denecke, R. Yin, and T. Fanghanel, "Solubility of  $\text{ThO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{am})$  and the formation of ternary Th(IV) hydroxide-carbonate complexes in  $\text{NaHCO}_3$ - $\text{Na}_2\text{CO}_3$  solutions containing 0-4 M NaCl," *Radiochimica Acta*, vol. 94, pp. 495-500, 2006.
- [49] I. Grenthe, "Thermodynamics in migration chemistry," *Radiochimica Acta*, vol. 55, pp. 425-432, 1991.
- [50] M. Altmaier, V. Neck, and T. Fanghanel, "Solubility of uranium(VI) in dilute to concentrated NaCl,  $\text{MgCl}_2$  and  $\text{CaCl}_2$  solutions," in *12<sup>th</sup> Internat. Symp. on Solubility Phenomena and Related Equilibrium Processes (ISSP 2006)*, TU Bergakademie Freiberg, July 23-28, 2006, 2006.
- [51] T. Fanghanel and V. Neck, "Aquatic chemistry and solubility phenomena of actinide oxides/hydroxides," *Pure Appl. Chem.*, vol. 74, p. 1895, 2002.
- [52] T. E. Eriksen, P. Ndalamba, D. Cui, J. Bruno, M. S. Caceci, and K. Spahiu, "Solubility of the redox sensitive radionuclides  $^{99}\text{Tc}$  and  $^{237}\text{Np}$  under reducing conditions in neutral to alkaline solutions. Effect of carbonate," Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB), Stockholm, Sweden Technical Report TR-93-18, 1993.
- [53] D. Rai, N. J. Hess, A. R. Felmy, and D. A. Moore, "A thermodynamic model for the solubility of  $\text{NpO}_2(\text{am})$  in the aqueous  $\text{K}^+$ - $\text{HCO}_3^-$ - $\text{CO}_3^{2-}$ - $\text{OH}^-$ - $\text{H}_2\text{O}$  system," *Radiochim. Acta*, vol. 84, pp. 159-169, 1999.
- [54] A. Kitamura and Y. Kohara, "Solubility of Np(IV) under carbonate conditions," Tokay Works, Japan Nuclear Fuel Cycle Development Institute, Muramatsu, Japan Report JNC TC8400 2001-006, 2001.
- [55] V. Neck, M. Altmaier, A. Seibert, J. I. Yun, C. M. Marquardt, and T. Fanghanel, "Solubility and redox reactions of Pu(IV) hydrous oxide: Evidence for the formation of  $\text{PuO}_{2+x}(\text{s, hyd})$ ," *Radiochimica Acta*, vol. 95, pp. 193-207, 2007.
- [56] V. Neck, M. Altmaier, and T. Fanghanel, "Thermodynamic data for hydrous and anhydrous  $\text{PuO}_{2+x}(\text{S})$ ," *Journal of Alloys and Compounds*, vol. 444, pp. 464-469, 2007.
- [57] V. Neck, M. Altmaier, and T. Fanghanel, "Solubility of plutonium hydroxides/hydrous oxides under reducing conditions and in the presence of oxygen," *Comptes Rendus Chimie*, vol. 10, pp. 959-977, 2007.
- [58] M. Altmaier, V. Neck, J. Lutzenkirchen, and T. Fanghanel, "Solubility of plutonium in  $\text{MgCl}_2$  and  $\text{CaCl}_2$  solutions in contact with metallic iron," *Radiochimica Acta*, vol. 97, pp. 187-192, 2009.
- [59] C. Lierse and J. I. Kim, "Chemisches Verhalten von Plutonium in natürlichen aquatischen Systemen: Hydrolyse, Carbonatkomplexierung und Redoxreaktionen," Inst. Für Radiochemie, Technische Universität München Report RCM-02286,, 1986.
- [60] K. Fujiwara, H. Yamana, T. Fujii, and H. Moriyama, "Solubility product of plutonium hydrous oxide," *Journal of Nuclear Fuel Cycle and Environment*, vol. 7, pp. 17-23, 2001.
- [61] B. Brendebach, M. Altmaier, J. Rothe, V. Neck, and M. A. Denecke, "EXAFS study of aqueous Zr(IV) and Th(IV) complexes in alkaline  $\text{CaCl}_2$  solutions:  $\text{Ca}_3[\text{Zr}(\text{OH})_6]^{4+}$  and  $\text{Ca}_4[\text{Th}(\text{OH})_8]^{4+}$ ," *Inorganic Chemistry*, vol. 46, pp. 6804-6810, 2007.
- [62] B. Brendebach, "persönliche Mitteilung," Karlsruhe: KIT-INE, 2009.
- [63] T. Yamaguchi, Y. Sakamoto, and T. Ohnuki, "Effect of the complexation on solubility of Pu(IV) in aqueous carbonate system," *Radiochim. Acta*, vol. 66/67, pp. 9-14, 1994.

- [64] R. E. Meyer, W. D. Arnold, F. I. Case, and G. D. O'Kelley, "Solubilities of Tc(IV) Oxides," *Radiochimica Acta*, vol. 55, pp. 11-18, 1991.
- [65] T. E. Eriksen, P. Ndalamba, J. Bruno, and M. Caceci, "The solubility of  $TcO_2 \cdot nH_2O$  in neutral to alkaline solutions under constant  $p_{CO_2}$ ," *Radiochim. Acta*, vol. 58/59, pp. 67-70, 1992.
- [66] J. A. Rard, M. H. Rand, G. Anderegg, and H. Wanner, *Chemical Thermodynamics of Technetium*. Amsterdam: Elsevier Science B.V., 1999.
- [67] B. Kienzler, P. Vejmelka, and V. Metz, "Near field radionuclide concentrations: sorption or solubility constrained ?," in *ICEM'01*, Brügge, 2001.
- [68] K. Gompper and P. Vejmelka, "Nuklidmigration im Deckgebirge des Endlagers für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM). Teil 1: Sorption im Grubengebäude," 1998, pp. FZK-INE 20/98.
- [69] R. Dayal and E. J. Reardon, "Carbon-14 behaviour in a cement-dominated environment: Impacts for spent Candu resin waste disposal," *Waste Management*, vol. 14, pp. 457-466, 1994.
- [70] R. Dayal and E. J. Reardon, "Cement-based engineered barriers for carbon-14 isolation," *Waste Management*, vol. 12, pp. 189-200, 1994.
- [71] K. Noshita, T. Nishi, M. Matsuda, and T. Izumida, "Sorption of carbon-14 by hardened cement paste," in *Mat. Res. Soc. Proc.*, 1996, pp. 435-442.
- [72] K. Noshita, T. Nishi, M. Matsuda, and T. Izumida, "Sorption mechanism of carbon-14 by hardened cement paste.," in *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, 1996, pp. 435-442.
- [73] W. Bode, "Permeabilitätsmessungen an Sedimenten des Röt (so) von der Asse," Institut für Tief Lagerung, Abt. für Endlagersicherheit GSF - Bericht IFT 6/87, 1987.
- [74] H. Batsche, W. Bode, R. Sobott, and C. von Stempel, "Permeability measurements on low permeable sedimentary rocks performed in situ and in a high-pressure laboratory," pp. persönliche Mitteilungen, pp. 99-111.
- [75] W. Bode and e. al., "Standort- und Sicherheitsuntersuchungen für das Salzbergwerk Asse sowie ingenieurtechnische Entwicklungen GSF-Bericht 31/90," GSF, Institut für Tief Lagerung TL 35/90, 06.1990 1990.
- [76] C. Wolfrum, D. Klotz, and W. Bode, "Bestimmung des Sorptions-/Desorptionsverhaltens aus gewählter Radionuklide an Sedimentgesteinsproben des Asse-Deckgebirges," GSF GSF-Bericht 25/88, 1988.
- [77] W. Bode and C. Wolfrum, "Retardation of dissolved radionuclides in consolidated sedimentary rocks. The influence of  $MgCl_2$  brine," in *Proceedings of the 6<sup>th</sup> International Symposium on Water-Rock Interaction, Malvern, 3-8 August 1989*, 1989.



## **Anhang 2**

### Schachtanlage Asse II Radioökologisches Modell zur Berücksichtigung der gekoppelten Migration von Tochternukliden

Autor: R. Gellermann (FUGRO-HGN GmbH)



**Schachtanlage Asse II**  
**Radioökologisches Modell zur Berücksichtigung**  
**der gekoppelten Migration von Tochternukliden**

Sitz der Gesellschaft:  
Grimmelallee 4  
99734 Nordhausen  
Geschäftsführer:  
Dr. Uta Alisch  
Dr. Volker Ermisch  
Ralf Trapphoff  
Telefon 03631 657-0  
Telefax 03631 657400  
info@fugro-hgn.de  
www.fugro-hgn.de  
Amtsgericht Jena  
HRB-Nr. 400576  
Finanzamt Mühlhausen  
Steuernummer  
157/108/09108  
Ust-IdNr.: DE 150 375 679  
Deutsche Bank AG  
Nordhausen  
Konto Nr. 2207 355  
BLZ 820 700 00  
BIC: DEUTDE8E  
IBAN: DE 74 8207 0000 0220 7355 00  
Commerzbank Nordhausen  
Konto Nr. 600 64 64  
BLZ 820 400 00  
BIC: COBADEFFXXX  
IBAN: DE 17 8204 0000 0600 6464 00

**Auftraggeber:** Öko-Institut e.V.  
Büro Darmstadt  
Rheinstraße 95  
64295 Darmstadt

**Auftragnehmer:** FUGRO-HGN GmbH  
Büro Braunschweig  
Pillmannstraße 10  
38112 Braunschweig  
Tel.: 0531-23 17 03 00  
Fax: 0531-23 17 03 09  
e-mail: braunschweig@fugro-hgn.de

**Bearbeiter:** Dr. Rainer Gellermann

**Kurztitel:** Asse, Migration  
**Komm.-Nr.:** 4.40.701.0.5 - 40110  
FUGRO-HGN GmbH

**Bestätigt:**



.....  
Dr. Rainer Gellermann  
Geschäftsbereichsleiter Umweltgeophysik und Strahlenschutz

**Datum:** Braunschweig, 30.09.2010

**Verteiler:** 1 x Auftraggeber  
1 x FUGRO-HGN GmbH

## Inhaltsverzeichnis

1	Veranlassung und Aufgabenstellung .....	4
2	Grundlagen .....	4
3	Modelle der Radionuklidmigration .....	7
3.1	Elementarprozesse der Migration und Eigenschaften des Migrationsraumes „Grundwasserleiter“ .....	7
3.2	Grundgleichungen.....	10
3.2.1	Prozessebenen .....	10
3.2.2	Prozessebene 1: Trägermedium .....	11
3.2.3	Prozessebene 2: Transport und Umwandlung im Migrationsraum .....	11
3.2.4	Prozessebene 3: Wasser-Gesteins-Wechselwirkung.....	14
3.3	Migration in einem endlich mächtigen Grundwasserleiter .....	16
3.4	Modellfall „isolierte Migration“ .....	18
3.5	Modellfall „gekoppelte Migration“ .....	19
3.6	Grenzen und mögliche Weiterentwicklungen des Modells .....	21
4	Praktische Umsetzung .....	23
4.1	Methodik .....	23
4.2	Analyse von Anwendungsgrundlagen für den Standort Asse .....	24
4.3	Anwendungsbeispiele für den Standort Asse .....	26
5	Ergänzende Hinweise .....	30
6	Zusammenfassung .....	31
7	Literatur .....	32

## Tabellenverzeichnis

Tabelle 2-1:	Dosisrelevante Radionuklide des Asse-Inventars, die zu radioaktiven Zerfallsreihen gehören .....	6
Tabelle 2-2:	Verteilungskoeffizienten für Zerfallsreihennuklide in geologischen Schichten der Asse. Aus [1] .....	6
Tabelle 3-1:	Porenanteile von Lockergesteinen (nach Busch, Luckner, Thiemer 1993) ergänzt um orientierende Durchlässigkeitsbeiwerte (Busch und Luckner, 1972) und scheinbare Retardationsfaktoren .....	9
Tabelle 3-2:	Modellansätze für die Wasser-Gesteins-Wechselwirkung .....	15
Tabelle 4-1:	Gesteinsdaten zur Berechnung von Retardationsfaktoren nach [1].....	25
Tabelle 4-2:	Migrationsreichweiten für die jeweils langlebigsten dosisrelevanten Radionuklide eines chemischen Elementes aus dem Inventar der Asse bei einer Fließgeschwindigkeit (Abstandsgeschwindigkeit) von 1 m/a .....	25

Tabelle 4-3:	Verhältnswerte der Ingestionsdosis Trinkwasser im Standardmodell / Modell der gekoppelten Migration. Modellannahme: Thorium unretardiert ( $R(\text{Th})=1$ ), andere Nuklide retardiert nach Daten aus Anlage 1, Formation Oberer Buntsandstein. ....	27
Tabelle 4-4:	Verhältnswerte der Ingestionsdosis Trinkwasser im Standardmodell / Modell der gekoppelten Migration. Modellannahme: Thorium retardiert ( $R(\text{Th})=1,21\text{E}5$ ); andere Nuklide retardiert nach Daten aus Anlage 1, Formation Oberer Buntsandstein. ....	28

## Abbildungsverzeichnis

Abbildung 2-1:	Radioaktive Zerfallsreihen unter Einschluss von Transuranen dargestellt als Massezahlen der Nuklide.	5
Abbildung 3-1:	Kompartimentmodell des Migrationsraumes „Grundwasserleiter“ und darin ablaufende Prozesse der Stoff(um)verteilung	8
Abbildung 3-2:	Schematische Darstellung der Modellfälle „Isolierte Migration“ (links) und „gekoppelte Migration“ (rechts) für Nuklide der Th-232-Reihe	18
Abbildung 4-1:	Zeitlicher Verlauf einer modellierten U-233 Konzentration in einem 240 m von einer Punktquelle entfernten Brunnen. Abstandsgeschwindigkeit 1 m/a; $D_x = 1\text{E-}5 \text{ m}^2/\text{s}$ . Mittlere Retardation = 50.	29
Abbildung 4-2:	Zeitlicher Verlauf einer modellierten Th-232-Konzentration in einem 240 m von einer Punktquelle entfernten Brunnen. Abstandsgeschwindigkeit 1 m/a; $D_x = 1\text{E-}5 \text{ m}^2/\text{s}$ . Mittlere Retardation = 100.000	29

## Anlagenverzeichnis

Anlage 1	Migrationsparameter
Anlage 2	Berechnungen

## 1 Veranlassung und Aufgabenstellung

Das Öko-Institut Darmstadt wurde im Rahmen der Unterstützung des BMU bei der Aufsicht über Betrieb und Stilllegung der Schachanlage Asse II mit der Neuberechnung der Auswirkungen eines auslegungsüberschreitenden Lösungszutritts beauftragt. In diesem Zusammenhang sind auch Modellrechnungen für die Ausbreitung von Radionukliden der (natürlichen) Zerfallsreihen im Grundwasser erforderlich.

FUGRO-HGN wurde vom Öko-Institut beauftragt, ein Modell für die radioökologische Modellierung der Grundwasser-Migration von Zerfallsreihen auszuarbeiten.

Der folgende Bericht bezieht sich auf einen internen Zwischenbericht des Öko-Institutes [1]. Dieser Zwischenbericht wurde mit den Ergebnissen dieser Arbeit ergänzt und überarbeitet. Daher müssen die Verweise dieses Berichtes auf die Literatur [1] nicht mit den entsprechenden Stellen im Abschlussbericht des Öko-Institutes übereinstimmen.

## 2 Grundlagen

Die Berechnungen des ÖKO-Institutes [1] zum Transports von Radionukliden im Deckgebirge der Asse gehen von einer Transportgleichung für eine Linienquelle der Länge  $h$  (mit gleichförmiger Konzentration in  $z$ -Richtung) bei impulsförmiger Freisetzung, die unter Verweis auf eine Arbeit von Bonka (2004) wie folgt angegeben wird.

$$c = \frac{E_0}{4\pi \cdot t \cdot h \cdot (D'_x \cdot D'_y)^{\frac{1}{2}}} \cdot \exp\left[-\frac{(x - u'_a \cdot t)^2}{4D'_x \cdot t} - \lambda \cdot t\right] \cdot \exp\left[-\frac{y^2}{4D'_y \cdot t}\right] \quad \text{Gl. 2-1}$$

Dieser Transportgleichung liegt eine instationäre Dispersions-Konvektionsgleichung für einen impulsförmigen Stoffeintrag (Dirac-Impuls) der Aktivität  $E_0$  zu Grunde. Die Modellparameter  $D$  - Dispersionskoeffizient,  $u$  - Abstandsgeschwindigkeit sind durch Einrechnung der Retardation  $R$  reduziert, d.h. es gilt

$$D' = \frac{D}{R} \quad \text{und} \quad u'_a = \frac{u_a}{R} \quad \text{Gl. 2-2}$$

Der Retardationsfaktor mit Porenzahl  $n$

$$R = 1 + \frac{1-n}{n} \cdot \rho_B \cdot K_d \quad \text{Gl. 2-3}$$

beschreibt die Verzögerung des Transportprozesses durch die Sorption von Teilen des Stoffinventars an sorbierenden Strukturen, die als Gleichgewichtsverteilung von gelöster und sorbierter Phase (Henry-Isotherme) mit dem Verteilungskoeffizienten  $k_d$  modelliert wird.

Der Modellraum für die Ableitung der Gl. 2-1 ist in z-Richtung begrenzt, so dass  $dc/dz(z=0)$  oder  $dc/dz(z=h)$  für alle Werte  $x, y = 0$  ist.

In [1] wird für Störungszonen vom Grubengebäude Asse bis zu oberflächennahen Grundwasserleitern eine Länge von 240 m (Pfad I) und 420 m (Pfad II) und eine Mächtigkeit von 1 m angesetzt.

Berechnungen zum Radionuklidtransport mit dem Grundwasser wurden in [1] für C-14, Cl-36, Se-79, Sr-90, Tc-99, I-129, Cs-137, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Th-232, U-234, U-238, Np-237 und Am-241 durchgeführt. Von diesen Radionukliden sind Pu-238, Pu-239, Pu-240, Th-232, U-234, U-238, Np-237 und Am-241 Teil von Zerfallsreihen, in denen neben weiteren (kurzlebigeren) Radionukliden der entsprechenden Elemente auch Nuklide der Elemente Pa, Ac, Ra, Rn, Po, Pb sowie mit untergeordneter Bedeutung bei Untersuchungen zur Migration im Grundwasser auch Fr, At, Bi und Tl vorkommen. Eine Übersicht über die Nuklide der Zerfallsreihen unter Einschluss der Transurane zeigt Abbildung 2-1.

	U-238 Reihe (4n+2)						Th-232 Reihe (4n)				U-235 Reihe (4n+3)					Np-237 Reihe (4n+1)					
Cf			250				252					251					249				
Bk													247								
Cm	250		246				248	244				247				245					
Am		246											243				241				
Pu	246		242				244	240				243		239		241					
Np								240				239				237					
U			238		234		240	236				235					233				
Pa				234									231			233					
Th			234		230			232	228			231		227			229				
Ac									228				227					225			
Ra					226			228	224					223			225				
Fr												(223)						221			
Rn					222				220				219								
At																		217			
Po					218		214	210			216	212			215	(211)			213		
Bi						214		210				212				211			213		209
Pb					214		210	206			212		208		211		207		209		
Tl										208					207					(205)	

Abbildung 2-1: Radioaktive Zerfallsreihen unter Einschluss von Transuranen dargestellt als Massezahlen der Nuklide.

Grün: natürlich vorkommende Radionuklide. Gelb: Künstliche Radionuklide. Grau: Mutternuklide und Endglieder der natürlichen Zerfallsreihen.  $\alpha$ -Umwandlungen: Senkrechte Striche,  $\beta$ -Umwandlungen: Diagonale Folgen gleicher Massezahl.

Von diesen Radionukliden können diejenigen außer Betracht bleiben, die aufgrund geringer Dosiskoeffizienten keine wesentliche Dosis verursachen. Als dosisrelevante Radionuklide bei einer Migration von Zerfallsreihen verbleiben die in Tabelle 2-1 mit den jeweiligen Halbwertszeiten (HWZ) aufgeführten Nuklide.

Angaben zu den Sorptionsskoeffizienten in den geologischen Schichten der Asse sind in Tabelle 2-2 zusammengestellt. Diese Angaben zeigen, dass es zwischen den einzelnen Radionukliden erhebliche Unterschiede in der Sorption und damit auch in der Retardation gibt.

Tabelle 2-1: Dosisrelevante Radionuklide des Asse-Inventars, die zu radioaktiven Zerfallsreihen gehören

Nuklid	HWZ in a	Nuklid	HWZ in a	Nuklid	HWZ in a	Nuklid	HWZ in a
Cm-250	11000	Cm-248	3,40E+05	Cm-247	1,70E+07	Cm-245	8500
Cm-246	4700	Cm-244	18,1	Am-243	7400	Pu-241	14,4
Pu-246(*)	2,99E-02	Pu-244	8,30E+07	Pu-239	2,40E+04	Am-241	432,6
Pu-242	3,80E+05	Pu-240	6600	U-235	7,00E+08	Np-237	2,10E+06
U-238	4,40E+09	U-236	2,34E+7	Pa-231	3,30E+04	Pa-233(*)	7,40E-02
U-234	2,50E+05	Th-232	1,40E+10	Ac-227	21,8	U-233	1,60E+05
Th-230	7,90E+03	Ra-228	5,8	Ra-223	3,12E-02	Th-229	7900
Ra-226	1600	Th-228	1,9			Ra-225(*)	4,05E-02
Pb-210	22,3	Ra-224	0,010			Ac-225	2,74E-02
Po-210	0,379						

(\*) geringe radiologische Relevanz, niedrige Dosiskoeffizienten

Tabelle 2-2: Sorptionsskoeffizienten für Zerfallsreihennuklide in geologischen Schichten der Asse. Aus [1]

Mittlere Sorptionskoeffizienten im Deckgebirge der Schachanlage Asse ( $k_d$ ) [ml/g]						
Gestein	mo	mm2	mm	mu	mu 1-3	so
Po	Keine Angaben					
Pb	140	50	70	75	75	74
Ra	138	39	50	60	125	5830
Ac	2000	311	140	227	400	676
Th	Keine Angaben					
Pa	10000	4000	3000	4000	4000	12718
U	15	0,5	4	3,5	3	2,4
Np	1500	120	540	870	280	339
Pu	6000	361	3000	2000	1000	5866
Am	10000	900	10000	10000	5000	13182
Cm	1000	217	4000	438	500	125

Entscheidend für die zu berechnenden Expositionswerte einer Referenzperson/-personengruppe ist die Konzentration der betrachteten Radionuklide an einem Entnahmeort (in der Regel ein Brunnen). In den üblichen radioökologischen Modellen wird die Konzentration von Tochternukliden aus den säkularen Gleichgewichten von Zerfallsreihen berechnet. Dieser Ansatz ist weder physikalisch zutreffend noch konservativ. Da für das Endlager Asse die Beiträge von Tochternukliden der Zerfallsreihen erheblichen Einfluss auf die Ergebnisse von radioökologischen Modellierungen der Biosphäre haben, wird in dieser Arbeit ein Modellkonzept abgeleitet, mit dem die Migration von Tochternukliden unter Berücksichtigung der Sorption modelltechnisch besser beschrieben werden kann.



### **3 Modelle der Radionuklidmigration**

#### **3.1 Elementarprozesse der Migration und Eigenschaften des Migrationsraumes „Grundwasserleiter“**

Die Migration von Radionukliden in einem Grundwasserleiter ist ein Stofftransport in einem Mehrphasensystem, das im Allgemeinen eine gasförmige, flüssige (hier: Wasser) und feste Phase enthält. Diese Phasen sind in der Natur stets Mischphasen, die aus einer Vielzahl von Komponenten zusammen gesetzt sind. Der Gesamtprozess „Migration“ ist daher ein Ergebnis von zahlreichen Teilprozessen, die innerhalb und zwischen den Phasen stattfinden. Die sachgerechte Nutzung von physikalischen Modellen der Migration ausgewählter Komponenten dieses Systems, wie es Radionuklide darstellen, erfordert Klarheit über die in diesem Modell enthaltenen Vereinfachungen und Abstraktionen.

Auf mikroskopischer Ebene ist die Migration von Radionukliden in ihrer konkreten chemischen Form als Atom (z.B. Radon), als Bestandteil von gelösten Molekülen, Komplexverbindungen oder Kolloiden oder als Bestandteil der Gesteinsmatrix zu betrachten. In dieser konkreten chemischen Form wechselwirken die Wasserinhaltsstoffe untereinander sowie mit dem Mineralbestand der festen Phase. Modelle, die die dabei ablaufenden Stoffumwandlungen und die chemische Form von Stoffen beschreiben sind z.B. die Reaktionsmodelle PHREEQC, MINTEQ, u.a.

Geht man zu einer makroskopischen Betrachtungsebene über, so kann man den Migrationsprozess als Transport von einzelnen Radionukliden in einem Trägermedium (hier: Wasser) durch eine poröse Matrix auffassen, der durch Einflüsse von und Wechselwirkungen mit der Matrix beeinflusst wird. Dabei wird unterstellt, dass sich jedes Radionuklid auf eine spezifische Weise gleich verhält, d.h. in einer abstrakten, aber gleichen chemischen Form vorliegt. Kenngröße für das Radionuklid „i“ ist die zugehörige Aktivitätskonzentration  $C_i$ .


Für die im Weiteren zu betrachtende Ausbreitung eines Radionuklids  $i$  mit der Konzentration  $C_i$  in einem Grundwasserleiter (oder einer analogen, grundwasserleitenden Struktur, z.B. einer Störungszone) wird ein Zweiphasenmodell genutzt. Das Zweiphasenkonzept geht davon aus, dass alle Stoffe im Untergrund entweder einer mobilen fluiden Phase oder einer immobilen Matrix zugeordnet werden können. Zwischen beiden Phasen kommt es zu Wechselwirkungsprozessen, durch die die Ausbreitung von gelösten Stoffen beeinflusst, in der Regel verzögert (retardiert) wird.

Für eine genauere Betrachtung ist es allerdings notwendig, den Zweiphasenraum weiter zu differenzieren. Eine schematische Darstellung des Migrationsraumes zeigt Abbildung 3-1. In diesem Modell wurde die Betrachtung einer dritten Phase (z.B. Gasphase) ausgeklammert.

Der mit Wasser erfüllte Porenraum gliedert sich in den durchströmten / durchströmbaren Porenraum (Grundwasser, mobil) und den mit Haftwasser erfüllten Porenraum (Grundwasser, immobil). Die generelle Fließrichtung der Konvektion wird im Weiteren als x-Richtung bezeichnet.

Das Feststoffgerüst des Matrixgesteins kann in die beiden Kompartimente „sorptionsaktive Oberflächen“ und Feststoffvolumen der Minerale bzw. Mineralgemische (=Gesteine) unterschieden werden.

Abbildung 3-1: Kompartimentmodell des Migrationsraumes „Grundwasserleiter“ und darin ablaufende Prozesse der Stoff(um)verteilung

Grundwasser, mobil (W)	Konvektion, Diffusion, (Dispersion)  <span style="border: 1px solid black; padding: 2px;">x</span>
Grundwasser, immobil (Haftwasser) (HW)	Diffusion
Feststoffoberflächen, sorptionsaktiv (S)	Sorption-Desorption, (Rückstoßejektion)
Feststoffvolumen (Minerale, Gesteine) (R)	Lösung-Fällung, (Rückstoßejektion)

Zwischen diesen vier Kompartimenten des Migrationsraumes verteilt sich ein in das System von außen eingetragener Stoff „i“ über die Elementarprozesse Konvektion, Diffusion, Sorption-Desorption und Lösung-Fällung. Als besonderer Effekt tritt bei Radionukliden ggf. die Rückstoßejektion auf, die als Folge radiogener Produktion zu einer Mobilisierung (unter bestimmten Bedingungen auch zu einer Immobilisierung) von Tochter-nukliden führt.

Die Dispersion wirkt als Folge unterschiedlicher Konvektionsbahnen im System „Grundwasserleiter“ als skalenabhängiger Makroeffekt.

Für die Modellierung der Radionuklidmigration im Grundwasser sind folgende Eigenschaften des Migrationsraumes von besonderer Bedeutung:

- Das vom Wasser erfüllte Porenvolumen  $V^{(W)}$  in einen Volumenelement  $V$  charakterisiert den Gesamtporenanteil  $n$  mit  $n = V^{(W)} / V$ . Dieser Porenanteil wird bestimmt durch Laboranalysen (DIN EN 1936, DIN 52102).
- Mobil ist bei „normalen“ Druckverhältnissen nur das Wasser, welches sich in Grobporen mit Porendurchmessern über 10  $\mu\text{m}$  befindet. Der Anteil des mobilen Wassers in einem Volumenelement  $V$  wird als durchströmbarer Porenanteil  $n_{\text{durchströmbar}}$  bezeichnet. Dieser Porenanteil wird in der Regel bestimmt als entwässerbarer Porenanteil durch Pumpversuche oder andere hydraulische Feldtests. Er wird daher häufig als „effektiver Porenanteil“ („effektive Porosität“) bezeichnet.
- Der immobile Anteil von Wasser im porösen Matrixgestein (Haftwasser) besteht aus dem durch Kapillareffekte gebundenem Kapillarwasser, teilweise noch differenziert in eine unmittelbar an die (elektrisch negative) Mineraloberfläche angrenzende Adsorptionsschicht mit ausgerichteten Dipolen.
- Obwohl eine scharfe Trennung von mobilem und immobilem Wasser im Matrixgestein nicht existiert, ist es für die Praxis wichtig, den effektiven Porenraum für den jeweils zu betrachtenden Prozess möglichst klar zu bestimmen. Wie Tabelle 3-1 zeigt, unterscheiden sich beide Porenanteile umso mehr, je feinkörniger das Matrixgestein ist.

Tabelle 3-1: Porenanteile von Lockergesteinen (nach Busch, Luckner, Thiemer 1993) ergänzt um orientierende Durchlässigkeitsbeiwerte (Busch und Luckner, 1972) und scheinbare Retardationsfaktoren

Gestein / Erdstoffart	Gesamtporenanteil	Entwässerbarer Porenanteil	Durchlässigkeitsbeiwert $k_f$ in m/s	Scheinbarer Retardationsfaktor $R^*$
Sandiger Kies	0,25...0,35	0,20...0,25	$(0,3 - 5) 10^{-3}$	1,0 – 1,8
Kiesiger Sand	0,28...0,35	0,15...0,20	$(0,2 - 1) 10^{-3}$	1,4 – 2,3
Mittlerer Sand	0,30...0,38	0,10...0,15	$(1 - 4) 10^{-4}$	2 – 4
Schluffiger Sand	0,33...0,40	0,08...0,12	$(0,1 - 1) 10^{-4}$	3 – 5
Sandiger Schluff	0,35...0,45	0,05...0,10	$(0,1 - 5) 10^{-5}$	4 – 9
Toniger Schluff	0,40...0,55	0,03...0,08	$(0,01 - 5) 10^{-6}$	5 – 18
Schluffiger Ton	0,45...0,65	0,02...0,05	Ca. $10^{-8}$	9 – 33

Um den effektiven Porenraum des Radionuklidtransportes im Grundwasser zu bestimmen, ist die Verteilung von gelösten Stoffen zwischen Haftwasser und strömendem Wasser zu analysieren. Diese Verteilung kann in Analogie zur Membrandiffusion als Elektrodifffusion (s. [9]) behandelt werden. Um die Zeitkonstante des Konzentrationsausgleichs zwischen den beiden Kompartimenten abzuschätzen, kann man einfache Modelle für die Diffusion über ein Membran, z.B. als Modell zweier paralleler Platten im Abstand  $L$  betrachten. Die instationären Lösungen dieses Modells für die Veränderung der integralen Stoffmenge zwischen den Platten  $M$  in Abhängigkeit von der Zeit  $t$  bei einem stationären Gleichgewichtswert  $M_\infty$  haben die Form

$$\frac{M}{M_\infty} = 1 - f_0 \sum_{\nu=0}^{\infty} \alpha_\nu \cdot e^{-\frac{(2\nu+1)^2 \pi^2 D_{\text{diff}} t}{L^2}} \quad \text{Gl. 3-1}$$

(s. [10], [11])

Die für Abschätzungen ausreichende Zeitkonstante  $\tau$  ergibt sich damit zu

$$\tau = \frac{L^2}{(\pi^2 D_{\text{diff}})} \quad \text{Gl. 3-2}$$

In Anbetracht von Haftwasserdicken im Bereich von  $< 10 \mu\text{m}$  (Mittelporen bis Feinporen) und mit einem Diffusionskoeffizienten  $D_{\text{diff}} = 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$  ergeben sich in einem Porengestein Zeitkonstanten für den Konzentrationsausgleich zwischen strömendem Grundwasser und Haftwasser von deutlich weniger als 1 Sekunde. Obwohl diese Zeitkonstante in Anbetracht der nicht unbedingt räumlich modelladäquat verlaufenden realen Verteilung von Fein- und Grobporen deutlich zu gering ausfallen kann, zeigt sich doch, dass bei hinreichend langsamer Fließbewegung im Grundwasser in guter Näherung von einem Konzentrationsausgleich zwischen strömendem Grundwasser und direkt daran angrenzendes Haftwasser ausgegangen werden kann. **Als effektiver Migrationsraum für den Stofftransport ist in einem solchen Fall der gesamte Porenraum anzusehen.** Die Abstandsgeschwindigkeit eines idealen Tracers (z.B. von Tritium) ist daher bezogen auf die

hydraulische Porengeschwindigkeit  $v_P = v_f/n_{\text{durchströmbar}}$  verzögert. Dieser scheinbare Retardationseffekt (s. unten) kann bis zu einem Retardationsfaktor  $R^* = n/n_{\text{durchströmbar}} > 10$  reichen (s. Tabelle 3-1).

Andere Verhältnisse liegen vor, wenn signifikante Anteile des REV nicht im Kontakt zum mobilen Grundwasser stehen, diese Gesteine aber trotzdem Porosität aufweisen. Die dann auftretende „doppelte Porosität“ ist bei klüftigen Festgesteinen dann zu berücksichtigen, wenn größere Bereiche des Grundwasserleiters integral betrachtet werden. Wird die Modellanalyse wie im Fall von /Öko 2010/ auf eine Störungszone fokussiert, so ist es realistischer anzunehmen, dass dieser Bereich des geologischen Systems als Zerrüttungszone aufgebaut ist, in der der Gesteinszersatz der angrenzenden Schichten einen Porengrundwasserleiter konstituiert.

## 3.2 Grundgleichungen

### 3.2.1 Prozessebenen

Zur Modellierung des Migrationsprozesses eines chemisch nicht weiter in Einzelverbindungen differenzierten Radionuklids  $i$  in dem zuvor beschriebenen Migrationsraum sind 3 Prozessebenen zu analysieren:

**Prozessebene 1:** Strömung des Trägermediums Wasser im Grundwasserleiter.

**Prozessebene 2:** Transport und Umwandlung (Zerfall und radiogene Produktion) von Radionukliden im Migrationsraum.

**Prozessebene 3:** Verteilung von Radionukliden zwischen den Kompartimenten im Migrationsraum („Wasser-Gesteins-Wechselwirkung“).

Grundlage zur Ableitung der Modellgleichungen ist üblicherweise ein repräsentatives Einheitsvolumen (REV). Dieses idealisierte Volumenelement ist konzeptionell so angelegt, dass es klein gegen den zu betrachtenden Transportweg ist, aber groß ist im Vergleich zu Heterogenitäten in der inneren Struktur des Grundwasserleiters (also  $\gg$  Porendurchmesser aber ggf. auch groß gegen kleinräumige Strömungskanäle). Die daraus abzuleitenden Fragen der Skalierung führen in der praktischen Umsetzung auf die Frage der Repräsentanz von Parametern, mit denen das System modelliert wird.

Dieses REV hat das Volumen  $V$ , welches durch die beiden Kompartimente: Wasser (Index „W“), und das Feststoffvolumen (Index „R“) gefüllt ist. Normiert auf das Volumen  $V$  betragen die Anteile

(Wassererfüllter) Porenteil	$V^{(W)} / V = n$	Gl. 3-3
-----------------------------	-------------------	---------

(Achtung: als Gesamtporenraum zu modellieren! S. oben.)

Feststoffanteil	$V^{(R)} / V = 1-n$	Gl. 3-4
-----------------	---------------------	---------

### 3.2.2 Prozessebene 1: Trägermedium

Das dreidimensionale Strömungsmodell für dieses REV ist bei Vernachlässigung jeder Veränderung im Feststoffgerüst durch die Kontinuitätsgleichung gegeben, die die Erhaltung der normierten Fluidmasse ( $n \cdot \rho^{(w)}$ ) beschreibt:

$$\frac{\partial(n \cdot \rho^{(w)})}{\partial t} + \operatorname{div}(n \cdot \rho^{(w)} \cdot \vec{v}_p) = 0 \quad \text{Gl. 3-5}$$

Die Summanden dieser Gleichung stellen den Speicherprozess von Fluidmasse im REV  $\frac{\partial(n \cdot \rho^{(w)})}{\partial t}$  und den konvektiven Transport des Fluids selbst  $\operatorname{div}(n \cdot \rho^{(w)} \cdot \vec{v}_p)$  dar.

Der Vektor ( $n \cdot \vec{v}_p$ ) ist die fiktive (!) Filtergeschwindigkeit  $v_f$ , die über Bewegungsgleichungen, also das Darcy-Gesetz zu ermitteln ist. Die Größe  $\vec{v}_p$  ist die Porengeschwindigkeit im Gesamtporenraum  $n$ .

Geht man von einer zeitlich konstanten Dichte des Fluids (Wasser) und zeitlich unveränderlichen Porenanteilen aus, so besagt die Kontinuitätsgleichung, dass  $n \cdot \rho^{(R)} \cdot \vec{v}_p = \text{Konstant}$ , also  $\vec{v}_p = \vec{v}_f / n$  ist. Die Konvektionsgeschwindigkeit des Trägermediums Wasser in einem REV ändert sich daher bei ansonsten gleich bleibenden Bedingungen nur bei Änderungen des Porenanteils. Alle anderen Veränderungen der Fließgeschwindigkeit des Grundwassers sind als Folge von Druckveränderungen über das Darcy-Gesetz zu modellieren. Sie gehen ggf. als externe Bedingung in das Stofftransportmodell ein.

### 3.2.3 Prozessebene 2: Transport und Umwandlung im Migrationsraum

Für den Stofftransport ist eine der Kontinuitätsgleichung analoge Bilanz Modellgrundlage. Mit den Teilprozessen

$$[\text{Speicherprozesse}] + [\text{Transportprozesse}] + [\text{Umwandlungsprozesse}] = 0$$

Lautet die Stoffmengenbilanz für eine Aktivität  $A_i$  im REV ( $i$  – Radionuklid) dargestellt als Aktivitätsfluss  $J$  in Bq/s

$$\frac{\partial(A_i(x, y, z, t))}{\partial t} + \operatorname{div}[\hat{D} \cdot \operatorname{grad}(A_i(x, y, z, t)) + \vec{v}_{\text{migr}} \cdot A_i(x, y, z, t)] + \lambda_i \cdot A_i - \lambda_i \cdot A_{i-1} = 0 \quad \text{Gl. 3-6}$$

Oder bezogen auf die gesamte migrierende Aktivitätskonzentration  $C_i = A_i / V$

$$\frac{\partial(C_i(x, y, z, t))}{\partial t} + \text{div}[\hat{D} \cdot \text{grad}(C_i(x, y, z, t)) + \vec{v}_{\text{migr}} \cdot C_i(x, y, z, t)] + \lambda_i \cdot C_i - \lambda_i \cdot C_{i-1} = 0 \quad \text{Gl. 3-7}$$

Hier sind zusätzlich zu den bereits eingeführten Größen  $\hat{D}$  der Diffusions-Dispersionstensor und  $\vec{v}_{\text{migr}}$  der Vektor der Migrationsgeschwindigkeit. Außerdem wird mit i-1 das Vorgängernuklid von „i“ bezeichnet. Alle Parameter dieser Gleichung beziehen sich zunächst auf das Volumen V des REV und sind in dieser Form in der Regel nicht messbar. Messbare oder anderweitig ermittelbare Größen sind vielmehr:

- Die Zerfallskonstante  $\lambda_i$ .
- Die volumenbezogene Aktivitätskonzentration im Wasser  $C_i^{(W)} = A_i^{(W)}/V^{(W)}$
- Die massenbezogene spezifische Aktivität der Gesteinsmatrix  $a_i^{(R+S)} = [A_i^{(R)} + A_i^{(S)}] / m^{(R)}$
- Die Filtergeschwindigkeit  $v_f$
- Der (Gesamt-)Porenanteil  $n$
- Der nuklidabhängige Diffusionskoeffizient  $D_{\text{diff},i}$ , der für alle Richtungen gleich ist.
- Der nuklidunabhängige (GWL-abhängige) Dispersionskoeffizient  $D_{\text{disp}}$ , der in Strömungsrichtung  $x$  größer als in den Richtungen senkrecht dazu ist. Der Dispersionskoeffizient in Strömungsrichtung charakterisiert die „longitudinale Dispersion“, die dazu senkrechten Dispersionskoeffizienten charakterisieren die „transversale Dispersion“. Da die hydrodynamische Dispersion physikalisch auf einer Konvektion basiert, wird der Dispersionskoeffizient häufig beschrieben als

$$D_{\text{disp},x} = \delta_x \cdot v_P \quad \text{Gl. 3-8}$$

mit  $\delta_x$  – Longitudinale Dispersivität (in m) und  $v_P$  – Porengeschwindigkeit (in m/s)

$$D_{\text{disp},y} = \delta_y \cdot v_P \quad \text{Gl. 3-9}$$

mit  $\delta_y$ , (oder  $\delta_z$ ) – Transversale Dispersivität (in m) und  $v_P$  – Porengeschwindigkeit (in m/s)

Die Dispersivität ist skalenabhängig und nimmt mit der geometrischen Größe des von der Migration erfassten Fließweges  $X$  zu. In [2] wird als empirische Gleichung für die longitudinale Dispersivität  $\delta_x$  in Abhängigkeit von  $X$  angegeben:

$$\delta_x = 0,03 \cdot X^{0,3+X^{-0,075}} \quad \text{Gl. 3-10}$$

Bei Fließstrecken von 240 m sollte  $\delta_x$  daher ca. 6 m, bei 420 m ca. 8 – 9 m, bei Fließwegen von 1000 m ca. 14 – 15 m betragen. Die Peclet-Zahl für die Fließbewegungen errechnet sich damit zu 40 ( $X = 240$  m) bis 52 ( $X = 420$  m). Die in [1] in Anlehnung an Colenco [5] genutzten Dispersivitäten sind etwas größer, liegen aber in diesem Wertebereich.

Der Koeffizient der transversalen Dispersion kann nach [1] mit etwa 10 bis 20 % der longitudinalen Dispersion veranschlagt werden. In [1] wird mit einer noch kleineren transversalen Dispersion gerechnet, was in Bezug auf die Modellergebnisse konservativ überschätzend ist.

Bezieht man die Gl. 3-6 bzw. Gl. 3-7 auf einen konkreten Brunnen „B“ als Beobachtungsort ( $x_B; y_B; z_B$ ), wird die zeitliche Veränderung der Aktivitätskonzentration von den beiden Termen Transportterm und Umwandlungsterm bestimmt. Die Einflüsse dieser beiden Terme auf die zeitliche Veränderung der Radionuklidkonzentration an einem Beobachtungsort können wie folgt abgeschätzt werden:

- Die analytische Lösung der Dispersions-Konvektionsgleichung 2-1 zeigt, dass der differenzielle Transportterm  $div[\hat{D} \cdot grad(C_i(x, y, z, t) + \vec{v}_{migr} \cdot C_i(x, y, z, t))]$  mit der Funktion  $x e^{-kx^2}$  (Konvektionsterm) bzw.  $(\alpha x + \beta x^2) e^{-kx^2}$  (Dispersionsterm) kleiner wird (a, b, k - zusammengefasste, zeitabhängige Parameter). Durch die e-Funktion wird der Einfluss dieses Terms mit zunehmendem Abstand von einer Freisetzungsquelle immer kleiner.
- Die radioaktive Umwandlung wird ausschließlich durch die Zerfallskonstante bestimmt. Der Term wird umso größer, je kleiner die Halbwertszeit des jeweils betrachteten Nuklids ist.

Für einen Brunnen, der hinreichend weit von der Freisetzungsquelle entfernt ist, kann für hinreichend kurzlebige Radionuklide die Gl. 3-7 reduziert werden auf die gewöhnliche DGL.

$$\frac{d(C_i(x_B, y_B, z_B, t))}{dt} = -\lambda_i \cdot C_i(t) + \lambda_i \cdot C_{i-1}(t) \quad \text{Gl. 3-11}$$

Die Nuklidkonzentration an diesem Ort wird ausschließlich durch die Konzentration des Vorgängernuklids i-1 bestimmt und kann durch die bekannten rekursiven Gleichungen der Aktivitätsentwicklung in Zerfallsreihen beschrieben werden (s. z.B. Ivanovich und Harmon, 1992). Da dieses reduzierte Modell annimmt, dass die Zerfallskonstante  $\lambda_i$  groß ist, stellt sich zwischen Vorgänger- und Nachfolgernuklid relativ schnell ein Gleichgewicht ein, so dass in guter Näherung gesetzt werden kann:

$$C_i(t) = C_{i-1}(t) \quad \text{Gl. 3-12}$$

Zwischen Vorgänger- und Nachfolger liegt folglich in einem hinreichend weit von einer Quelle entfernten Brunnen ein Aktivitätsgleichgewicht vor. Dieser Ansatz wird üblicherweise benutzt, um Tochternuklide in Modellrechnungen zu berücksichtigen. Damit sind aber folgende Probleme verbunden:

- Die Voraussetzungen zur Anwendungen dieses einfachen Ansatzes, d.h. die „hinreichende“ Entfernung von einer Quelle oder das „hinreichend kurzlebige“ Radionuklid sind noch genauer zu klären.
- Die hier benutzte Aktivitätskonzentration  $C_i$  entspricht **nicht** der im Grundwasser, sondern der im gesamten Migrationsraum über alle vier Kompartimente (s. Kapitel 3.1) verteilten Aktivitätskonzentration.

ration. Diese Größe wird üblicherweise nicht gemessen. Sie ist nur für Nuklide, die nicht mit dem Gestein wechselwirken (z.B. Tritium oder Edelgase), der im Wasser gemessenen Konzentration gleich zusetzen. In allen anderen Fällen können die Konzentrationsunterschiede zwischen der Aktivität in der Fluidphase (Wasser) und der im Migrationsraum erheblich sein und sich um Größenordnungen unterscheiden.

- Bezieht man die Gleichgewichtskorrektur nach Gl. 3-12 ausschließlich auf die im Grundwasser gemessene (oder modellierte) Aktivitätskonzentration, so ist das Ergebnis keineswegs konservativ im Sinne einer gezielten Über- oder Unterschätzung von Konzentrationen im Wasser und damit der potentiellen Exposition.

Die Klärung, welche Aktivitätskonzentration im Grundwasser tatsächlich auftritt, muss über die Analyse der Wasser-Gesteins-Wechselwirkung erfolgen.

### 3.2.4 Prozessebene 3: Wasser-Gesteins-Wechselwirkung

Wie im Kapitel 3.1 gezeigt, verteilt sich eine migrierende Nuklidspezies im Grundwasser zwischen den Kompartimenten Wasser (Index W), Feststoffoberflächen, sorbiert (Index S) und Feststoffvolumen (Index R).

Die migrierende Aktivitätskonzentration  $C_i = A_i / V$  besteht folglich aus den Summanden

$$C_i = \frac{A_i^{(W)} + A_i^{(S)} + A_i^{(R)}}{V} = C_i^{(W)} n + F_i^{(S)} \rho^{(R)} + a_i^{(R)} \rho^{(R)} \quad \text{Gl. 3-13}$$

Mit den messbaren Größen  $C_i^{(W)}$  – volumenbezogene Aktivität im Wasser ( $\text{Bq/m}^3$ ),  $F_i^{(S)}$  – massebezogene sorbierte Aktivität der Feststoffoberflächen ( $\text{Bq/kg}$ ),  $a_i^{(R)}$  – massebezogene Aktivität des Gesteins ( $\text{Bq/kg}$ ) und den Gesteinsparametern (Gesamt-)Porenanteil  $n$  und Gesteins-Blockdichte  $\rho^{(R)}$  ( $\text{kg/m}^3$ )<sup>1</sup>.

Aufgeschlüsselt nach den drei Kompartimentaktivitäten lautet das Migrationsmodell von Gl. 3-7

$$\frac{\partial C_i^{(W)}}{\partial t} + \text{div}[\hat{D} \cdot \text{grad}(C_i^{(W)}) + \vec{v}_p \cdot C_i^{(W)}] + \lambda_1 (C_i^{(W)} - C_{i-1}^{(W)}) + \frac{j_i^{(WS)}}{n} + \frac{j_i^{(WR)}}{n} = 0 \quad \text{Gl. 3-14}$$

$$\frac{\partial F_i^{(S)}}{\partial t} + \lambda_1 (F_i^{(S)} - F_{i-1}^{(S)}) - \frac{j_i^{(WS)}}{\rho^{(R)}} = 0 \quad \text{Gl. 3-15}$$

$$\frac{\partial a_i^{(R)}}{\partial t} + \lambda_1 (a_i^{(R)} - a_{i-1}^{(R)}) - \frac{j_i^{(WR)}}{\rho^{(R)}} = 0 \quad \text{Gl. 3-16}$$

<sup>1</sup> Die Dichte in Gl. 2-2 ist die Dichte des kompakten Minerals / Gesteins, Es gilt:  $\rho^{(R)} = (1-n) \rho$



Mit den kompartimentbezogenen Wechselwirkungstermen  $j_i^{(WS)}$  – Aktivitätsfluss Wasser – sorbierte Phase und  $j_i^{(WR)}$  – Aktivitätsfluss Wasser – Gesteinsvolumen / Mineralphasen entsprechen diese drei partiellen Differentialgleichungen der Gl. 3-7.

Die Wasser-Gesteins-Wechselwirkung selbst kann mit unterschiedlichen mathematischen Ansätzen beschrieben werden. In Tabelle 3-2 sind einige gebräuchliche Ansätze zusammengestellt. In der Tabelle wurden die Nicht-Gleichgewichtsansätze der Wechselwirkung Wasser – Gesteinsvolumen (R) zugeordnet, während die Gleichgewichtsansätze für die Wechselwirkung Wasser – sorbierte Phase notiert wurden. Diese Zuordnung ist nur exemplarisch. Grundsätzlich kann jeder Wechselwirkungsansatz für beide Kompartimente, d.h. sorbierende Oberfläche und Gesteinsvolumen verwendet werden und muss im Einzelfall nuklidspezifisch begründet werden.

Tabelle 3-2: Modellansätze für die Wasser-Gesteins-Wechselwirkung

	<b>Nicht-Gleichgewichtsansätze</b>	<b>Gleichgewichtsansätze</b>
Linear	$j_i^{(WR)} = \rho^{(R)} e_i a_i^{(R)} - n r_i C_i^{(W)}$ $e_i$ – Geschwindigkeitskonstante der Lösung ( $s^{-1}$ ) $r_i$ – Geschwindigkeitskonstante der Fällung ( $s^{-1}$ )	$j_i^{(WS)} = 0$ $F_i^{(S)} = k_{d,i} \cdot C_i^{(W)}$ Henry-Isotherme mit Verteilungskoeffizient $k_d$ in $g/m^3$
Nichtlinear	$j_i^{(WR)} = \rho^{(R)} e_i a_i^{(R)} [1 - C_i^{(W)}/C_{S,i}^{(W)}] - n r_i C_i^{(W)} [1 - a_i^{(R)}/a_{S,i}^{(R)}]$ $C_{S,i}^{(W)}$ – Sättigungskonzentration im Wasser; $a_{S,i}^{(R)}$ – Sättigungswert der Sorption	$j_i^{(WS)} = 0$ $F_i^{(S)} = k_{d,i} \cdot C_i^{(W)} / (1 - K_{L,i} \cdot C_i^{(W)})$ Langmuir-Isotherme mit Verteilungskoeffizient $k_d$ in $g/m^3$ und Langmuir-Koeffizient $K_L$ in $m^3/Bq$
Nichtlinear		$j_i^{(WS)} = 0$ $F_i^{(S)} = k_{d,i} [C_i^{(W)}]^{n_i}$ Freundlich-Isotherme; $n_i$ – Freundlich Exponent

Der für die Radionuklidmigration gebräuchlichste Ansatz ist der Gleichgewichtsansatz (Henry-Isotherme). Wird angenommen, dass zwischen der sorbierten Aktivität des Matrixgesteins  $F_i^{(S)}$  (Bq/kg) und der Aktivitätskonzentration im Grundwasser  $C_i^{(W)}$  (Bq/L) eine Gleichgewichtsverteilung mit dem Verteilungskoeffizienten  $k_d$  ( $m^3/kg$ ) vorliegt:

$$F_i^{(S)} = k_{d,i} \cdot C_i^{(W)} \tag{Gl. 3-17}$$

und die im Gesteinsvolumen enthaltene Aktivität vernachlässigbar ist oder nicht mit dem Wasser wechselwirkt, so errechnet sich die gesamte migrierende Aktivität im Einheitsvolumen  $C_i$  (d.h. bei natürlichen Radionukliden: ohne die im Gesteinsvolumen selbst enthaltene Aktivität!) zu

$$C_i = n \cdot C_i^{(W)} + \rho^{(R)} \cdot F_i^{(S)} = n \cdot C_i^{(W)} \cdot \left( 1 + \frac{\rho^{(R)}}{n} \cdot k_{d,i} \right) = n \cdot C_i^{(W)} \cdot R_i \tag{Gl. 3-18}$$

Die volumenbezogene migrierende Gesamtaktivität eines Radionuklids ist in diesem Fall vollständig durch die im Wasser gelöste Aktivitätskonzentration  $C^{(W)}$ , den Retardationsfaktor  $R$  und den Porenanteil  $n$  bestimmt. **Sie kann abhängig von den Zahlenwerten von  $n$  und  $R$  größer oder kleiner als die im Wasser gelöste Aktivitätskonzentration sein!**

Das durch Gl. 3-13 beschriebene mobile Aktivitätsinventar eines Radionuklids entspricht bei natürlichen Radionukliden in der Regel nicht dem Gesamtinventar dieses Nuklids. Vielmehr ist ein wesentlicher Teil der Aktivität eines Gesteins im Innern der Matrix fest gebunden und wird nur langsam (in geologischen Zeiten) z.B. durch Verwitterung freigesetzt. Die plötzliche Freisetzung von Radionukliden aus diesem Inventar als Folge von anthropogen verursachten Milieuänderungen (z.B. Versauerungen / pH-Wert Veränderungen oder Veränderungen der Gesamtmineralisation / Versalzungen) wird als induzierte Mobilisierung bezeichnet und muss ggf. gesondert modelliert werden.

Soweit nur die (inkrementale) Ausbreitung eines von Außen in gelöster Form in einen Grundwasserleiter eingetragenen Aktivitätsinventars betrachtet werden muss, ist das oben beschriebene Migrationsmodell hinreichend.

Das DGI-System 3-14, 3-15 lautet in bilanztreuer Notation

$$n \cdot \frac{\partial C_i^{(W)}}{\partial t} + n \cdot \text{div}[\hat{D} \cdot \text{grad}(C_i^{(W)}) + \vec{v}_p \cdot C_i^{(W)}] + n \cdot \lambda_i (C_i^{(W)} - C_{i-1}^{(W)}) = 0 \quad \text{Gl. 3-19}$$

$$\rho^{(R)} k_{d,i} \frac{\partial C_i^{(W)}}{\partial t} + \rho^{(R)} \cdot \lambda_i (k_{d,i} \cdot C_i^{(W)} - k_{d,i-1} \cdot C_{i-1}^{(W)}) = 0 \quad \text{Gl. 3-20}$$

Und in der Addition beider Gleichungen:

$$n \cdot R_i \frac{\partial C_i^{(W)}}{\partial t} + n \cdot \text{div}[\hat{D} \cdot \text{grad}(C_i^{(W)}) + \vec{v}_p \cdot C_i^{(W)}] + n \cdot \lambda_i \cdot (R_i \cdot C_i^{(W)} - R_{i-1} \cdot C_{i-1}^{(W)}) = 0 \quad \text{Gl. 3-21}$$

### 3.3 Migration in einem endlich mächtigen Grundwasserleiter

Zur Lösung der Differenzialgleichung für das in den vorhergehenden Kapiteln abgeleitete Modell der Migration eines ausschließlich durch Sorption mit der festen Phase wechselwirkenden Radionuklids sind die Geometrie des Strömungsfeldes (Randbedingungen) sowie der Anfangszustand der Radionuklidausbreitung festzulegen.

Für den Standort Asse und die dort zu betrachtenden Ausbreitungswege von Salzlösungen aus dem Bergwerk werden in [1] folgende vereinfachte Strukturen betrachtet:

- Ausbreitung der Radionuklide in einer durchlässigen Störungszone mit endlicher Mächtigkeit  $h$ , die mit Zersatz unterschiedlicher Gesteine hinterfüllt ist. Quellterm als kleinräumige Zone (Linienquelle über die Störungszone) ausgebildet. (Verdünnende) Zusickerungen von Außen in die Störungszone sind vernachlässigbar.

Mit

$$\frac{\partial C_i^{(w)}(x, y, z, t)}{\partial z} = 0$$

Und der über die Filtergeschwindigkeit  $v_f$  gemittelten profilbezogenen Strömungsrate  $q$  ( $m^2/s$ ) quer über das Strukturelement

$$q = \int_0^h v_f(z) \cdot dz = n \cdot \int_0^h v_p(z) \cdot dz \quad \text{Gl. 3-22}$$

lautet die Transportgleichung für einen ausschließlich durch Sorption wechselwirkendes Radionuklid (Gl. 3-14) in einem 2-dimensionalen Modell der Mächtigkeit  $h$  [2,3]

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -D'_x \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} - u' \cdot \frac{\partial C_i}{\partial x} - \lambda_i \cdot \left( C_i - \frac{R_{i-1}}{R_i} \cdot C_{i-1} \right) \quad \text{Gl. 3-23}$$

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -D'_y \cdot \frac{\partial^2 C_i}{\partial y^2} - \lambda_i \cdot \left( C_i - \frac{R_{i-1}}{R_i} \cdot C_{i-1} \right) \quad \text{Gl. 3-24}$$

Hierbei sind

$$D'_x = \frac{D_x}{R} \quad D'_y = \frac{D_y}{R} \quad u' = \frac{q/(h \cdot n)}{R} \quad \text{Gl. 3-25}$$

Dieses Gleichungssystem gilt für eine in sich homogene Struktur mit dem Porenanteil  $n$  und konstanten Parametern  $D$ ,  $u$ ,  $\lambda$ . Der Parameter  $u'$  in Gl. 3-25 gibt die Abstandsgeschwindigkeit an und bezieht sich dabei auf die hydraulische Filtergeschwindigkeit bzw. die damit abgeleitete Strömungsrate  $q$ .

Lösungen des Gleichungssystems für Radionuklide, die nicht über ebenfalls migrierende Vorgängernuklide nachgebildet werden, beschreiben eine „**isolierte Migration**“, Lösungen, die die Nachbildung von Tochter-nukliden auch in der sorbierten Phase(!) berücksichtigen, eine „**gekoppelte Migration**“. Beide Modellfälle sind in Abbildung 3-2 schematisch dargestellt.

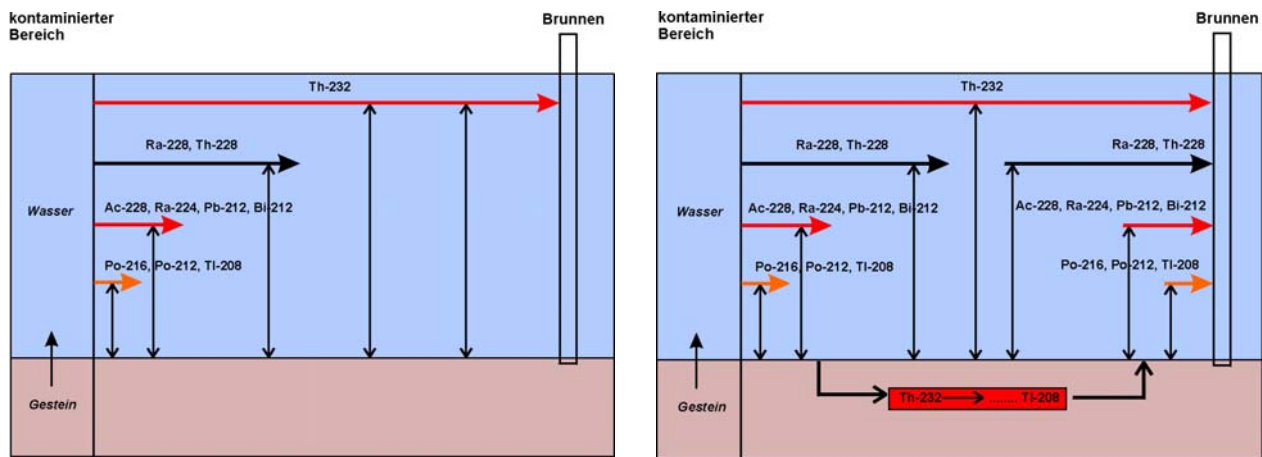


Abbildung 3-2: Schematische Darstellung der Modellfälle „Isolierte Migration“ (links) und „gekoppelte Migration“ (rechts) für Nuklide der Th-232-Reihe

### 3.4 Modellfall „isolierte Migration“

Eine Lösung des Gleichungssystems 3-23; 3-24 für die Konzentration eines Radionuklids **ohne die Nachbildung aus Vorgängernukliden** ( $C_{i-1} = 0$ ) ist die in [1] genutzte Gleichung (s. Gl. 2-1), die sich für Punkte auf der x-Achse vereinfacht zu:

$$C_i^{(W)} = \frac{\lambda_i E_0}{4\pi \cdot h \cdot \sqrt{D_x D_y}} \cdot e^{-\frac{(x-u'_a t)^2}{4 \cdot D'_x t} - \lambda_i t} \quad \text{Gl. 3-26}$$

Die Anwendung dieser Lösung des Konvektions-Dispersionsmodells setzt voraus, dass die Peclet-Zahl PE  $\gg 1$  ist. Die Peclet-Zahl vergleicht den Einfluss der Konvektion und der hydrodynamischen Dispersion. Sie ist definiert

$$PE = \frac{X \cdot u}{D_x} = \frac{X \cdot u'}{D'_x} \quad \text{Gl. 3-27}$$

Sie ist unabhängig von der Retardation und charakterisiert nur den untersuchten Grundwasserleiter.

Ist PE ca. 1, so ist der Aufpunkt so nahe an der Quelle, dass die Grundannahme des Modells, nach der die Dispersion zu einer einheitlichen Kenngröße „D“ zusammengefasst werden kann, nicht mehr zutrifft. (X liegt dann in der Größenordnung von  $\delta_x$ .)

Im Folgenden wird deshalb unterstellt, dass der Beobachtungsbrunnen hinreichend weit von der Quelle entfernt ist.

### 3.5 Modellfall „gekoppelte Migration“

Um für eine solche Geometrie abzuschätzen, ab welcher Parameterkombinationen eine gekoppelte Migration ggf. zu berücksichtigen ist, kann das zeitliche Verhalten der Konzentration am Aufpunkt „Brunnen“ betrachtet werden. Zur Vereinfachung wird angenommen, dass der Brunnen auf der x-Achse in der Entfernung X vom der Quellpunkt liegt (also y = 0 ist).

Differenzieren von Gl. 3-26 ergibt:

$$\frac{dC_i^{(w)}}{dt} = -\lambda_i \cdot C_i^{(w)}(X, t) \cdot \left[ 1 + \frac{1 - \frac{2u'_a}{4D'_x}(X - u'_a t) + \frac{(X - u'_a t)^2}{4D'_x t}}{\lambda_i t} \right] \quad \text{Gl. 3-28}$$

Und für einen (nuklidspezifischen) Zeitpunkt

$$T_i = \int_0^X \frac{dx}{u'_{a,i}} \quad \text{der bei homogenem GWL mit einheitlichem R:} = \frac{X}{u'_{a,i}} \quad \text{Gl. 3-29}$$

in dem die Konvektion den Brunnen erreicht (Abgekürzt  $t = T_{\text{konv}}$ ) gilt:

$$\frac{dC_i^{(w)}(X, T_i)}{dt} = -\lambda_i \cdot C_i^{(w)}(X, T_i) \cdot \left[ 1 + \frac{1}{\lambda_i T_i} \right] \quad \text{Gl. 3-30}$$

Diese Gleichung zeigt, dass beim Durchgang eines Konvektionspeaks durch einen Brunnen am Ort X die Konzentration eines Radionuklids dann durch die Radioaktivität beherrscht wird, wenn  $\lambda_i T_i \gg 1$ . Für größere Zeiten ist dieser Sachverhalt immer besser eingehalten als zum Zeitpunkt, an dem die reine Konvektion eintrifft. Für kürzere Zeiten, in denen bereits durch die Dispersion Radionuklide im Brunnen eintreffen können, gilt diese Aussage nicht generell.

Mit der Migrationslänge  $L_i$

$$L_i = \frac{q/(n \cdot h)}{R_i \cdot \lambda_i} = \frac{u_a}{R_i \cdot \lambda_i} \quad \text{Gl. 3-31}$$

lautet Gl. 3-30

$$\frac{dC_i^{(w)}(X, T_i)}{dt} = -\lambda_i \cdot C_i^{(w)}(X, T_i) \cdot \left[ 1 + \frac{L_i}{X} \right] \quad \text{Gl. 3-32}$$

Für alle Radionuklide, für die die oben definierte Migrationslänge L sehr viel kleiner als die gesamte Migrationsstrecke Quelle – Brunnen X ist, dominiert die radioaktive Umwandlung den Migrationsprozess. Hat das

entsprechende Radionuklid Vorgängernuklide, die über einen Migrationsprozess den Brunnen erreichen können, so kann das zeitliche Verhalten der Konzentration des Tochternuklids  $i$  unter Bezug auf das Vorgängernuklid  $i-1$  ausgehend von den Gl. 3-23, 3-24 modelliert werden gemäß

$$\frac{dC_i^{(w)}(X, t)}{dt} = -\lambda_i \cdot [C_i^{(w)}(X, t) - \frac{R_{i-1}}{R_i} \cdot C_{i-1}^{(w)}(X, t)] \quad \text{Gl. 3-33}$$

Diese gewöhnliche DGL. besagt, dass unter den zuvor heraus gearbeiteten Bedingungen:

- Das betrachtete Radionuklid ist hinreichend kurzlebig ( $\rightarrow$  kleine Migrationslänge)
- Die Konvektion hat den Brunnen erreicht

Die Aktivitätskonzentration des Radionuklids im Brunnenwasser durch das Vorgängernuklid bestimmt wird.

Ungleichgewichte in den Aktivitätskonzentrationen zwischen Nachfolger und Vorgängernukliden gleichen sich mit der Halbwertszeit des Tochternuklids aneinander an. Zur Veranschaulichung des Zeitverhaltens kann Gl. 3-33 für einen Fall gelöst werden, für den  $C_{i-1}$  konstant ist. Dann gilt:

$$C_i^{(w)}(t) = \frac{R_{i-1}}{R_i} \cdot C_{i-1}^{(w)} \cdot [1 - e^{-\lambda_i t}] + C_i^{(w)}(t=0) \cdot e^{-\lambda_i t} \quad \text{Gl. 3-34}$$

Und für Zeiten  $t \gg 1/\lambda_i$  folgt:

$$C_i(X) = (R_{i-1}/R_i) C_{i-1}(X) \quad \text{Gl. 3-35}$$

Gl. 3-35 besagt, dass das Aktivitätsverhältnis von Mutter- und Tochternukliden im Grundwasser durch das Verhältnis der Retardationsfaktoren bestimmt wird. Diese Gleichung reflektiert den bereits zuvor festgestellten Sachverhalt (vgl. Kapitel 3.2.3), dass bei der Migration die gesamte im System migrierende Aktivität, d.h. die Summe aus gelöster und sorbierter Aktivität zu betrachten ist. Da die Migration im Grundwasser in der Regel ein langsamer Prozess ist, kann für kurzlebige Tochternuklide ein radioaktives Gleichgewicht im Gesamtsystem „gelöst“ (Wasser) und sorbiert (Oberflächen) angenommen werden, dessen Wirkung auf die im Grundwasser gelöste Aktivitätskonzentration durch Gl. 3-35 beschrieben wird. **Eine ausschließlich physikalische Anpassung von kurzlebigen Tochternukliden an das Aktivitätsgleichgewicht beschreibt den Nuklidvektor im Grundwasser nicht korrekt und kann die Exposition über- aber auch unterschätzen.**

Sofern einzelne Radionuklide auch bei isolierter Migration den Beobachtungsbrunnen erreichen können, sind als modellierte Konzentration ggf. die Summe von Konzentrationen, die über die isolierte Migration den Brunnen erreichen und die im Ergebnis der gekoppelten Migration im brunnennahen Bereich nachgeliefert werden als Gesamtkonzentration zu modellieren:

$$C_i^{(w)}(t) = C_i^{(w)}(X, t) + \frac{R_{i-1}}{R_i} \cdot C_{i-1}^{(w)}(X, t) \quad \text{Gl. 3-36}$$

Voraussetzung für die Superposition der isolierten und gekoppelten Migration ist das (modelltechnische) Eintreffen des Konzentrationspeaks des langlebigen Vorgängernuklids am Ort des Brunnens und eine hinreichende Zeitspanne danach, die zur Einstellung des Aktivitätsgleichgewichtes im gesamten Migrationsraum am Brunnen führt.

Entscheidend für die Anwendung von Gl. 3-35 ist weiterhin, dass die Retardationsfaktoren den Entnahmekbrunnen, sein geochemisches Milieu und der Mineralbestand des Matrixgesteines im nahen Brunnenumfeld widerspiegeln, sie also nicht als Mittelwerte oder anderweitig integrale Werte über die Migrationsstrecke zu ermitteln sind.

### 3.6 Grenzen und mögliche Weiterentwicklungen des Modells

Die hier abgeleiteten sehr einfachen Gleichungen zur Berücksichtigung der gekoppelten Migration von Tochternukliden bei der grundwassergetragenen Migration von Radionukliden sind Näherungen. Ihre wichtigste Grundannahme ist die lineare Sorptionsisotherme. Es ist Ziel dieser Modellerweiterung, die Migration von Zerfallsreihen im Rahmen dieses Modells besser und fachlich konsistent zu beschreiben. Die Frage, ob die lineare Isotherme im vorliegenden Fall ein richtiger oder ausreichender Ansatz ist, wird nicht betrachtet. Damit ordnet sich dieses Gutachten in das vom Öko-Institut in [1] genutzte Konzept ein, an die bisherigen Migrationsmodelle zur Asse möglichst direkt anzuschließen.

Für die Interpretation von Modellergebnissen soll auf einige Aspekte der gekoppelten Migration explizit hingewiesen werden:

1. Wie bereits weiter vorn beschrieben, setzt das Modell voraus, dass das Gesamtsystem gelöst-sorbiert sich hinreichend langsam verändert, um die Einstellung eines Aktivitätsgleichgewichtes zu ermöglichen. Bei Fließgeschwindigkeiten des Grundwassers von ca. 1 m/a oder langsamer und Fließstrecken von  $n \cdot 10^2$  m, wie sie im Gutachten [1] angesetzt wurden, sowie einer Retardation von Uran von 10 – 100 (s. Kapitel 4) ergibt sich eine Migrationszeit von 1000 bis 10000 Jahren ehe der Uranpeak den Modellbrunnen erreicht und eine konvektive Migrationsgeschwindigkeit des Peaks von 0,01 bis 0,1 m/a. Bei diesen Geschwindigkeiten wird deutlich, dass alle Nuklide mit Halbwertszeiten unter 30 Jahre genügend Zeit haben, im Migrationsraum des Brunnenumfeldes ein radioaktives Gleichgewicht mit dem jeweiligen Vorgänger zu erreichen. Da die ersten Tochternuklide der langlebigen Uranisotope U-238 (U-234), U-235 und U-233 selbst relativ große Halbwertszeiten besitzen, benötigt die Einstellung des Aktivitätsgleichgewichtes im Migrationssystem der genannten Uranisotope und ihrer Tochternuklide evtl. mehr Zeit, als sie (modelltechnisch) zur Verfügung steht. In solchem Fall ist die **Anwendung des hier vorgestellten Modells der gekoppelten Migration konservativ-überschätzend**, da das Modell mehr Aktivität von Tochternukliden im Migrationsraum annimmt als bei exakter Rechnung dort vorhanden ist.
2. Bei anderen Anfangsbedingungen als einem Diracimpuls und insbesondere bei lösungslimitierten Konzentrationen wird der zeitliche Verlauf der Migration stetiger. Damit verbessern sich – sofern man die kd-Werte und die daraus resultierende Retardation als Modellgrundlage anerkennt - die im

Modell der gekoppelten Migration enthaltenen Annahmen, dass nämlich im gesamten Migrationsraum (sorbiert + gelöst) die Veränderungen hinreichend langsam sind, um die Tochternuklide ins Gleichgewicht anwachsen zu lassen. Das oben beschriebene Modell der Gl. 3-35 und 3-36 gilt daher nach Durchlauf der Kontaminationsfront bei einer konvektiv-dispersiven Fahne mit begrenzter Maximalkonzentration aus einer unerschöpflichen Quelle (modelliert als erfc-Funktion) in noch besserem Maße als im Fall einer „Impulswolke“ (s. [5]).

3. Auch für Bedingungen, in denen das Gesamtsystem noch nicht das Gleichgewicht erreicht hat, ist nach den oben dargestellten Zusammenhängen eine Gleichgewichtskorrektur von Tochternukliden allein in der gelösten Phase weder realistisch noch konservativ. Auch hier können Tochternuklide, die weniger sorbiert werden als die Vorgänger infolge der Wasser-Gesteins-Wechselwirkung höhere Konzentrationen in der Lösung erreichen als es der Konzentration der gelösten Vorgänger entspricht. Das hier beschriebene Modell der gekoppelten Migration sollte daher auch für solche Fälle die realistisch-konservative Berechnung darstellen.
4. Das Modell der gekoppelten Migration berücksichtigt nicht die zusätzliche Mobilisierung von Tochternukliden als Folge des radioaktiven Rückstoßes. Dieser Effekt führt vor allem bei einer radiogenen Produktion über Alphazerfall zu einer höheren Konzentration in der gelösten Phase als es dem rein chemischen Sorptionsgleichgewicht entspricht, da in der sorbierten Phase gebildete Tochternuklide durch den Rückstoß unmittelbar in die Lösung übergehen können.

Bei der Ableitung des Modells im Kapitel 3 wurden die im Gesteinsvolumen enthaltenen Aktivitäten (natürlich vorkommender Radionuklide) ausgeklammert. Die natürlich vorkommenden Radionuklide, vor allem Radium, können allerdings bei einer Milieuveränderung, wie sie beim Eintreffen von Salzwasser stattfindet, mobilisiert werden. Dieser Effekt der „**induzierten Mobilisierung**“ führt in der Regel zu einer Veränderung der Nuklidzusammensetzung in der gelösten Phase. Bei chloridischen Salzwässern ist vor allem mit einer Zunahme von Radiumkonzentrationen zu rechnen. Eine Modellierung dieses Effektes erfordert chemische Modelle der Wasser-Gesteins-Wechselwirkung. Messungen in geeignet ausgewählten Bereichen des Untergrundes, die im Kontakt mit Salzlösungen stehen, können für orientierende Einschätzungen genutzt werden.

Für die Beurteilung des Gefahrenpotentials der radioaktiven Abfälle in der Schachtanlage Asse II ist ein möglicher Konzentrationsanstieg durch induzierte Mobilisierung möglichst klar vom Stoffaustrag aus den Einlagerungsbereichen zu unterscheiden.



## 4 Praktische Umsetzung

### 4.1 Methodik

Zur praktischen Umsetzung des zuvor abgeleiteten Modells werden folgende Schritte empfohlen:

1. Berechnung der Migrationslängen für alle dosisrelevanten Radionuklide der Zerfallsreihen. Gruppierung der Radionuklide für die  $10 L < X$  (Gruppe 1) und solchen für die  $5 L > X$  (Gruppe 2).
2. Festlegung der Nuklide aus Gruppe 2, deren Anfangsaktivität so groß ist, dass die Konzentration im Brunnen bei isolierter Migration relevant sein kann. (Bezugsnuklide für die gekoppelte Migration)
3. Zuordnung von (kürzerlebigen) Tochternukliden zu den im Schritt 2 ermittelten Nukliden. (Festlegung der Migrationsgruppen: Bezugsnuklide + Tochternuklide)
4. Modellierung der Radionuklid-Konzentration im Brunnen mit Gl. 3-36. Überprüfung, ob die Migrationszeit des Bezugsnuklids hinreichend langsam ist, um die Einstellung der Aktivitätsgleichgewichte im Migrationsraum zu gewährleisten.

Dieses Vorgehen basiert auf folgenden Überlegungen:

Die Migrationslänge ist die Kenngröße, die die Abnahme der Konzentration im Peak vollständig beschreibt. Durch die Dominanz der e-Funktion beträgt die Abnahme der Konzentration im hier gewählten Modell der instantanen Freisetzung bereits nach 10 L ca.  $5E-5$  und nach 20 L ist die Anfangskonzentration auf mehr als  $1E-10$  zurück gegangen. Eine isolierte Migration muss also nur dann betrachtet werden, wenn der zu beurteilende Brunnen (Aufpunkt) weniger als 10 - 20 L von der Quelle entfernt ist.

Bei Zerfallsreihennukliden kann aber bereits nach mehr als 1 L die Neubildung von Aktivität aus einem Vorgänger so deutlich zur Aktivität beitragen, dass ihre Vernachlässigung zu fehlerhaften Ergebnissen führt. Daher ist die Abschätzung von Migrationsreichweiten ein erster wichtiger Schritt, um zu prüfen, für welche Radionuklide die Berücksichtigung der gekoppelten Migration nötig ist. Um die Nuklide zu ermitteln, die aufgrund einer (isolierter) Migration den Brunnen erreichen können, wird eine Abgrenzung bei  $L < X/10$  empfohlen. Radionuklide, die kürzere Migrationslängen haben, müssen nur dann weiter betrachtet werden, wenn sie als Tochternuklide von langlebigen Vorgängern über eine gekoppelte Migration den Brunnen erreichen. Bei Nukliden mit größeren Migrationslängen ist im Einzelfall zu prüfen, ob sie als isolierte Migration oder als gekoppelte Migration zu modellieren sind. Bei allen Nukliden, bei denen  $L > 3 \dots 5 X$  genügt es, ausschließlich die isolierte Migration zu betrachten. Für Fälle, die zwischen den genannten Bereichen liegen ist nicht von der Ausbildung des Aktivitätsgleichgewichtes im gesamten Migrationsraum auszugehen. Daher ist das Modell der gekoppelten Migration nach Gl. 3-35 nicht exakt zutreffend. Hier sind ggf. unter Beachtung von Gl. 3-34 fallspezifisch geeignete (konservative) Abschätzungen vorzunehmen.

Bei sehr langlebigen aber immobilen Radionukliden ist die Retardation der isolierten Migration beim Modellieren unbedingt zu beachten. Die Retardation kann (im Modell) dazu führen, dass Nuklide mit kürzeren Halbwertszeiten aber höherer Mobilität über eine isolierte Migration den Brunnen erreichen, bevor das langlebige Vorgängernuklid eintrifft und die gekoppelte Migration die Konzentration bestimmt. Ein Beispiel für ein

solches System ist die Nuklidgruppe Th-230 – Ra-226. In solchem Fall sind abhängig von der jeweils zu betrachtende Zeitskala beide Migrationsformen im Modell zu berücksichtigen.

Andererseits kann ein mobiles Nuklid wie Uran-238 relativ schnell bis zu einem Brunnen migrieren. Die gekoppelte Migration von Th-230 benötigt aber mehrere  $10^5$  Jahre, um im gesamten Migrationsraum am Brunnen das Aktivitätsgleichgewicht zu erreichen, welches der Modellgleichung Gl. 3-35 zugrunde liegt.

Die Anwendung des hier abgeleiteten Modells der gekoppelten Migration ist daher nicht formal analytisch auszuführen. Sie setzt voraus, dass das (Zeit-)Verhalten der Nuklide im Untergrund hinreichend berücksichtigt wird.

#### **4.2 Analyse von Anwendungsgrundlagen für den Standort Asse**

Für die Modellierung der Radionuklidenausbreitung wurden in [1] die von Colenco [5] erarbeiteten Grundlagen zur Geologie und zu Ausbreitungswegen sowie neuere Angaben des INE Karlsruhe zu kd-Werten genutzt. Wie bereits im Kapitel 2 dargestellt, lagen dazu für einige Radionuklide keine Angaben zu den kd-Werten vor. Dazu gehören Thorium und Polonium.

Bei der unterstellten retardationsfreien Migration von Thorium ( $R_{Th} = 1$ ) sind folgende Nuklidketten mit langlebigen Th-Nukliden als mögliche Systeme gekoppelter Migration zu prüfen:

- Th-232 – Ra-228 – Th-228 – Ra-224 (andere kurzlebige Nuklide der Th-232 Reihe sind wegen der geringen Dosiskoeffizienten ohne Belang für die Bewertung des Wassers)
- Th-230 – Ra-226 – (Rn-222) – Pb-210 – Po-210
- Th-229 - Ra-225 – Ac-225

Andere mögliche Migrationsgruppen aus den Radionukliden des Asse-Inventars sind:

- Pa-231 – Ac-227 – Ra-223
- U-232 – Th-228 – Ra-224 (zusätzlich zur Gruppe Th-232 ff zu berechnen)
- Pu-244 – U-240 – Np-240m – Np-240
- Am-242m – Np-238, Am-242
- Am-243 – Np-239
- U-235 – Pa-231 – Ac-227 – Ra-223
- U-233 – Th-229 – Ra-225 – Ac-225 (bei Sorption von Thorium die realistischer Weise zu betrachtende Gruppe)

Die hier abgeleitete Modellgleichung zur Berücksichtigung der gekoppelten Migration ist unmittelbar nicht anwendbar auf die langlebigen Anfangsglieder der Uranreihe. Aufgrund der sehr großen Halbwertszeiten und unterschiedlichen Löslichkeit bilden die Nuklide  $^{238}\text{U}$  -  $^{234}\text{U}$  -  $^{230}\text{Th}$  ein eigenes Migrationssystem, welches nur für sehr große Betrachtungszeiten ( $>> 100.000$  a) eine gekoppelte Migration der Tochternuklide ( $^{226}\text{Ra}$  und Nachfolger) zur Folge hat.

Grundsätzlich ist das Modell aber anwendbar auf alle kurzlebigen Tochternuklide künstlicher Radionuklide, wie sie in Anlage III Tabelle 2 StrlSchV aufgeführt sind, soweit die Halbwertszeit der Tochternuklide hinreichend lang ist, um ein chemisches Sorptionsgleichgewicht einzustellen.

Um exemplarisch darzustellen, wie das Modell der gekoppelten Migration auf die Radionuklidenausbreitung aus der Asse anzuwenden ist, wird im Folgenden anhand der Daten aus [1] eine exemplarische Auswertung durchgeführt.

Aus den Angaben der  $k_d$ -Werte (s. Tabelle 2-2) und Daten zu Porenanteilen sowie Gesteinsdichten wurden in [1] Retardationsfaktoren für solche Gesteine berechnet, durch die die potentiellen Ausbreitungspfade des Grundwassers zu den Modellbrunnen verlaufen. Um auch Retardationsfaktoren für Radionuklide abzuleiten, für die in [1] keine Angaben gemacht sind, wurden mit den Daten nach Tabelle 4-1 und den  $k_d$ -Werten nach Tabelle 2-2 Retardationsfaktoren berechnet (s. Anlage 1). Aus diesen Daten wurden für die langlebigsten Radionuklide eines Elementes (beim Uran das kurzlebigste dosisrelevante Nuklid U-233) die Migrationsreichweiten für eine Fließgeschwindigkeit (Abstandsgeschwindigkeit) von 1 m/a berechnet. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4-2 zusammengestellt.

Tabelle 4-1: Gesteinsdaten zur Berechnung von Retardationsfaktoren nach [1]

Teufe [m]	$m_0$	$R_{mm}^*$	Mm	Mu	$\mu_{1-3}^*$	$s_0$
	Porenanteile					
0-200	0,06	0,075	0,05	0,06	0,06	0,1
200-400	0,04	0,075	0,05	0,04	0,04	0,1
400-600	0,04	0,075	0,05	0,04	0,04	0,075
>600	0,03	0,075	0,05	0,03		
	Gesteinsdichte in g/cm <sup>3</sup>					
	2,65	2,65	2,65	2,65	2,65	2,3

Tabelle 4-2: Migrationsreichweiten für die jeweils langlebigsten dosisrelevanten Radionuklide eines chemischen Elementes aus dem Inventar der Asse bei einer Fließgeschwindigkeit (Abstandsgeschwindigkeit) von 1 m/a

	HWZ in a	L(Min) in m	L(Max) in m	5 L(max) in m
Pb-210	22,3	0,003	0,021	0,105
Ra-226	1600	0,014	1,810	9,048
Ac-227	21,8	0,000	0,004	0,022
Pa-231	33000	0,056	0,364	1,821
U-233	1,6E5	149	11065	55323

Aus den Angaben der Tabelle 4-2 folgt, dass von den dort aufgeführten Radionukliden nur das Uranisotop U-233 sowie konsequenter Weise auch U-234, U-235, U-236 und U-238 über eine isolierte Migration den

Beobachtungsbrunnen erreichen können. Folgende Radionuklide können nur über eine gekoppelte Migration Beiträge zur Radionuklid-Konzentration in einen Brunnen im hier betrachteten Modellumfeld der Asse liefern:

- Pb-210
- Ra-226, und daher auch: Ra-228, Ra-225, Ra-224, Ra-223
- Ac-227
- Pa-231

Betrachtet man die  $k_d$ -Werte nach Tabelle 2-2 und die Halbwertszeiten nach Tabelle 2-1 so wird deutlich, dass auch für die Nuklide

- Pu-241, Am-241

nur eine gekoppelte Migration mit Cm-245 eine größere Migrationsstrecke realisiert. In [1] wurde allerdings die Retardation von Plutonium als deutlich geringer angenommen, womit dieses Migrationssystem entkoppelt wird.

Auch bei modelltechnisch vernachlässigter Retardation sind aller Nuklide mit HWZ unter 20 a zu kurzlebig, um in isolierter Migration bei der hier angenommenen Abstandsgeschwindigkeit von 1 m/a die Modellbrunnen zu erreichen. Damit sind auch Th-228, Po-210 und andere kurzlebige Nuklide (Ra-224, Ra-223, ...) nur als Teil einer gekoppelten Migration zu berücksichtigen.

### 4.3 Anwendungsbeispiele für den Standort Asse

In den Expositionsberechnungen nach [1] wird als dominantes Radionuklid bei langsamer Fließgeschwindigkeit von 0,3 m/a für Migrationszeiten unter 5000 Jahre die „Th-Reihe“ benannt (s. [1], Tab. 5.7 und 5.8). Dieses Ergebnis ist Folge der unretardierten Modellierung von Th-232, die wegen fehlender  $k_d$ -Werte aus Gründen der Konservativität so vorgenommen werden musste. Außerdem wurde in [1] der Ansatz benutzt, Tochternuklide in das Gleichgewicht mit gelösten Mutternukliden zu korrigieren. Die Konsequenzen dieses Vorgehens in Bezug auf eine Ingestionsdosis Trinkwasser und ihr Vergleich mit einer Modellierung über das Modell der gekoppelten Migration sind in Tabelle 4-3 dargestellt. Diese Ergebnisse basieren auf folgenden Datengrundlagen:

- Die Konzentration von Th-232 (Th-230, Th-229) wurde mit 1 (Bq/l) angesetzt. Da nur ein Vergleich der Ingestionsdosis zwischen beiden Modellfällen beabsichtigt ist, ist dieser Wert ein formaler Bezugswert.
- Für alle Thoriumisotope wurde der Retardationsfaktor mit  $R = 1$  angesetzt (entspricht  $k_d = 0$ ).
- Die Ingestionsdosis wurde mit den Verzehraten nach Anlage VII StrlSchV berechnet. Für den Säugling wurde die Herstellung von Säuglingsnahrung eingerechnet, so dass 155 l Verzehrrate angesetzt wurden.
- Als Retardationsfaktoren zur Modellierung der gekoppelten Migration wurden die Werte des Oberen Buntsandsteins („so“) benutzt.

- Für Polonium wurde ebenfalls mit  $R = 1$  gerechnet.

Die Berechnungen sind in Anlage 2 dokumentiert. Sie zeigen, dass vor allem im System Th-232 + Tochter-nuklide die nach der einfachen Gleichgewichtskorrektur („Standardmodell“) berechnete Ingestionsdosis um mehr als 1 Größenordnung höher als die nach der gekoppelten Migration berechnete Dosis ausfällt. Grund dieses Effektes ist die im Standardmodell vernachlässigte Sorption von Radium, hier insbesondere Ra-228.

Auch in den anderen untersuchten Migrationssystemen führt die Vernachlässigung der Sorption der Tochter-nuklide zu einer deutlichen Überschätzung der Ingestionsdosis.

Tabelle 4-3: Verhältnismerte der Ingestionsdosis Trinkwasser im Standardmodell / Modell der gekoppelten Migration. Modellannahme: Thorium unretardiert ( $R(\text{Th})=1$ ), andere Nuklide retardiert nach Daten aus Anlage 1, Formation Oberer Buntsandstein.

	<= 1 a	1-2 a	2-7 a	7-12 a	12-17 a	>17 a
Th-232 - Ra-228 - Th-228 - Ra-224	0,202	0,114	0,132	0,096	0,059	0,286
Th-230 - Ra-226 - Pb-210 - Po-210	0,697	0,669	0,626	0,513	0,349	0,593
U-235 - Pa-231 - Ac-227 - Th-227 - Ra-223	0,304	0,651	0,483	0,422	0,342	0,254
Th-229 - Ra-225 - Ac-225	0,593	0,420	0,527	0,528	0,530	0,799

Um zu demonstrieren, wie sich die Verhältnisse bei realistischen  $k_d$ -Werten für Thorium (und Polonium) verändern, wurde in einer zweiten Modellrechnung mit einer retardierten Thoriummigration gerechnet. Als  $k_d$ -Wert wurde der Wert des ebenfalls 4-wertigen Plutoniums gemäß Tabelle 2-2 verwendet. Damit errechnete sich ein Retardationsfaktor für die Gesteine des Oberen Buntsandsteins (so) von  $R = 121400$ . Für Polonium wurde der Retardationsfaktor mit dem Doppelten von Blei veranschlagt. Dadurch wird dem Sachverhalt Rechnung getragen, dass Po-210 in der Regel in geringeren Konzentrationen als Pb-210 im Wasser gelöst ist.

Durch die Retardation des Thoriums werden außer beim Th-232 die langlebigen Uranisotope zum am schnellsten migrierenden langlebigen Radionuklid in den Zerfallsreihen. Daher mussten die Migrationsgruppen auf die Uranisotope U-238, U-235 und U-233 erweitert werden. Die Ergebnisse in Tabelle 4-4 zeigen, dass in diesem Fall die Ingestionsdosis bei allen Migrationsgruppen mit Uranisotopen als Bezugsnuklid noch deutlich geringer als bei der formalen Gleichgewichtskorrektur ausfällt, da hier die Tochter-nuklide deutlich höhere Retardationsfaktoren als das Uran selbst besitzen. Bei der Migrationsgruppe Th-232ff ist aufgrund der sehr ähnlichen Retardation mit der von Radium die Gleichgewichtskorrektur (ausnahmsweise) zutreffend. Bei geringerer Retardation von Radium als von Thorium wird das Verhältnis größer als 1 und die übliche Gleichgewichtskorrektur in der Lösung ist für solchen Fall nicht konservativ.

Tabelle 4-4: Verhältniswerte der Ingestionsdosis Trinkwasser im Standardmodell / Modell der gekoppelten Migration. Modellannahme: Thorium retardiert ( $R(\text{Th})=1,21\text{E}5$ ); andere Nuklide retardiert nach Daten aus Anlage 1, Formation Oberer Buntsandstein.

	<= 1 a	1-2 a	2-7 a	7-12 a	12-17 a	>17 a
Th-232 - Ra-228 - Th-228 - Ra-224	1,005	1,005	1,005	1,005	1,006	1,004
U-238 – U-234 - Th-230 - Ra-226 - Pb-210 - Po-210	0,033	0,037	0,041	0,044	0,043	0,056
U-235 - Pa-231 - Ac-227 - Th-227 - Ra-223	0,009	0,025	0,023	0,026	0,030	0,026
U-233 - Th-229 - Ra-225 - Ac-225	0,021	0,056	0,059	0,063	0,073	0,077

Bei der Anwendung des Modells ist zu beachten, dass durch die unterschiedliche Retardation auch eine unterschiedliche Dynamik der Migration entsteht. Während Uran bei einer angenommenen mittleren Retardation von 50 über den Fließweg nur wenige Tausend bis 10-Tausend Jahre den Brunnen beeinflusst – und die Tochternuklide Th-229 oder Th-230 in dieser Zeit nicht bis in ein Gleichgewicht nachwachsen – trifft Th-232 erst nach mehr als 100.000 Jahren am Brunnen ein und verbleibt dann über Zeiten von mehreren  $10^5$ -Jahren im Brunnumfeld (s. Abbildung 4-1, Abbildung 4-2). Für die Tochternuklide des Thoriums besteht daher ausreichend Zeit, ein Aktivitätsgleichgewicht auszubilden. Das Modell der gekoppelten Migration ist daher im Rahmen eines linearen Retardationsansatzes für das Migrationssystem Th-232ff die korrekte Beschreibung der Nuklidzusammensetzung im Brunnenwasser. Für die Migrationssysteme mit Uran als Bezugsnuklid überschätzt das Modell die im Rahmen des Modellkonzeptes richtigen Konzentrationen, da die Tochternuklide weniger Aktivität im Migrationsraum ausbilden als es dem Gleichgewicht entspricht. Für erste Abschätzungen ist aber auch solche konservative Abschätzung zunächst ausreichend. Eine Verbesserung des Modells ist bei Bedarf zu entwickeln. Die Grundlagen dafür sind in diesem Bericht beschrieben.

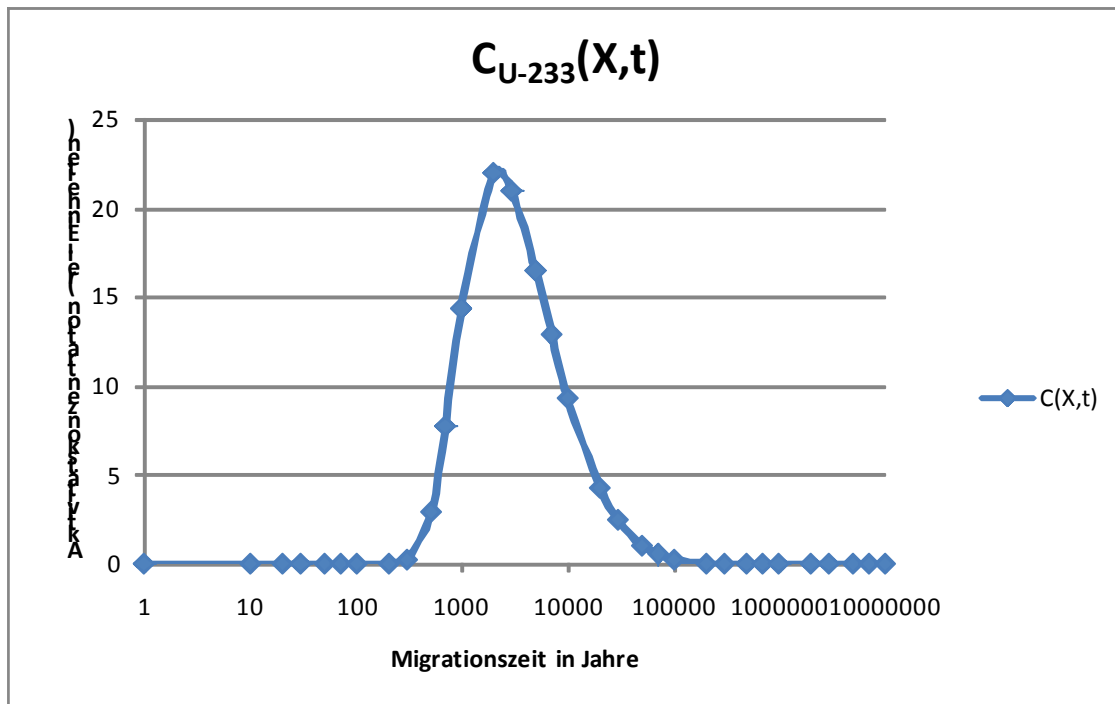


Abbildung 4-1: Zeitlicher Verlauf einer modellierten U-233 Konzentration in einem 240 m von einer Punktquelle entfernten Brunnen. Abstandsgeschwindigkeit 1 m/a;  $D_x = 1E-5 \text{ m}^2/\text{s}$ . Mittlere Retardation = 50.

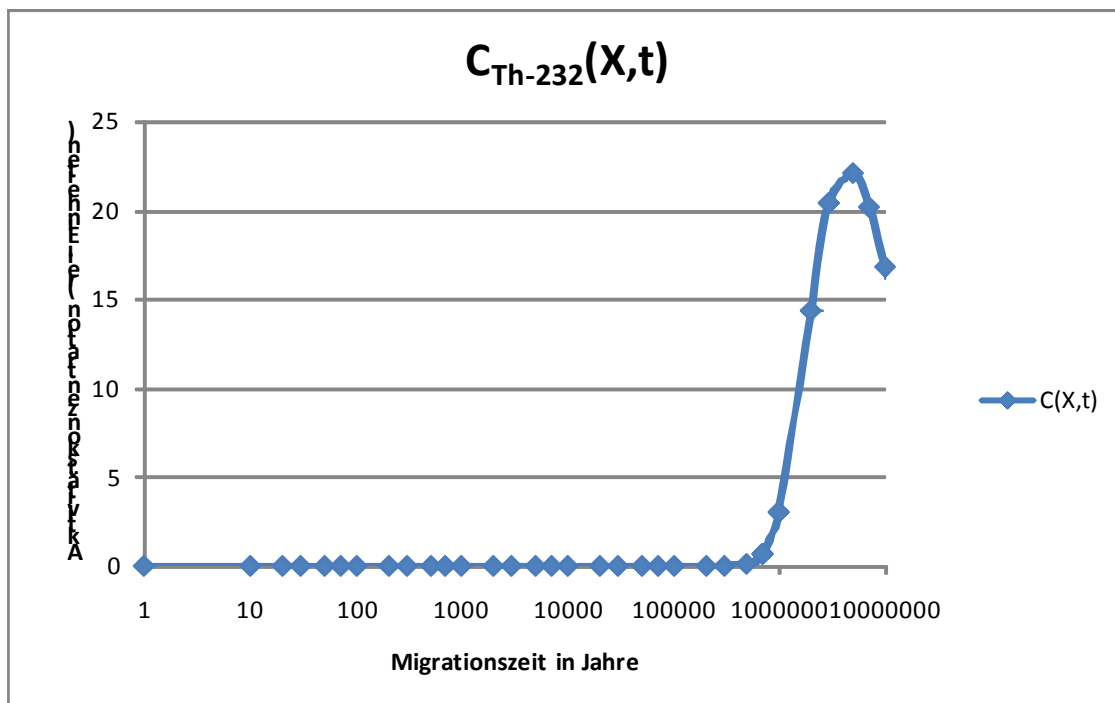


Abbildung 4-2: Zeitlicher Verlauf einer modellierten Th-232-Konzentration in einem 240 m von einer Punktquelle entfernten Brunnen. Abstandsgeschwindigkeit 1 m/a;  $D_x = 1E-5 \text{ m}^2/\text{s}$ . Mittlere Retardation = 100.000

## 5 Ergänzende Hinweise

Im Weiteren werden einige Hinweise aus der Sicht des Bearbeiters dieses Berichtes gegeben, die die Transportmodellierung von Radionukliden am Standort Asse betreffen.

- (1) Die im Bericht [1] benutzten Parameter von Gesteinen (die von Colenco [5] übernommen wurden) stellen Literaturwerte dar, die sich auf das jeweils beschriebene Gestein ALS GANZES beziehen. In [1] wird aber die Ausbreitung durch eine Störungszone IN EINEM GESTEINSKÖRPER analysiert. Für diese **Störungszone** sind die angegebenen Porenanteile unrealistisch klein.
  - ➔ Es kommt darauf an, die hydraulischen Eigenschaften der Störungszone als eigenständige Struktur zu erfassen und nicht aus Gesamtgesteinsdaten diese Werte zu übertragen! Die Porenanteile dürften daher im Rahmen des Intervalls 0,06 bis 0,10 in der Größenordnung bei dem oberen Wert von  $n = 0,10$  (also 10%) (siehe Tab. 5.3 in [1]). Das ist dann auch mehr als die Werte nach Colenco, die alle deutlich unter 10 % liegen.
  - ➔ Wenn Störungszonen eine solche hohe Bedeutung für den Standort haben, dann müssen die **hydraulischen Eigenschaften solcher Störungszonen** auch gezielt erkundet werden, um repräsentative Kenngrößen festlegen zu können.
- (2) Bei dem Modell eines Diracimpulses als Anfangsbedingung hängen die Konzentrationen im Aufpunkt sehr stark vom Dispersionskoeffizienten ab. Je kleiner die Dispersion  $D$ , umso größer die Konzentration im Peak. Große Dispersionen führen rechnerisch zu einem schnelleren Eintreffen der Tracerwolke, machen aber die Konzentration des Peaks klein (hohe „Verschmierung“ + transversale Dispersion).  $D$  darf auf keinen Fall beliebig (groß) gewählt werden, da ansonsten eine Grundlage des Modells ( $PE \gg 1$ ) nicht erfüllt ist. Wenn kein „enges / kurzes“ Zeitfenster vorgegeben ist, werden die Modelle konservativer, wenn die Dispersion klein ist (konvektiver Transport). Zu kleine  $D$  sind aber nicht realistisch, da in geologischen Strukturen stets Dispersion auftritt.
- (3) Bei der realen Ausbreitung von Salzlösung im Untergrund werden die hydrochemischen Verhältnisse im Grundwasser so stark verändert, dass es zu Mobilisierungen von Radionukliden aus dem Gesteinsvolumen kommen kann. Diese „induzierte Mobilisierung“ führt ebenfalls zu Erhöhungen von Aktivitätskonzentrationen, ohne dass es einer eigenen Migration aus der Quelle (hier: den radioaktiven Abfällen) bedarf. Für die Asse dürfte vor allem die Mobilisierung von Ra-226, Ra-228 bei hohen Chloridkonzentrationen zu signifikanten Effekten mit Aktivitätskonzentrationen in der Größenordnung von 0,3 - 3 Bq/l führen.



## 6 Zusammenfassung

Zur Abschätzung von Strahlenexpositionen im Umfeld des Endlagers Asse werden in dieser Arbeit die methodischen Grundlagen für die Modellierung des Wasserpfades analysiert und in Hinblick auf eine gegenüber bisherigen Modellen verbesserte Berücksichtigung von Zerfallsreihen weiter entwickelt. Die Arbeit zeigt:

- Bei der Migration von Radionukliden ist (zumindest in einer Störungszone, die mit Zersatzmaterial gefüllt als Porengrundwasserleiter anzunehmen ist) von einer gleichmäßigen Konzentration in der mobilen und in der Haftwasserphase auszugehen. Daher ist der Gesamtporenraum der in der Migration zu berücksichtigende Porenraum. Wird bei der Beschreibung der Konvektion nur die mobile Phase und ihr Porenanteil berücksichtigt, so ist der Stofftransport gegenüber dieser Phase retardiert. Dieser Effekt der „scheinbaren Retardation“ kann in feinkörnigen Gesteinen mehr als 1 Größenordnung betragen. Bei der Berechnung von Frachten ist daher klar festzulegen, welches Modell des Porenraumes genutzt wird und wie der Geschwindigkeiten des Modells zu interpretieren sind.
- Für die gekoppelte Migration kann ein einfaches radioökologisches Modell abgeleitet werden. Geht man von einem linearen Gleichgewichtsmodell der Wasser-Gesteins-Wechselwirkung aus, so ergibt sich, dass die Aktivitätskonzentration in einem Brunnen unabhängig von den Halbwertszeiten der Radionuklide durch das Verhältnis der Retardationsfaktoren bestimmt wird. Modellrelevant ist dabei der Aquifer, der das Brunnumfeld bildet.
- Zur praktischen Anwendung des Modells der gekoppelten Migration sind Radionuklide festzulegen, die von einem langlebigen Vorgängernuklid gebildet werden, die aber selbst im Vergleich zur Zeit, die sie zum konvektiven Erreichen des zur Bewertung genutzten Brunnens benötigen, kurzlebig sind. Diese Nuklidgruppen mit ihren langlebigen Vorgängern sind als Migrationsgruppen Grundlage zur Berechnung der Nuklidzusammensetzung im Grundwasser des Beobachtungsbrunnens.
- Im Vergleich zur formalen Zerfallskorrektur von Tochternukliden in der Lösung ergeben sich für die hier analysierten Migrationssysteme von unretardierten Th-Isotopen und Tochternukliden niedrigere Ingestionsdosen, die bis zu mehr als 1 Größenordnung reichen, da die Sorption von Radium (modelltechnisch) korrekter berechnet wird.
- Berücksichtigt man die Retardation von Thorium, so übernehmen langlebige Uranisotope die Rolle der Bezugsnuklide im Migrationssystem. In solchem Fall wird die Dosis bei einer formalen Zerfallskorrektur in der Lösung um bis zu 2 Größenordnungen zu hoch berechnet.

Alle in diesem Bericht dargestellten Ergebnisse und Aussagen beruhen auf einer Analyse von Modellen und insbesondere dem Ansatz eines linearen Zusammenhangs zwischen gelöster und sorbierter Konzentration bei der Migration. Über die realen Voraussetzungen und Bedingungen für die Anwendung der Modellvorstellungen auf den Standort Asse werden in dieser Arbeit keine Aussagen getroffen.

## 7 Literatur

- [1] Neuberechnungen zu den Auswirkungen eines auslegungsüberschreitenden Lösungszutritts in der Schachanlage Asse II. Vorhaben UM09A03205. Unterstützung des BMU bei der Aufsicht über Betrieb und Stilllegung der Asse. Öko-Institut. Darmstadt 16.06.2010
- [2] LUCKNER, L., W. M. SCHESTAKOW: Migrationsprozesse im Boden- und Grundwasserbereich. Dt. Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig 1986
- [3] GELLERMANN, R.: Beiträge zur Nutzung ausgewählter Nuklide der <sup>238</sup>U-Umwandlungsreihe für die Untersuchung hydrosphärischer Stofftransportprozesse. Diss. Bergakademie Freiberg, 1989
- [4] POSCHNER, J., G. SCHALLER: Richtwerte für die spezifische Aktivität von schwach radioaktiv kontaminierten Abfällen, die konventionell entsorgt werden. Bericht BfS-ISH-169/95
- [5] Hydrogeologische Modellvorstellungen Bericht 4956/07 Revision 3, Colenco Power Engineering AG Baden, Schweiz, mit GSF Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Forschungsbergwerk Asse, Verfasser: W. Klemenz, J.-M. Lavanchy, Dr. G. Resele, A. Poller, November 2006
- [6] GELLERMANN, R., K. NINDEL, J. SCHREYER: Mobilisierung und Migration natürlicher Radionuklide – Grundlage für die Expositionspfadanalyse an Standorten der Uran-Bergbausanierung. In: Uranium Mining and Hydrogeology II. (Ed. B. Merkel u.a.). Verlag Sven von Loga Köln 1998, S. 375-382
- [7] Busch, K.-F., L. Luckner: Geohydraulik
- [8] Busch, K.-F., L. Luckner, K. Thieme: Geohydraulik.
- [9] Cole, K.S.: Membranes, Iones and Impulses. University of California Press, 1968
- [10] Craslaw, H.S., J.C. Jaeger: Conduction of Heat in Solids, Clarendon Press. Oxford 1948
- [11] Crank, J.: The Mathematics of Diffusion, Oxford University Press 1975

**Basisdaten**

**Mittlere Sorptionskoeffizienten im Deckgebirge der Schachtanlage Asse (K<sub>d</sub>) [mg/l]**

Gestein	mo	mm2	mm	mu	mu 1-3	so
Po (*)	0	0	0	0	0	0
Pb	140	50	70	75	75	74
Ra	138	39	50	60	125	5830
Ac	2000	311	140	227	400	676
Pa	10000	4000	3000	4000	4000	12718
U	15	0,5	4	3,5	3	2,4
Th (*)	0	0	0	0	0	0

(\*) konservative Annahme

Dichte in g/cm <sup>3</sup>	2,65	2,65	2,65	2,65	2,65	2,3
Porenanteile stratigrafischer Einheiten						
Teufe [m]	mo	Rmm*	mm	mu	mu1-3*	so
<b>0-200</b>	0,06	0,075	0,05	0,06	0,06	0,1
<b>200-400</b>	0,04	0,075	0,05	0,04	0,04	0,1
<b>400-600</b>	0,04	0,075	0,05	0,04	0,04	0,075
<b>&gt;600</b>	0,03	0,075	0,05	0,03		

**Berechnungsergebnisse**

Gestein	Retardationsfaktoren					
	mo	mm2	mm	mu	mu 1-3	so
	R(Pb)					
0-200	5813	1635	3526	3115	3115	1533
200 - 400	8905	1635	3526	4771	4771	1533
400-600	8905	1635	3526	4771	4771	2100
> 600	11997	1635	3526	6427		
	R (Ra)					
0-200	5730	1276	2519	2492	5191	120682
200 - 400	8778	1276	2519	3817	7951	120682
400-600	8778	1276	2519	3817	7951	165379
> 600	11825	1276	2519	5142		
	R (Ac)					
0-200	83034	10166	7050	9425	16608	13994
200 - 400	127201	10166	7050	14438	25441	13994
400-600	127201	10166	7050	14438	25441	19177
> 600	171368	10166	7050	19451		
	R (Pa)					
0-200	415168	130734	151051	166068	166068	263264
200 - 400	636001	130734	151051	254401	254401	263264
400-600	636001	130734	151051	254401	254401	360768
> 600	856834	130734	151051	342734		
	R(U)					
0-200	624	17	202	146	126	51
200 - 400	955	17	202	224	192	51
400-600	955	17	202	224	192	69
> 600	1286	17	202	301		

Migrationslängen in m					
mo	mm2	mm	mu	mu 1-3	so
L(Pb-210) HWZ 22,3 a					
0,006	0,020	0,009	0,010	0,010	0,021
0,004	0,020	0,009	0,007	0,007	0,021
0,004	0,020	0,009	0,007	0,007	0,015
0,003	0,020	0,009	0,005		
L(Ra-226) HWZ 1600 a					
0,40	1,81	0,92	0,93	0,44	0,02
0,26	1,81	0,92	0,60	0,29	0,02
0,26	1,81	0,92	0,60	0,29	0,01
0,20	1,81	0,92	0,45		
L(Ac-227) HWZ 21,8 a					
0,00038	0,0031	0,0045	0,0033	0,0019	0,0022
0,00025	0,0031	0,0045	0,0022	0,0012	0,0022
0,00025	0,0031	0,0045	0,0022	0,0012	0,0016
0,00018	0,0031	0,0045	0,0016		
L(Pa-231) HWZ 33000 a					
0,115	0,364	0,315	0,287	0,287	0,181
0,075	0,364	0,315	0,187	0,187	0,181
0,075	0,364	0,315	0,187	0,187	0,132
0,056	0,364	0,315	0,139		
L(U-233) HWZ 1,33E+05 a					
308	11065	948	1311	1528	3786
201	11065	948	858	1000	3786
201	11065	948	858	1000	2778
149	11065	948	638		

**Standardmodell mit Gleichgewichtskorrektur**

Nuklid	R	C	Dosiskoeffizienten Ingestion						Ingestionsdosis						
			<= 1 a	1-2 a	2-7 a	7-12 a	12-17 a	>17 a	<= 1 a	1-2 a	2-7 a	7-12 a	12-17 a	>17 a	
			[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[mSv/a]	[mSv/a]	[mSv/a]	[mSv/a]	[mSv/a]	[mSv/a]	
Verzehrrate (l/a)			170	100	100	150	200	350							
<b>Migrationsgruppe Th-232 - Ra-228 - Th-228 - Ra-224</b>															
Th232		1	4,6E-06	4,5E-07	3,5E-07	2,9E-07	2,5E-07	2,3E-07	0,782	0,045	0,035	0,044	0,050	0,081	
Ra228		1	3,0E-05	5,7E-06	3,4E-06	3,9E-06	5,3E-06	6,9E-07	5,100	0,570	0,340	0,585	1,060	0,242	
Th228		1	3,7E-06	3,7E-07	2,2E-07	1,5E-07	9,4E-08	7,2E-08	0,629	0,037	0,022	0,023	0,019	0,025	
Ra224		1	2,7E-06	6,6E-07	3,5E-07	2,6E-07	2,0E-07	6,5E-08	0,459	0,066	0,035	0,039	0,040	0,023	
<b>Migrationsgruppe Th-230 - Ra-226 - Pb-210 - Po-210</b>															
Th230		1	4,1E-06	4,1E-07	3,1E-07	2,4E-07	2,2E-07	2,1E-07	0,697	0,041	0,031	0,036	0,044	0,074	
Ra226		1	4,7E-06	9,6E-07	6,2E-07	8,0E-07	1,5E-06	2,8E-07	0,799	0,096	0,062	0,120	0,300	0,098	
Pb210		1	8,4E-06	3,6E-06	2,2E-06	1,9E-06	1,9E-06	6,9E-07	1,428	0,360	0,220	0,285	0,380	0,242	
Po210		1	2,6E-05	8,8E-06	4,4E-06	2,6E-06	1,6E-06	1,2E-06	4,420	0,880	0,440	0,390	0,320	0,420	
<b>Migrationsgruppe U-235 - Pa-231 - Ac-227 - Th-227 - Ra-223</b>															
U235		1	3,5E-07	1,3E-07	8,5E-08	7,1E-08	7,0E-08	4,7E-08	0,060	0,013	0,009	0,011	0,014	0,016	
Pa231		1	0,000013	1,3E-06	1,1E-06	9,2E-07	8,0E-07	7,1E-07	2,210	0,130	0,110	0,138	0,160	0,249	
Ac227		1	3,3E-05	3,1E-06	2,2E-06	1,5E-06	1,2E-06	1,1E-06	5,610	0,310	0,220	0,225	0,240	0,385	
Th227		1	3,0E-07	7,0E-08	3,6E-08	2,3E-08	1,5E-08	8,8E-09	0,051	0,007	0,004	0,003	0,003	0,003	
Ra223		1	5,3E-06	1,1E-06	5,7E-07	4,5E-07	3,7E-07	1,0E-07	0,901	0,110	0,057	0,068	0,074	0,035	
<b>Migrationsgruppe Th-229 - Ra-225 - Ac-225</b>															
Th-229		1	1,1E-05	1,0E-06	7,8E-07	6,2E-07	5,3E-07	4,9E-07	1,870	0,100	0,078	0,093	0,106	0,172	
Ra-225		1	0,0000071	1,2E-06	6,1E-07	5,0E-07	4,4E-07	9,9E-08	1,207	0,120	0,061	0,075	0,088	0,035	
Ac-225		1	4,6E-07	1,8E-07	9,1E-08	5,4E-08	3,0E-08	2,4E-08	0,078	0,018	0,009	0,008	0,006	0,008	
Migrationsgruppe Th-232 - Ra-228 - Th-228 - Ra-224									6,970	0,718	0,432	0,690	1,169	0,370	
Migrationsgruppe Th-230 - Ra-226 - Pb-210 - Po-210									7,344	1,377	0,753	0,831	1,044	0,833	
Migrationsgruppe U-235 - Pa-231 - Ac-227 - Th-227 - Ra-223									8,832	0,570	0,399	0,445	0,491	0,688	
Migrationsgruppe Th-229 - Ra-225 - Ac-225									3,155	0,238	0,148	0,176	0,200	0,215	

**Modell der gekoppelten Migration**

Nuklid	R	C	Dosiskoeffizienten Ingestion						Ingestionsdosis						
			<= 1 a	1-2 a	2-7 a	7-12 a	12-17 a	>17 a	<= 1 a	1-2 a	2-7 a	7-12 a	12-17 a	>17 a	
			[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[mSv/a]	[mSv/a]	[mSv/a]	[mSv/a]	[mSv/a]	[mSv/a]	
Verzehrrate (l/a)			170	100	100	150	200	350							
<b>Migrationsgruppe Th-232 - Ra-228 - Th-228 - Ra-224</b>															
Th232	1	1	0,0000046	4,5E-07	3,5E-07	2,9E-07	2,5E-07	2,3E-07	0,782	0,045	0,035	0,0435	0,05	0,0805	
Ra228	120682	8,29E-06	3,0E-05	5,7E-06	3,4E-06	3,9E-06	5,3E-06	6,9E-07	4,2E-05	4,7E-06	2,8E-06	4,8E-06	8,8E-06	2,0E-06	
Th228	1	1	3,7E-06	3,7E-07	2,2E-07	1,5E-07	9,4E-08	7,2E-08	6,3E-01	3,7E-02	2,2E-02	2,3E-02	1,9E-02	2,5E-02	
Ra224	120682	8,29E-06	0,0000027	6,6E-07	3,5E-07	2,6E-07	0,0000002	6,5E-08	3,803E-06	5,469E-07	2,9E-07	3,232E-07	3,314E-07	1,885E-07	
<b>Migrationsgruppe Th-230 - Ra-226 - Pb-210 - Po-210</b>															
Th230	1	1	4,1E-06	4,1E-07	3,1E-07	2,4E-07	2,2E-07	2,1E-07	0,697	0,041	0,031	0,036	0,044	0,074	
Ra226	120682	8,29E-06	4,7E-06	9,6E-07	6,2E-07	8,0E-07	1,5E-06	2,8E-07	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	
Pb210	1533	0,000652	8,4E-06	3,6E-06	2,2E-06	1,9E-06	1,9E-06	6,9E-07	0,001	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	
Po210	1	1	2,6E-05	8,8E-06	4,4E-06	2,6E-06	1,6E-06	1,2E-06	4,420	0,880	0,440	0,390	0,320	0,420	
<b>Migrationsgruppe U-235 - Pa-231 - Ac-227 - Th-227 - Ra-223</b>															
U235	51	1	3,5E-07	1,3E-07	8,5E-08	7,1E-08	7,0E-08	4,7E-08	0,060	0,013	0,009	0,011	0,014	0,016	
Pa231	263264	0,000194	1,3E-05	1,3E-06	1,1E-06	9,2E-07	8,0E-07	7,1E-07	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	
Ac227	13994	0,003644	3,3E-05	3,1E-06	2,2E-06	1,5E-06	1,2E-06	1,1E-06	0,020	0,001	0,001	0,001	0,001	0,001	
Th227	1	51	3,0E-07	7,0E-08	3,6E-08	2,3E-08	1,5E-08	8,8E-09	2,601	0,357	0,184	0,176	0,153	0,157	
Ra223	120682	0,000423	5,3E-06	1,1E-06	5,7E-07	4,5E-07	3,7E-07	1,0E-07	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	
<b>Migrationsgruppe Th-229 - Ra-225 - Ac-225</b>															
Th-229	1	1	1,1E-05	1,0E-06	7,8E-07	6,2E-07	5,3E-07	4,9E-07	1,870	0,100	0,078	0,093	0,106	0,172	
Ra-225	120682	8,29E-06	7,1E-06	1,2E-06	6,1E-07	5,0E-07	4,4E-07	9,9E-08	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	
Ac-225	13994	7,15E-05	4,6E-07	1,8E-07	9,1E-08	5,4E-08	3,0E-08	2,4E-08	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	

Migrationsgruppe Th-232 - Ra-228 - Th-228 - Ra-224	1,411	0,082	0,057	0,066	0,069	0,106
Migrationsgruppe Th-230 - Ra-226 - Pb-210 - Po-210	5,118	0,921	0,471	0,426	0,364	0,494
Migrationsgruppe U-235 - Pa-231 - Ac-227 - Th-227 - Ra-223	2,682	0,371	0,193	0,187	0,168	0,175
Migrationsgruppe Th-229 - Ra-225 - Ac-225	1,870	0,100	0,078	0,093	0,106	0,172

**Verhältnis Ingestionsdosis Gekoppelte Migration / Standardmodell**

Migrationsgruppe Th-232 - Ra-228 - Th-228 - Ra-224	0,202	0,114	0,132	0,096	0,059	0,286
Migrationsgruppe Th-230 - Ra-226 - Pb-210 - Po-210	0,697	0,669	0,626	0,513	0,349	0,593
Migrationsgruppe U-235 - Pa-231 - Ac-227 - Th-227 - Ra-223	0,304	0,651	0,483	0,422	0,342	0,254
Migrationsgruppe Th-229 - Ra-225 - Ac-225	0,593	0,420	0,527	0,528	0,530	0,799

**Standardmodell mit Gleichgewichtskorrektur**

Nuklid	R	C	Dosiskoeffizienten Ingestion						Ingestionsdosis					
			<= 1 a	1-2 a	2-7 a	7-12 a	12-17 a	>17 a	<= 1 a	1-2 a	2-7 a	7-12 a	12-17 a	>17 a
			[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[mSv/a]	[mSv/a]	[mSv/a]	[mSv/a]	[mSv/a]	[mSv/a]
Verzehrrate (l/a)			170	100	100	150	200	350						
<b>Migrationsgruppe Th-232 - Ra-228 - Th-228 - Ra-224</b>														
Th232		1	4,6E-06	4,5E-07	3,5E-07	2,9E-07	2,5E-07	2,3E-07	0,782	0,045	0,035	0,044	0,050	0,081
Ra228		1	3,0E-05	5,7E-06	3,4E-06	3,9E-06	5,3E-06	6,9E-07	5,100	0,570	0,340	0,585	1,060	0,242
Th228		1	3,7E-06	3,7E-07	2,2E-07	1,5E-07	9,4E-08	7,2E-08	0,629	0,037	0,022	0,023	0,019	0,025
Ra224		1	2,7E-06	6,6E-07	3,5E-07	2,6E-07	2,0E-07	6,5E-08	0,459	0,066	0,035	0,039	0,040	0,023
<b>Migrationsgruppe U-238, U-234, Th-230 - Ra-226 - Pb-210 - Po-210</b>														
U238		1	3,4E-07	1,2E-07	8,0E-08	6,8E-08	6,7E-08	4,5E-08	0,058	0,012	0,008	0,010	0,013	0,016
U234		1	3,7E-07	1,3E-07	8,8E-08	7,4E-08	7,4E-08	4,9E-08	0,063	0,013	0,009	0,011	0,015	0,017
Th230		1	4,1E-06	4,1E-07	3,1E-07	2,4E-07	2,2E-07	2,1E-07	0,697	0,041	0,031	0,036	0,044	0,074
Ra226		1	4,7E-06	9,6E-07	6,2E-07	8,0E-07	1,5E-06	2,8E-07	0,799	0,096	0,062	0,120	0,300	0,098
Pb210		1	8,4E-06	3,6E-06	2,2E-06	1,9E-06	1,9E-06	6,9E-07	1,428	0,360	0,220	0,285	0,380	0,242
Po210		1	2,6E-05	8,8E-06	4,4E-06	2,6E-06	1,6E-06	1,2E-06	4,420	0,880	0,440	0,390	0,320	0,420
<b>Migrationsgruppe U-235 - Pa-231 - Ac-227 - Th-227 - Ra-223</b>														
U235		1	3,5E-07	1,3E-07	8,5E-08	7,1E-08	7,0E-08	4,7E-08	0,060	0,013	0,009	0,011	0,014	0,016
Pa231		1	1,3E-05	1,3E-06	1,1E-06	9,2E-07	8,0E-07	7,1E-07	2,210	0,130	0,110	0,138	0,160	0,249
Ac227		1	3,3E-05	3,1E-06	2,2E-06	1,5E-06	1,2E-06	1,1E-06	5,610	0,310	0,220	0,225	0,240	0,385
Th227		1	3,0E-07	7,0E-08	3,6E-08	2,3E-08	1,5E-08	8,8E-09	0,051	0,007	0,004	0,003	0,003	0,003
Ra223		1	5,3E-06	1,1E-06	5,7E-07	4,5E-07	3,7E-07	1,0E-07	0,901	0,110	0,057	0,068	0,074	0,035
<b>Migrationsgruppe U-233, Th-229 - Ra-225 - Ac-225</b>														
U-233		1	3,8E-07	1,4E-07	9,2E-08	7,8E-08	7,8E-08	5,1E-08	0,065	0,014	0,009	0,012	0,016	0,018
Th-229		1	1,1E-05	1,0E-06	7,8E-07	6,2E-07	5,3E-07	4,9E-07	1,870	0,100	0,078	0,093	0,106	0,172
Ra-225		1	7,1E-06	1,2E-06	6,1E-07	5,0E-07	4,4E-07	9,9E-08	1,207	0,120	0,061	0,075	0,088	0,035
Ac-225		1	4,6E-07	1,8E-07	9,1E-08	5,4E-08	3,0E-08	2,4E-08	0,078	0,018	0,009	0,008	0,006	0,008
Migrationsgruppe Th-232 - Ra-228 - Th-228 - Ra-224									6,970	0,718	0,432	0,690	1,169	0,370
Migrationsgruppe U-238, U-234, Th-230 - Ra-226 - Pb-210 - Po-210									7,465	1,402	0,770	0,852	1,072	0,866
Migrationsgruppe U-235 - Pa-231 - Ac-227 - Th-227 - Ra-223									8,832	0,570	0,399	0,445	0,491	0,688
Migrationsgruppe U-233, Th-229 - Ra-225 - Ac-225									3,220	0,252	0,157	0,188	0,216	0,232

**Modell der gekoppelten Migration**

Nuklid	R	C	Dosiskoeffizienten Ingestion						Ingestionsdosis						
			<= 1 a	1-2 a	2-7 a	7-12 a	12-17 a	>17 a	<= 1 a	1-2 a	2-7 a	7-12 a	12-17 a	>17 a	
			[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[Sv/Bq]	[mSv/a]	[mSv/a]	[mSv/a]	[mSv/a]	[mSv/a]	[mSv/a]	
Verzehrrate			<b>170</b>	<b>100</b>	<b>100</b>	<b>150</b>	<b>200</b>	<b>350</b>							
<b>Migrationsgruppe Th-232 - Ra-228 - Th-228 - Ra-224</b>															
Th232	121400	1	4,6E-06	4,5E-07	3,5E-07	2,9E-07	2,5E-07	2,3E-07		0,782	0,045	0,035	0,044	0,050	0,081
Ra228	120682	1,00595	3,0E-05	5,7E-06	3,4E-06	3,9E-06	5,3E-06	6,9E-07		5,130	0,573	0,342	0,588	1,066	0,243
Th228	121400	1	3,7E-06	3,7E-07	2,2E-07	1,5E-07	9,4E-08	7,2E-08		0,629	0,037	0,022	0,023	0,019	0,025
Ra224	120682	1,00595	2,7E-06	6,6E-07	3,5E-07	2,6E-07	2,0E-07	6,5E-08		0,462	0,066	0,035	0,039	0,040	0,023
<b>Migrationsgruppe U-238, U-234, Th-230 - Ra-226 - Pb-210 - Po-210</b>															
U238	51	1	3,4E-07	1,2E-07	8,0E-08	6,8E-08	6,7E-08	4,5E-08		0,058	0,012	0,008	0,010	0,013	0,016
U234	51	1	3,7E-07	1,3E-07	8,8E-08	7,4E-08	7,4E-08	4,9E-08		0,063	0,013	0,009	0,011	0,015	0,017
Th230	121400	0,00042	4,1E-06	4,1E-07	3,1E-07	2,4E-07	2,2E-07	2,1E-07		0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
Ra226	120682	0,000423	4,7E-06	9,6E-07	6,2E-07	8,0E-07	1,5E-06	2,8E-07		0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
Pb210	1533	0,033268	8,4E-06	3,6E-06	2,2E-06	1,9E-06	1,9E-06	6,9E-07		0,048	0,012	0,007	0,009	0,013	0,008
Po210	3000	0,017	2,6E-05	8,8E-06	4,4E-06	2,6E-06	1,6E-06	1,2E-06		0,075	0,015	0,007	0,007	0,005	0,007
<b>Migrationsgruppe U-235 - Pa-231 - Ac-227 - Th-227 - Ra-223</b>															
U235	51	1	3,5E-07	1,3E-07	8,5E-08	7,1E-08	7,0E-08	4,7E-08		0,060	0,013	0,009	0,011	0,014	0,016
Pa231	263264	0,000194	1,3E-05	1,3E-06	1,1E-06	9,2E-07	8,0E-07	7,1E-07		0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
Ac227	13994	0,003644	3,3E-05	3,1E-06	2,2E-06	1,5E-06	1,2E-06	1,1E-06		0,020	0,001	0,001	0,001	0,001	0,001
Th227	121400	0,00042	3,0E-07	7,0E-08	3,6E-08	2,3E-08	1,5E-08	8,8E-09		0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
Ra223	120682	0,000423	5,3E-06	1,1E-06	5,7E-07	4,5E-07	3,7E-07	1,0E-07		0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
<b>Migrationsgruppe U-233, Th-229 - Ra-225 - Ac-225</b>															
U-233	51	1	3,8E-07	1,4E-07	9,2E-08	7,8E-08	7,8E-08	5,1E-08		0,065	0,014	0,009	0,012	0,016	0,018
Th-229	121400	0,00042	1,1E-05	1,0E-06	7,8E-07	6,2E-07	5,3E-07	4,9E-07		0,001	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
Ra-225	120682	0,000423	7,1E-06	1,2E-06	6,1E-07	5,0E-07	4,4E-07	9,9E-08		0,001	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
Ac-225	13994	0,003644	4,6E-07	1,8E-07	9,1E-08	5,4E-08	3,0E-08	2,4E-08		0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000

Migrationsgruppe Th-232 - Ra-228 - Th-228 - Ra-224	7,003	0,722	0,434	0,694	1,175	0,372
Migrationsgruppe U-238, U-234, Th-230 - Ra-226 - Pb-210 - Po-210	0,244	0,052	0,032	0,037	0,046	0,048
Migrationsgruppe U-235 - Pa-231 - Ac-227 - Th-227 - Ra-223	0,081	0,014	0,009	0,012	0,015	0,018
Migrationsgruppe U-233, Th-229 - Ra-225 - Ac-225	0,066	0,014	0,009	0,012	0,016	0,018

**Verhältnis Ingestionsdosis Gekoppelte Migration / Standardmodell**

Migrationsgruppe Th-232 - Ra-228 - Th-228 - Ra-224	1,005	1,005	1,005	1,005	1,006	1,004
Migrationsgruppe U-238, U-234, Th-230 - Ra-226 - Pb-210 - Po-210	0,033	0,037	0,041	0,044	0,043	0,056
Migrationsgruppe U-235 - Pa-231 - Ac-227 - Th-227 - Ra-223	0,009	0,025	0,023	0,026	0,030	0,026
Migrationsgruppe U-233, Th-229 - Ra-225 - Ac-225	0,021	0,056	0,059	0,063	0,073	0,077