

**Weiterentwicklung des  
Standes von  
Wissenschaft  
und Technik bei  
der Sicherheit der  
Behandlung bestrahlter  
Brennelemente,  
Wärme entwickelnder  
radioaktiver Abfälle  
und radioaktiver Abfälle  
mit vernachlässigbarer  
Wärmeentwicklung**

**Teilbericht zum AP 2  
Abfälle mit  
vernachlässigbarer  
Wärmeentwicklung**

**Weiterentwicklung des  
Standes von  
Wissenschaft  
und Technik bei  
der Sicherheit der  
Behandlung bestrahlter  
Brennelemente,  
Wärme entwickelnder  
radioaktiver Abfälle und  
radioaktiver Abfälle mit  
vernachlässigbarer  
Wärmeentwicklung**

**Teilbericht zum AP 2**

**Abfälle mit  
vernachlässigbarer  
Wärmeentwicklung**

Juliane Krüger (GRS)  
Florian Rowold (GRS)  
Oliver Bartos (GRS)  
Tobias Grelle (GRS)  
Marta Meloni (GRS)  
Margarita Tzivaki (GRS)  
Gunhild von Oertzen (Brenk)  
Stefan Thierfeldt (Brenk)  
Yevgeniy Shapiro (Brenk)  
Olaf Nitzsche (Brenk)  
Ralf Kunz (Brenk)

Januar 2024

**Anmerkung:**

Das diesem Bericht zugrunde liegende Forschungsvorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz (BMUV) unter dem Förderkennzeichen 4720E03366 durchgeführt.

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei der GRS.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der GRS wieder und muss nicht mit der Meinung des BMUV übereinstimmen.

**GRS - 717  
ISBN 978-3-910548-08-4**

**Deskriptoren**

Behandlung, Konditionierung, Lagerung, Ortsdosisleistung, Qualifizierung, Radioaktive Abfälle, Verpackung

## **Kurzfassung**

Radioaktive Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung werden in Deutschland für die Zwischenlagerung und Endlagerung mit den Zielen konditioniert, die gewünschten stofflichen Eigenschaften herbeizuführen und das Volumen zu reduzieren. Im dem vorliegenden Bericht werden die aktuellen verfahrenstechnischen Entwicklungen auf dem Gebiet der Abfallbehandlung identifiziert und analysiert. Für Ionenaustauscherharze und Verdampferkonzentrate werden weiterführende Analysen zur Bestimmung der Quellterme von konditionierten Abfallgebinden und der Dosisleistung in deren Nahfeld durchgeführt. Ein weiterer Schwerpunkt des Forschungsvorhabens befasst sich mit den Möglichkeiten zur Nachkonditionierung und -charakterisierung von Altabfällen und der vor der Verbringung in das Endlager anstehenden Produktkontrolle. Ferner wird das Thema der Verarbeitung und Behandlung von Abfällen mit hohen Salzfrachten aufgearbeitet. Im Hinblick auf die Annahmebedingungen des Endlagers Konrad wird der Abfallstrom der radioaktiven Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung hinsichtlich der Inventare von alpha-strahlenden Radionukliden und der Gesamtaktivität von Kohlenstoff-14 analysiert.



## **Abstract**

In Germany, radioactive waste with negligible heat generation is conditioned for storage and final disposal with the aim of achieving the desired material properties and reducing the volume. This report identifies and analyses current process-engineering developments in the field of waste treatment. For ion exchange resins and evaporator concentrates, further analyses are carried out to determine the source terms of conditioned waste packages and the dose rate in their near field. Another focus of the research project lies on the possibilities for reconditioning and characterization of old waste products and the product control prior to shipment to the final repository. Furthermore, the topic of processing and treatment of waste with high salt loads is being analyzed. With regard to the acceptance criteria of the Konrad repository, the waste stream of radioactive waste with negligible heat generation is analyzed with regard to the inventories of alpha-emitting radionuclides and the total activity of carbon-14.



# Inhaltsverzeichnis

	<b>Kurzfassung</b> .....	<b>I</b>
	<b>Abstract</b> .....	<b>III</b>
<b>1</b>	<b>Einleitung</b> .....	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Behandlung und Konditionierung von radioaktiven Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung</b> .....	<b>3</b>
2.1	Allgemeine Grundlagen .....	3
2.1.1	Endlagerungsbedingungen Konrad (EBK) .....	4
2.1.2	Verarbeitung und Konditionierung.....	6
2.2	Stand von Wissenschaft und Technik .....	8
2.2.1	Verwendung, Eigenschaften und Konditionierung von Ionenaustauscherharzen und Verdampferkonzentraten.....	8
2.2.2	Behandlungsmethoden im internationalen Kontext .....	23
2.2.3	Anforderungen an die Konditionierung von Konrad-Containern .....	26
<b>3</b>	<b>Inventar- und Ortsdosisleistungsanalysen</b> .....	<b>33</b>
3.1	Rechenmethode .....	33
3.2	Ionenaustauscherharze im MOSAIK®-Behälter .....	35
3.2.1	Ausgangsdaten.....	35
3.2.2	Ergebnisse.....	37
3.2.3	2x1x1-Anordnung von MOSAIK®-Behältern .....	42
3.2.4	Bewertung .....	42
3.3	Verdampferkonzentrate in VBA-Behältern .....	44
3.3.1	Ausgangsdaten.....	44
3.3.2	Ergebnisse.....	47
3.3.3	2x1x1-Anordnung von VBA-Behältern .....	53
3.3.4	Bewertung .....	56

<b>4</b>	<b>Nachkonditionierung und -qualifizierung von Altabfällen .....</b>	<b>59</b>
4.1	Fallbeispiele zum Umgang mit Altabfällen bei der KTE, beim Kernkraftwerk Brunsbüttel und der Landessammelstelle Niedersachsen.....	60
4.1.1	Altabfälle bei der KTE .....	60
4.1.2	Altabfälle beim Kernkraftwerk Brunsbüttel .....	63
4.1.3	Altabfälle bei der Landessammelstelle Niedersachsen .....	68
4.2	Bewertung .....	70
<b>5</b>	<b>Behandlungsmöglichkeiten von Abfällen mit hohen Salzfrachten ....</b>	<b>71</b>
5.1	Sachstand zu den Abfällen der Schachtanlage Asse II .....	71
5.2	Rückholkonzepte .....	73
5.3	Behandlungsmöglichkeiten .....	75
5.4	Internationaler Vergleich .....	76
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung .....</b>	<b>77</b>
	<b>Literaturverzeichnis.....</b>	<b>79</b>
	<b>Abbildungsverzeichnis.....</b>	<b>89</b>
	<b>Tabellenverzeichnis.....</b>	<b>93</b>
	<b>Abkürzungsverzeichnis.....</b>	<b>95</b>
<b>A</b>	<b>Verbesserung der Abschätzung der Aktivität von C-14 in Abfällen für das Endlager Konrad .....</b>	<b>97</b>
<b>B</b>	<b>Bewertung der in radioaktiven Abfällen in Deutschland tatsächlich vorliegenden Inventare von alpha-strahlenden Nukliden .....</b>	<b>125</b>

# 1 Einleitung

In Deutschland sind mit dem Betriebsbeginn der Kernkraftwerke und Forschungsreaktoren, sowie mit dem Einsatz radioaktiver Materialien in Medizin und Forschung, die sog. radioaktiven Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung angefallen. Die Schachanlage Asse II und das Endlager Morsleben wurden bereits zur Endlagerung radioaktiver Abfälle genutzt. In die Schachanlage Asse II wurden von 1967 bis 1978 ca. 47.000 m<sup>3</sup> und in das Endlager Morsleben bis 1998 ca. 37.000 m<sup>3</sup> ein- bzw. endgelagert. Aktuell wird das Endlager Morsleben stillgelegt, und aufgrund der technischen Gegebenheiten wird untersucht, ob die Abfälle der Schachanlage Asse II bergbar sind. Für die Endlagerung der in Deutschland gelagerten und noch anfallenden Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung ist das Endlager Konrad mit einem Volumen von 303.000 m<sup>3</sup> vorgesehen. Die zugehörigen Endlagerungsbedingungen Konrad beinhalten allgemeine Anforderungen an die Abfallgebinde wie auch spezifische Anforderungen an Abfallprodukte und -behälter sowie Aktivitätsbegrenzungen für einzelne Radionuklide und Massenbegrenzungen für nichtradioaktive schädliche Stoffe. Bis zum Zeitpunkt der Einlagerung der Abfälle in das respektive Endlager sind die Abfälle auf der Basis der geltenden Bestimmungen sicher zwischenzulagern. Die größten Abfallströme sind Betriebsabfälle aus Kernkraftwerken und Stilllegungsabfälle. Dabei fallen einige Betriebsabfälle auch in flüssiger Form an. Generell besteht die Zielstellung bei der Behandlung der Abfälle, diese in eine feste, nicht gärfähige Form zu überführen und das Volumen soweit möglich zu reduzieren. Dies muss unter Berücksichtigung der radiologischen Anforderungen sowie der generell geltenden Regularien erfolgen.

Im vorliegenden Bericht wird im Kapitel 2 der aktuelle Stand von Wissenschaft und Technik auf dem Gebiet der Verarbeitungs- und Konditionierungstechniken dargestellt, sowie einzelne Kampagnen detailliert beschrieben. Auf die Behandlung und Konditionierung der Abfallprodukte der Ionenaustauscherharze und der Verdampferkonzentrate wird vertieft eingegangen. Für beide Abfallarten folgen im Kapitel 3 ausführliche Inventar- und Dosisleistungsanalysen unter Berücksichtigung verschiedener Volumenreduktionsfaktoren, verschiedener Abschirmungskonfigurationen, gängiger Behälter und Gebindeanordnungen.

In Deutschland lagert ein sehr großes Volumen an Abfällen, welche nach den Annahmebedingungen des Endlagers Morsleben konditioniert wurden, sog. Altabfälle. Um die aktuellen Anforderungen zu erfüllen, müssen diese Abfälle nachkonditioniert und -qualifiziert werden. Hierbei werden von den Kernkraftwerksbetreibern, der Kerntechnischen

Entsorgung Karlsruhe (KTE) GmbH, dem Entsorgungswerk für Nuklearanlagen und den Landessammelstellen im Rahmen der jeweiligen Randbedingungen verschiedene Strategien verfolgt, welche im Kapitel 4 anhand von Fallbeispielen der besagten Akteure aufgezeigt werden.

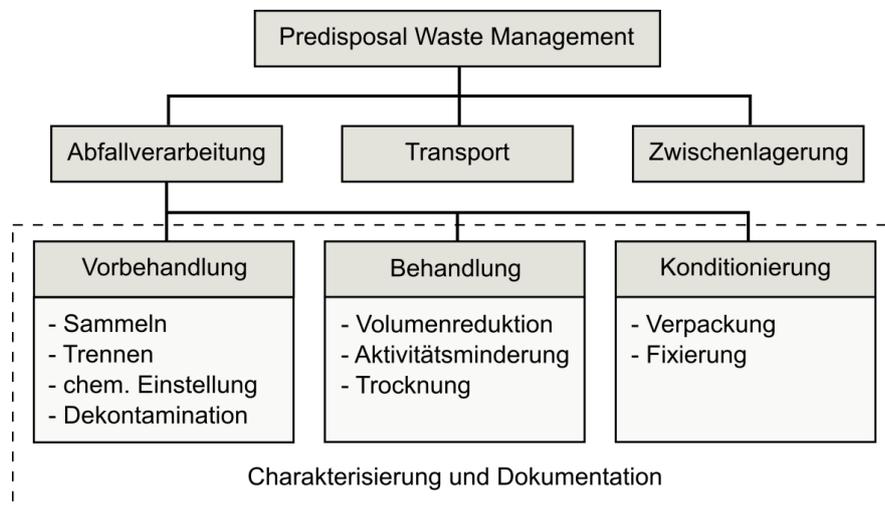
Mit einer Bergung der Abfälle aus der Schachanlage Asse II würde ein neuer Abfallstrom im Vergleich zu den ursprünglich projektierten Abfallströmen entstehen, welcher sich als Besonderheit durch eine hohe Salzfracht auszeichnen wird. Im Kapitel 5 werden die verfügbaren Informationen zu den Abfällen in der Schachanlage Asse II, der geplanten Rückholung und den Verarbeitungsmöglichkeiten analysiert und zusammengefasst.

Für das Endlager Konrad existieren verschiedene Aktivitätsgrenzwerte für einzelne Radionuklide, die in den Endlagerungsbedingungen niedergelegt sind. Sie basieren auf verschiedenen Analysen der Auswirkungen der ins Endlager verbrachten radioaktiven Abfälle auf das Wirtsgestein, auf Analysen möglicher Störfälle während der Betriebsphase sowie auf Analysen der langfristigen Sicherheit der im Endlager gelagerten Radionuklide. Eines dieser Radionuklide ist Kohlenstoff-14, welches im Wesentlichen aus aktiviertem Stahl stammt, der insbesondere aus der Entsorgung der Reaktordruckbehälter und deren Einbauten anfällt. Im Anhang A wertet die Brenk Systemplanung GmbH vorliegende verbesserte Aktivierungsrechnungen für Reaktordruckbehälter und Einbauten deutscher Kernkraftwerke im Hinblick auf den Gehalt an Kohlenstoff-14 aus und zieht hieraus Schlüsse zur Einhaltung des Kohlenstoff-14-Grenzwerts für das Endlager Konrad. Im Anhang B untersucht die Brenk Systemplanung GmbH, welche Daten für die Abschätzung der Alpha-Aktivität der radioaktiven Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung in Deutschland verfügbar sind. Aufgrund der bereits vorhandenen Datenlage wird eine grobe Abschätzung der Alpha-Gesamtaktivität durchgeführt und mit den Endlagerungsbedingungen verglichen.

## 2 Behandlung und Konditionierung von radioaktiven Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung

### 2.1 Allgemeine Grundlagen

Alle Arbeitsschritte – Abfallverarbeitung, Transport und Zwischenlagerung von radioaktiven Abfällen – die vor der Endlagerung erfolgen, werden auch als Predisposal Waste Management zusammengefasst. Die Einteilung, dargestellt in Abb. 2.1, wird auch von der Internationalen Atomenergie-Organisation (IAEO) vorgenommen /IAE 18/. Mit Abfallverarbeitung ist die Vorbehandlung, Behandlung und Konditionierung der Abfälle bzw. Abfallprodukte gemeint. Zur Vorbehandlung und Behandlung werden vorbereitende Tätigkeiten (Sammeln, Trennen, etc.) und das eigentliche Verarbeiten (Trocknen, Verbrennen, etc.) der Abfälle zu Abfallprodukten verstanden. Die Verpackung und Fixierung von Abfällen und Abfallprodukten zur Herstellung eines Abfallgebindes ist im Sinne der Endlagerungsbedingungen Konrad (EBK) eine Konditionierung. Konditionierung kann auch mit dem Ziel einer geordneten und sicheren Zwischenlagerung, zur Produktion eines nicht für die Endlagerung vorgesehenen Abfallgebindes, durchgeführt werden. Radioaktive Abfälle werden z. B. oft in einem ersten Konditionierungsschritt in Fässer verpackt und fixiert.



**Abb. 2.1** Schritte und Bestandteile des Abfallmanagements vor der Endlagerung /GRS 15/

### 2.1.1 Endlagerungsbedingungen Konrad (EBK)

Im Folgenden werden kurz einige Rahmenbedingungen aus den EBK beschrieben. Die Themen wurden entsprechend der untersuchten Schwerpunkte des Berichts gewählt.

Die Anforderungen der EBK bilden die Rahmenbedingungen für die Verarbeitung und Konditionierung radioaktiver Abfälle /BFS 15/. In den EBK sind Grundanforderungen für die Abfallprodukte definiert (u. a. feste Form, nicht faul- oder gärfähig, etc.). Des Weiteren müssen die Abfallprodukte folgenden (APG) zugeordnet werden und die damit verbundenen Anforderungen erfüllen<sup>1</sup>:

- APG 01 (z. B. Bitumen- und Kunststoffprodukte)
- APG 02 (z. B. Feststoffe)
- APG 03 (z. B. metallische Feststoffe)
- APG 04 (z. B. Presslinge) Abfallproduktgruppen
- APG 05 (z. B. zementierte/betonierte Abfälle)
- APG 06 (z. B. Konzentrate)

An die Abfälle werden verschiedene Qualitätsanforderungen hinsichtlich sicherheitstechnischer Aspekte gestellt. Aus der Störfallanalyse sind die Aktivitätsgrenzwerte und aus den Untersuchungen zur thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins sind die Aktivitätswerte für Leitnuklide und weitere Nuklide abgeleitet. Die Grenzwerte der Störfallanalyse beziehen sich auf APG und Abfallbehälterklassen (ABK) (siehe Abb. 2.2), und die Aktivitätswerte der Betrachtung der thermischen Beeinflussung sind auf die Behältertypen bezogen (siehe Abb. 2.3).

---

<sup>1</sup> Falls ihre Verpackung der Abfallbehälterklasse (ABK) I zugeordnet wird.

Radionuklid / Radionuklidgruppe	Abfallbehälterklasse I						Abfallbehälterklasse II
	Abfallproduktgruppe						Abfallproduktgruppe
	01	02	03	04	05	06	
Na-22	2,3E+09	8,0E+10	2,9E+11	7,3E+11	2,3E+12	2,3E+12	5,7E+13
Cl-36	6,0E+09	6,0E+09	6,0E+09	6,0E+09	6,0E+09	6,0E+09	1,4E+11
Co-60	5,0E+09	1,7E+11	6,1E+11	1,6E+12	5,0E+12	5,0E+12	1,2E+14

**Abb. 2.2** Ausschnitt aus Tabelle 3 im Anhang II der EBK zu den Aktivitätsgrenzwerten für Leitnuklide aus der Störfallanalyse (in Bq pro Abfallgebinde) /BFS 15/

Radionuklid / Radionuklidgruppe	Betonbehälter		Gussbehälter			
	Typ I	Typ II	Typ I	Typ II	Typ II *)	Typ III
Be-10	1,3E+12	1,4E+12	8,3E+11	1,4E+12	1,3E+12	1,1E+12
Cl-36	1,3E+12	1,4E+12	8,3E+11	1,4E+12	1,3E+12	1,1E+12
Ar-39	2,7E+12	2,9E+12	1,7E+12	2,9E+12	2,7E+12	2,3E+12
Radionuklid / Radionuklidgruppe	Container					
	Typ I	Typ II	Typ III	Typ IV	Typ V	Typ VI
Be-10	3,9E+12	4,3E+12	9,3E+12	7,8E+12	1,1E+13	5,5E+12
Cl-36	3,9E+12	4,2E+12	9,3E+12	7,8E+12	1,1E+13	5,4E+12
Ar-39	8,0E+12	8,7E+12	1,9E+13	1,6E+13	2,2E+13	1,1E+13

**Abb. 2.3** Ausschnitte aus Tabelle 5 im Anhang II der EBK zu den Aktivitätswerten für Leitnuklide die aus der Analyse zur thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins resultieren (in Bq pro Abfallgebinde) /BFS 15/

Leitnuklide werden im Kontext von Abschirmungsrechnungen, Ausbreitungsrechnungen oder zur Ermittlung von Ortsdosisleistungen verwendet. Sie verfügen über chemische Ähnlichkeit und/oder so hohe spezifische Zerfallsenergie, dass sie schwächer strahlende Radionuklide in ihrer Wirkung überdecken und deren rechnerische Vernachlässigung keine Fehler bei Strahlenschutzrechnungen hervorruft. Bei der Charakterisierung radioaktiver Abfälle werden z. B. Co-60 oder/und Cs-137 als Leitnuklid verwendet. Bei bekannter Vorgeschichte und Zusammensetzung des Materials kann aus der Konzentration der Leitnuklide über Korrelationsfaktoren auf das weitere Radionuklidinventar geschlossen werden.

Neben den Grenzwerten, die sich aus den Sicherheitsanalysen (Störfallanalyse etc.) ergeben, müssen Abfallgebinde zum Zeitpunkt der Anlieferung an das Endlager Konrad

aus Gründen des Strahlenschutzes folgende Ortsdosisleistungswerte einhalten /BFS 15/:

- Oberflächenmittelwert von  $2E+3 \mu\text{Sv/h}$
- lokaler Maximalwert an Oberfläche von  $1E+4 \mu\text{Sv/h}$
- in einem Meter Entfernung von  $1E+2 \mu\text{Sv/h}$

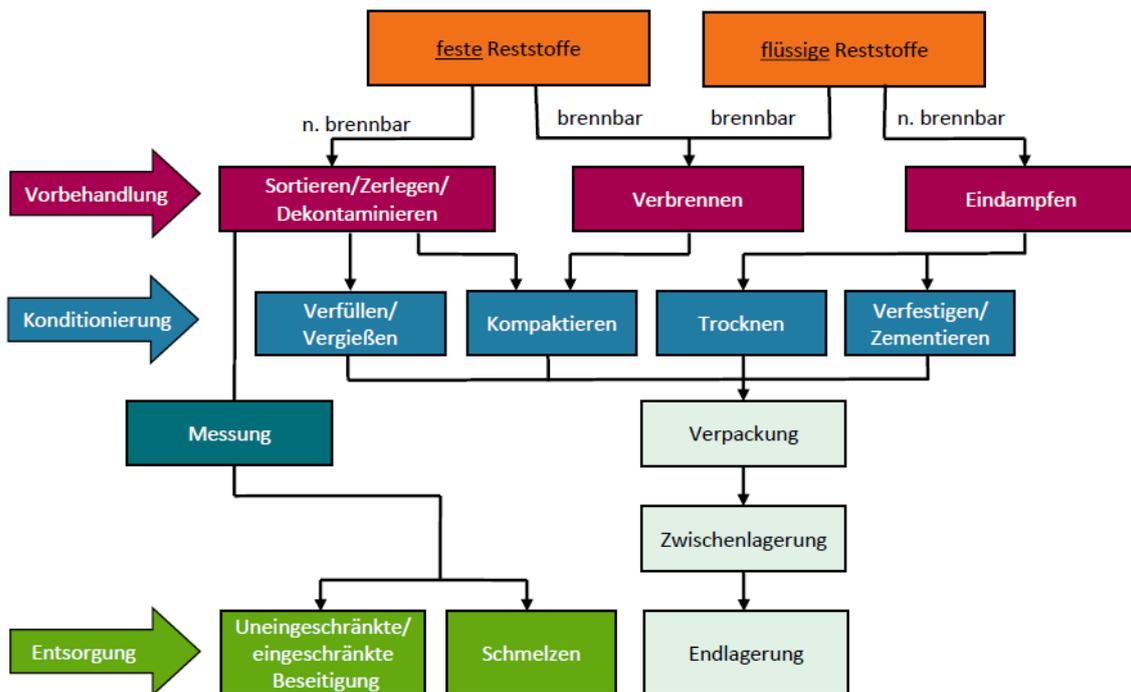
## **Behältertypen**

Für die Verpackung radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung werden zwei Grundtypen – zylindrische (Gussbehälter) und quaderförmige (Stahlblech-, Guss- oder Betoncontainer) Behälter – verwendet. Die Abfallbehälter können in zwei Ausführungen, zwei ABK, verwendet werden, entsprechend den ABK ist die Erfüllung bestimmter Anforderungen vorausgesetzt. Zusätzlich können Abfälle störfallfest (sf) bzw. nicht störfallfest (nsf) verpackt sein. Anforderungen für störfallfeste Verpackung sind u. a. eine Fixierung des Abfalls im Fass und/oder Container /BFS 15/. Einige Belade- und Konditionierungsbeispiele werden in Kap. 2.2.3 vorgestellt.

### **2.1.2 Verarbeitung und Konditionierung**

In Deutschland gibt es eine große Vielfalt von Anwendungen, wie bspw. in der Forschung oder bei der Energieerzeugung, mit radioaktiven Stoffen. Demnach variieren auch die Eigenschaften radioaktiver Abfälle stark. Einheitliche große Stoffströme entstehen beim Betrieb – Schlämme, Verdampferkonzentrate und Ionenaustauscherharze – und Rückbau – Betonstrukturen, Dampferzeuger und Reaktordruckbehälter – von Kernkraftwerken. Die Abfälle aus der Nutzung der Kerntechnik werden lokal am Standort von Kernkraftwerken oder bei externen Dienstleistern, wie bspw. der Gesellschaft für Nuklearservice mbH (GNS), verarbeitet und konditioniert.

Für die Herstellung eines endlagerfähigen Abfallgebindes werden die Rohabfälle vorbehandelt, behandelt und konditioniert. Dabei bildet die genaue Kenntnis der stofflichen, physiochemischen und radiologischen Charakteristika der anfallenden radioaktiven Reststoffe die Entscheidungsgrundlage für das weitere Behandlungsvorgehen. Mit dem Ziel der Volumenreduzierung werden flüssige und feste Abfälle verschiedenen Behandlungsmethoden unterzogen (siehe Abb. 2.4).



**Abb. 2.4** Verfahrensschema der KTE /KTE 18/

*Flüssige nicht brennbare Rohabfälle* werden in Abhängigkeit ihrer Eigenschaften eingedampft, zementiert, dekantiert und/oder getrocknet, um ein festes Abfallprodukt herzustellen. Eine detaillierte Beschreibung zur Behandlung von Ionenaustauscherharzen und Verdampferkonzentraten ist in Kap. 2.2.1 gegeben.

*Flüssige brennbare Rohabfälle* werden verbrannt und kompaktiert oder verfestigt (siehe Kap. 2.2.2). Alternativ werden auch Methoden wie die nasschemische Oxidation, saurer Aufschluss, elektrochemische Oxidation und Destillation eingesetzt, um das Abfallvolumen zu verringern. Bei der nasschemischen Oxidation werden organische Verbindungen durch Zugabe chemischer Oxidationsmittel wie Wasserstoffperoxid oder Ozon zu Kohlenstoffdioxid, Wasser und Sauerstoff sowie geringe Konzentrationen von ungiftigen Salzen und Säuren umgesetzt. Auch über eine elektrochemische Oxidation können organische (auch anorganische) Verbindungen zu Kohlenstoffdioxid und Wasser oxidiert werden /VAL 14/. Beim sauren Aufschluss werden mit einer Mischung aus Salpetersäure und Phosphorsäure bei Temperaturen kleiner 200 °C verschiedene organische Polymere und Öle chemisch zerlegt.

*Feste brennbare Rohabfälle* wie Kunststoff, Textilien, Holz werden zerkleinert, gepresst oder verbrannt und ggf. im Anschluss kompaktiert und verpackt.

*Feste nicht brennbare Rohabfälle* werden zerkleinert, verpresst, kompaktiert und verpackt. Metalle können durch Einschmelzen auch dekontaminiert werden, so dass nur die Rückstände als Abfall anfallen (siehe Kap. 2.2.2).

## **2.2 Stand von Wissenschaft und Technik**

In den folgenden Kapiteln werden die Ergebnisse der Recherche und des Erfahrungsaustausches bei Fachkonferenzen und Gremien bezüglich aktueller Entwicklungen zu Verarbeitung und Konditionierung radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung dargestellt.

In Kap. 2.2.1 wird auf die Verwendung und die Eigenschaften von Ionenaustauscherharzen und Verdampferkonzentraten eingegangen sowie die sich daraus ergebenden Besonderheiten bei Behandlung und Konditionierung beschrieben.

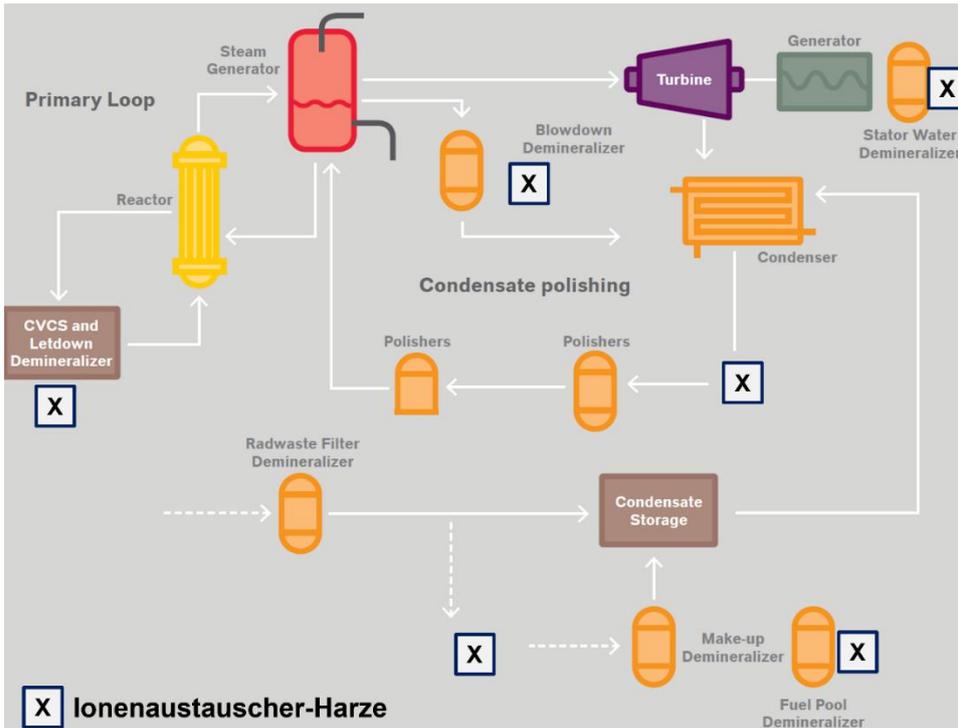
Im Anschluss werden in Kap. 2.2.2 einige internationale Forschungsergebnisse ausgewählter Behandlungsmethoden von radioaktiven Abfällen kurz dargestellt.

In Kap. 2.2.3 sind Beladebeispiele von Konrad-Containern und Anforderung an Beton, der zur Verfüllung bei einer störfallfesten Verpackung verwendet wird, dargestellt. Des Weiteren sind Konditionierungskampagnen der GNS bei verschiedenen kerntechnischen Anlagen beschrieben.

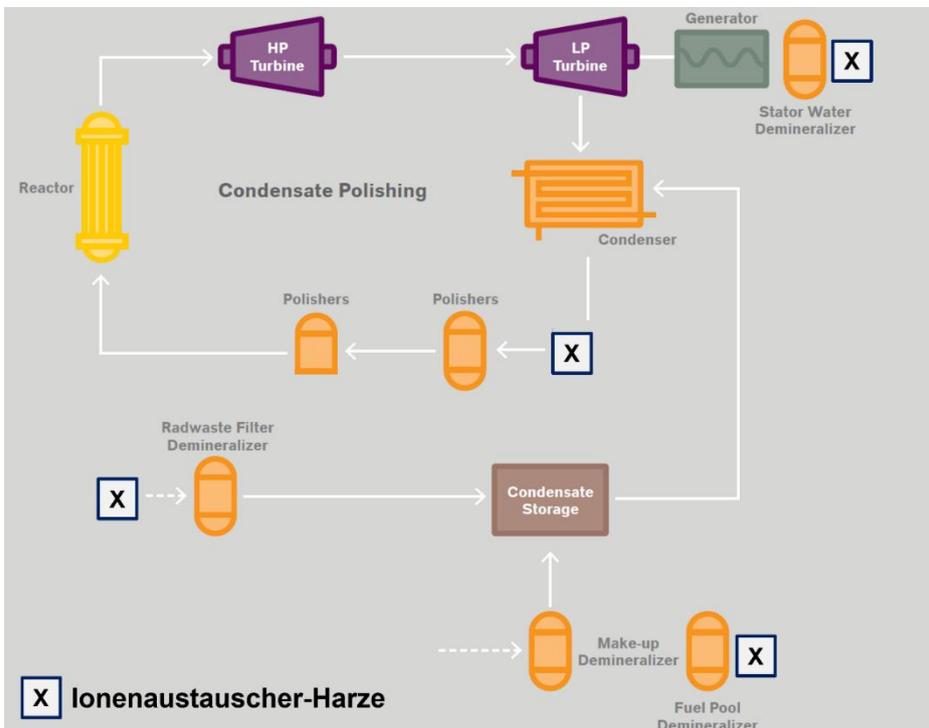
### **2.2.1 Verwendung, Eigenschaften und Konditionierung von Ionenaustauscherharzen und Verdampferkonzentraten**

#### **2.2.1.1 Ionenaustauscherharze**

Beim Betrieb von Leichtwasserreaktoren werden zur Reinigung der Wasserkreisläufe und für die Aufbereitung des radioaktiven Abwassers Ionenaustauscherharze verwendet. Beim Siedewasserreaktor (SWR) treibt der Primärdampf unmittelbar die Turbine an. Deshalb ist mit einer Kontamination in größeren Anlagenbereichen als bei Druckwasserreaktoren (DWR) zu rechnen. In Abb. 2.5 und Abb. 2.6 sind die Wasserkreisläufe und der Einsatz von Ionenaustauscherharzen schematisch vereinfacht dargestellt. In Abhängigkeit des Einsatzbereichs – Primär- oder Sekundärkühlkreislauf im DWR, Kühlkreislauf im SWR oder für die Wasseraufbereitung der Abklingbecken – müssen Ionenaustauscherharze verschiedene Anforderungen erfüllen.



**Abb. 2.5** Schematische Darstellung des Primärkreislaufs von DWR, in überarbeiteter Form aus /LAN 19/ übernommen



**Abb. 2.6** Schematische Darstellung des Kühlkreislaufs von SWR, in überarbeiteter Form aus /LAN 19/ übernommen

Im Falle der Aufbereitung des Wassers aus dem Primärkreislauf bei DWR wird der Wasserkreislauf aus prozess- und anlagentechnischen Gründen durch Zugabe von isotonenreinem Lithiumhydroxid ( ${}^7\text{LiOH}$ ) alkalisch gehalten. Des Weiteren wird Borsäure ( $\text{H}_3\text{BO}_3$ ), die den Neutronenabsorber B-10 im natürlichen Bor-Isotopengemisch<sup>2</sup> enthält, zur Kompensierung der Überschussreaktivität verwendet. Bei der Kernreaktion  $\text{B-10}(n,\alpha)\text{Li-7}$  entsteht ein Li-7-Überschuss, der dem Kühlmittel entzogen werden muss.

Entsprechend der dargestellten Zusammenhänge werden an die Kühlmittelreinigung folgende Anforderungen gestellt:

- Einhaltung einer vorgegebenen Hauptkühlmittelqualität (Wasserchemie)
- Entfernung von Spalt- und Aktivierungsprodukten
- Entfernung des Li-7-Überschusses
- Entfernung von Korrosionsprodukten

Ionenaustauscherharze sind Kunststoffkugeln oder -partikel mit funktionellen Gruppen, Sulfonsäure- ( $-\text{SO}_3\text{H}$ ) und quartäre Ammoniumgruppen ( $-\text{N}^+\text{R}_3$ ), an der Oberfläche. Der Träger ist ein Polystyrol-Divenylbenzol-Copolymer. In Kernkraftwerken werden Pulver- und Kugelharze verwendet. Pulverharze haben eine mittlere Korngröße von  $40\ \mu\text{m}$  und Kugelharze einen mittleren Durchmesser von ca.  $1\ \text{mm}$  /GUN 97/. Ionenaustauscher können sowohl in ihrer Reinform als Anionen- ( $-\text{N}^+\text{R}_3$ ) oder Kationenaustauscher ( $-\text{SO}_3\text{H}$ ) oder als Gemisch (Mischbettharz) eingesetzt werden.

Während des Betriebs werden die störenden Anionen und/oder Kationen im Kühlmittel gegen die  $\text{OH}^-$ - bzw.  $\text{H}^+$ -Komponente des Ionenaustauschers ausgetauscht und somit auf dem Ionenaustauscher fixiert. Wenn die Reinigungsleistung der Harze erschöpft ist, werden diese vorbehandelt, in die Abfallverarbeitung gegeben und für die Endlagerung konditioniert.

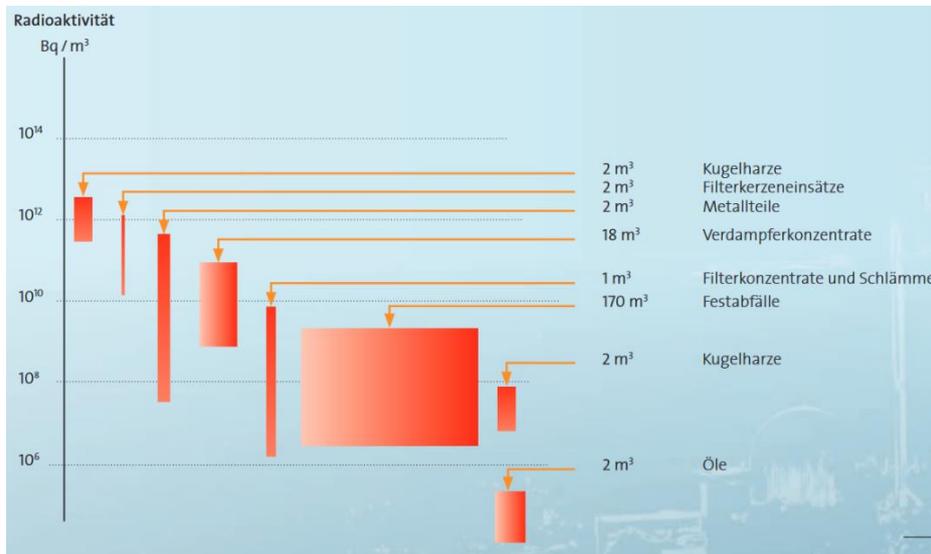
### **Menge und Eigenschaften der Rohabfälle**

In Abb. 2.7 ist beispielhaft die jährliche Menge an Betriebsabfällen und die Bandbreite der Aktivität für Rohabfälle einer 1300-MW-Anlage dargestellt. Neben den Festabfällen,

---

<sup>2</sup> Natürlich vorkommendes Bor besteht aus B-10 (19,9 %) und B-11 (80,1 %).

wie Papier, Kleidungsstücke, Bauschutt und Metallschrott, sind die anderen Abfälle verbrauchte Hilfsmittel, wie Kugelharze und Filterkerzeneinsätze oder Konzentrate der Wasseraufbereitung (Verdampferkonzentrate, Filterkonzentrate und Schlämme). Die Radioaktivität der Rohabfälle variiert nach Einsatzbereich und deckt eine bis mehrere Größenordnungen ab.



**Abb. 2.7** Typische Betriebsabfälle aus einem 1300 MW DWR /VGB 11/

Im Schnitt fielen in deutschen DWR 2 m³ Ionenaustauscherharze bzw. in deutschen SWR 7 m³ Ionenaustauscherharze pro Jahr an (siehe Tab. 2.1).

**Tab. 2.1** Jährlich anfallende Menge an ausgedienten Ionenaustauscherharzen in deutschen Kernkraftwerken /TÜV 14/

DWR Volumen (m³/a)	DWR radioaktives Inventar (Bq/m³)	SWR Volumen (m³/a)	SWR radioaktives Inventar (Bq/m³)
2	10E11 bis 10E13	7	10E10 bis 10E13

In Abb. 2.8 sind Dekontaminationsfaktoren von Ionenaustauscherharzen (Mischbett) die zur Reinigung des Primärkreislaufs verwendet werden gezeigt. Die Radioisotope der Korrosionsprodukte entstehen durch Neutronenaktivierung der im Kühlmittel gelösten Korrosionsprodukte. Durch Schäden an den jeweiligen Bauteilen, wie bspw. an Brennstäben (Spaltprodukte), Steuerstabspitzen (Ag, Sb), Dichtungssystemen (Ag-In-Cd) und Anfahrneutronenquellen (Sb-Be), gelangen die entsprechenden Nuklide ins Kühlmittel /NEE 97/.

Cross-link rate	Feed	Gel/gel S 200 KR/ M 800 KR	DF	Macro/Gel 12%	DF	Macro/gel 16%	DF
<b>Fission products</b>							
Cs-134	<1.2E+05	<1.0E+04		<1.7E+04		<2.4E+04	
Cs-137	1.50E+05	<1.2E+04	>12.5	<1.9E+04	>7.8	<2.6E+04	>5.8
J-131	<1.0E+05	<9.1E+03		<1.4E+04		<2.0E+04	
Np-239	<1.3E+05	<1.2E+04		<2.0E+04		<2.6E+04	
Rb-88	<3.9E+05	<7.0E+05		<1.4E+07		<1.9E+08	
Ru-103	<1.1E+05	<9.2E+03		<1.7E+04		<2.1E+04	
Ru-106	<1.1E+06	<9.7E+04		<1.7E+05		<2.2E+05	
<b>Activation products</b>							
Ag-110m	3.50E+06	<1.4E+04	>250	<2.5E+04	>140	<3.1E+04	>112
Mo-99	<4.1E+04	<3.6E+03		<6.3E+03		<7.9E+03	
Na-24	1.20E+05	<8.5E+03	>14.1	<9.7E+03	>12.4	<1.3E+04	>9.2
Nb-95	8.20E+06	1.60E+05	51.3	6.00E+05	13.7	1.00E+06	8.2
Sb-122	3.20E+06	<1.4E+04	>229	<2.6E+04	>123	<3.6E+04	>88.9
Sb-124	4.70E+06	<1.1E+04	>427	<1.7E+04	>276	<2.6E+04	>181
Sb-125	<3.5E+05	<2.1E+04		<4.3E+04		<6.0E+04	
Tc-99m	<4.4E+04	<4.4E+03		<8.4E+03		<1.2E+04	
Te-123m	5.10E+05	<4.3E+03	>119	<7.7E+03	>66.2	<9.6E+03	>53.1
Te-125m	<1.3E+07	<1.3E+06		<1.8E+06		<2.5E+06	
W-187	<3.9E+05	<3.8E+04		<6.7E+04		<8.9E+04	
Zn-65	2.60E+05	<9.5E+03	>27.4	<2.0E+04	>13	<2.7E+04	>9.6
Zn-69m	<3.7E+04	<3.1E+03		<7.4E+03		<1.1E+04	
Zr-95	6.30E+06	1.10E+05	57.3	4.50E+05	14	7.80E+05	8.1
Zr-97	2.50E+05	<1.0E+03	>250	<2.1E+04	>11.9	<3.0E+04	>8.3
<b>Corrosion products</b>							
Co-58	7.50E+07	1.10E+05	682	4.80E+05	156	1.20E+06	62.5
Co-60	4.30E+07	3.50E+05	123	1.80E+06	24	3.40E+06	12.6
Cr-51	3.30E+06	2.60E+05	13	1.90E+06	2	3.30E+06	1.0
Fe-59	<4.9E+04	<6.7E+03		3.30E+04		4.10E+04	
Mn-54	1.20E+06	8.10E+03	148	5.10E+04	24	1.10E+05	10.9
Mn-56	<1.3E+05	<1.5E+04		<5.5E+04		<1.4E+05	

**Abb. 2.8** Angaben zu Dekontaminationsfaktoren von downstream CVCS Mischbettfiltern eines Herstellers (LANXESS) von Ionenaustauscherharzen, die für die Kühlkreisläufe in Kernkraftwerken eingesetzt werden /LAN 19/

## Konditionierung

In Abhängigkeit des Einsatzbereichs im Kühlkreislauf (vgl. Abb. 2.5 und Abb. 2.6) weisen die ausgedienten Harze eher niedrige oder sehr hohe Aktivitäten auf (siehe Abb. 2.7). Dementsprechend werden ausgediente Ionenaustauscherharze in 200-l-Fässer oder MOSAIK®-Behälter verpackt. Letztere bestehen aus Gusseisen mit Kugelgraphit und können bei Bedarf auf der Innenseite zusätzlich mit bis zu 12 cm mächtigen

Blei-Linern zur Ertüchtigung der Abschirmung von Gammastrahlung versehen werden. Werden Harze direkt in abgeschirmten Behältern konditioniert, ist keine Fixierung des Materials nötig. In diesem Kapitel wird das Thema Konditionierung von Ionenaustauscherharzen in MOSAIK®-Behältern“ betrachtet.

Ionenaustauscherharze sind flüssige radioaktive Rohabfälle. Sie werden bereits vom Hersteller vor ihrem Einsatz zur Wasseraufbereitung in einer wässrigen Lösung vertrieben und enthalten auch molekular gebundenes Wasser. Der Massenanteil von Wasser im Neuzustand der Harze liegt zwischen 50 % und 60 % /IAE 02/, /ROT 07/. Nach ihrem Einsatz zur Wasseraufbereitung müssen die verbrauchten Ionenaustauscherharze für die Endlagerung in eine feste, nicht gärfähige Form gebracht werden. Zur Einhaltung der Annahmebedingungen für die Zwischen- und Endlagerung muss sichergestellt werden, dass in den mit Harzen befüllten Abfallgebinden weniger als 1 % freies Wasser vorhanden ist. Dafür werden die Harze entweder direkt im Behälter getrocknet oder vorher in einer Trocknungsanlage behandelt und dann konditioniert.

Wenn die Harze als flüssige Abfälle in den MOSAIK®-Behälter gefüllt werden, wird das freie Wasser in mehreren aufeinanderfolgenden Entwässerungsschritten mittels Vakuum-Hebe-Verfahren entfernt. Der Abfall gilt als entwässert, wenn nach einer Standzeit von einer Stunde weniger als 0,1 l Wasser abgezogen werden kann /GNS 21a/.

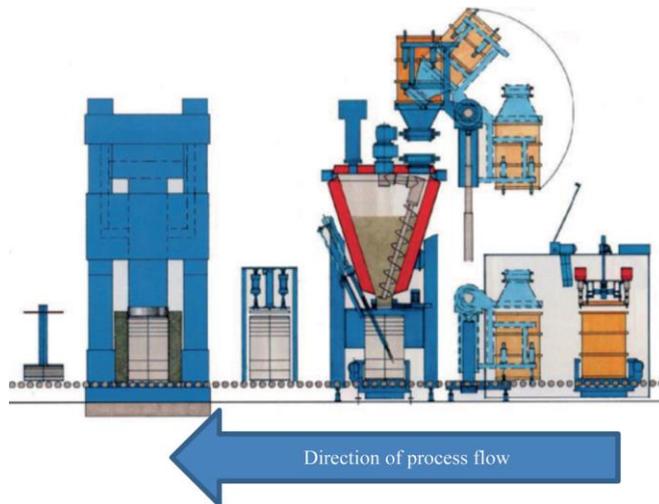
In /FEH 14/ wird eine Trocknungsanlage beschrieben, in der die zu entsorgenden Ionenaustauscherharze entwässert und über ein Dosiersystem dem Trocknungssystem zugeführt werden. Der Trockner besteht aus einem konischen Vakuum-Trockenbehälter mit einem Nennvolumen von 400 l und verfügt über einen mit Öl betriebenen Heizmantel (siehe Abb. 2.9) /ROT 07/, /CEN 09/, /WES 15/.



**Abb. 2.9** Anlage zur Trocknung von Ionenaustauscherharzen der Firma Westinghouse /WES 15/

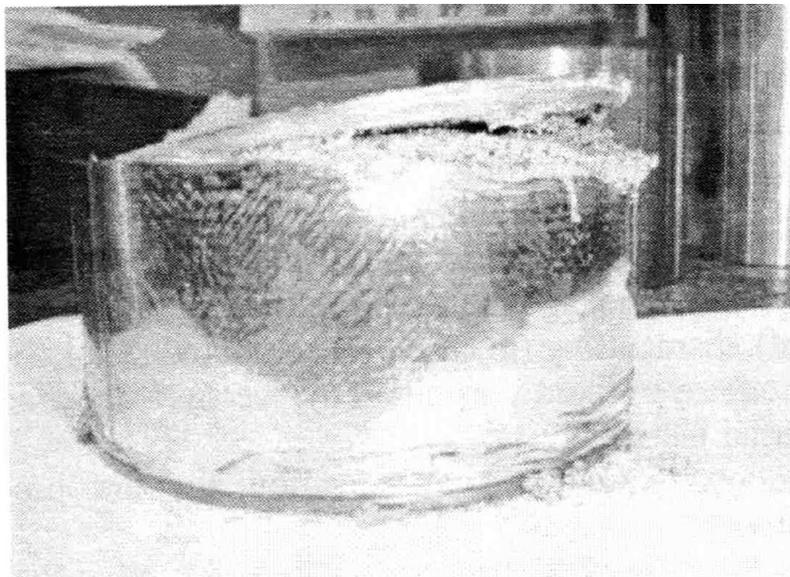
Das Trocknungssystem ist Teil des „Hot Resin Super Compaction“-Prozesses (HRSC), es kann jedoch auch isoliert zur Trocknung von Ionenaustauscherharzen eingesetzt werden /FEH 14/. Der HRSC-Prozess wurde in den 1980er Jahren entwickelt und wird seit den 1990er Jahren in seiner ursprünglichen Variante am Kernkraftwerk Philippsburg angewendet. Die Konditionierung von Ionenaustauscherharzen mittels HRSC-Prozess wird mit Adaptionen an die jeweiligen Anlagengegebenheiten im belgischen Kernkraftwerk Tihange (seit 2009) und im chinesischen Kernkraftwerk Sanmen (seit 2013) durchgeführt /BRA 12/.

Beim HRSC-Prozess werden Ionenaustauscherharze zunächst getrocknet und dann mit 1000 t (> 30 MPa) hochdruckkompaktiert. Als Abfallprodukt entsteht ein wasserfreier monolithischer Styrol-divinylbenzol-Polymerblock. Hierdurch wird eine deutliche Volumenreduktion von 60 % gegenüber dem Rohabfall erreicht /FEH 14/. Der Restwassergehalt nach dem Trocknungsschritt wird mit 4 % angegeben /CEN 09/, /WES 15/. In Abb. 2.10 ist ein vereinfachtes Verfahrensfliessbild des HRSC-Prozesses dargestellt.



**Abb. 2.10** Vereinfachte Darstellung des Prozessablaufs des HRSC-Prozesses der Firma Westinghouse /FEH 14/

Die Presslinge von Kugelharzen sind im Gegensatz zu den Presslingen von Pulverharzen forminstabil (siehe Abb. 2.11). Dies kann zu einem Integritätsverlust der Kompaktierungstrommel führen. Im Kernkraftwerk Philippsburg (KKP1: SWR und KKP2: DWR) wurde der Effekt durch Mischen von Kugel- und Pulverharzen im Trocknungsprozess und dem gemeinsamen Hochdruckverpressen minimiert.



**Abb. 2.11** Durch Rückfedern kompaktierter Kugelharze hervorgerufener Integritätsverlust eines HRSC-Presslings /ROT 07/

Durch eine Zerkleinerung und dem Zermahlen von Kugelharzen vor der Trocknung (HRSC NextGen) konnte der HRSC-Prozess für Kugelharze optimiert werden /FEH 14/,

/FEH 13/. Der dabei entstehende homogene Schlamm wird entsprechend dem HRSC-Prozess weiterverarbeitet.

Durch die Verarbeitung und Konditionierung ausgedienter Harze wird das Abfallvolumen verkleinert, dadurch erhöht sich jedoch die Aktivität bezogen auf das Abfallvolumen. Für die Abgabe an das Endlager Konrad müssen für Endlagergebinde die in Kap. 2.1 gelistete Kontakt- und Ortsdosisleistungswerte eingehalten werden.

Welchen Einfluss die verschiedenen beschriebenen Konditionierungsschritte auf die Kontakt- und Ortsdosisleistung (ODL) eines vollständig und homogen mit ausgedienten Ionenaustauscherharzen beladenen MOSAIK®-Behälters haben, wird nachfolgend untersucht. Dabei werden folgende Szenarien vorausgesetzt:

- entwässerte Harze mit einem Wassergehalt von 53 %
- getrocknete Harze mit einem Wassergehalt von 4 %
- getrocknete und kompaktierte Harze mit einem Wassergehalt von 1 %

In Tab. 2.2 ist eine Übersicht zu Nukliden von ausgedienten Ionenaustauscherharzen (Siemens-KWU-DWR) dargestellt, die im Rahmen der Konditionierung und Verpackung relevant sind /NEE 97/. Der Beitrag eines Nuklides zur Gamma-Strahlungsintensität an der Außenseite eines Behälters ist von der Gamma-Energie, der Aktivität, den Eigenschaften des abschirmenden Materials wie der Halbwertsdicke (HWD), abhängig. Der Gamma-Beitrag der einzelnen Nuklide wird über die Daten in Tab. 2.2 bestimmt, dabei wird für den MOSAIK®-Behälter eine 120 mm dicke Eisenschicht berücksichtigt. Die Radionuklide Co-60 und Cs-137 gelten wegen der relativ langen Halbwertszeiten und der Gamma-Energien als Leitnuklide.

**Tab. 2.2** Übersicht zu den Nukliden in Ionenaustauscherharzen (Siemens-KWU-DWR) /NEE 97/ und den berechneten Gamma-Beiträgen

Nuklid	t <sub>1/2</sub>	γ-Energie	HWD Fe	γ-Beitrag (direkt)	γ-Beitrag (nach 1 a)
Co-58	70,9 d	811 keV	13,2 mm	10,2 %	0,4 %
Co-60	5,73 a	1172 keV und 1332 keV	14,7 mm 18,3 mm	79,0 %	94,4 %
Ag-110	249,9 d	658 keV	11,5 mm	0,2 %	0,1 %
Sb-122	2,7 d	564 keV	11,5 mm	2,8 %	0,0 %
Sb-124	60,3 d	603 keV	11,5 mm	4,0 %	0,1 %
Cs-137	30,17 a	662 keV	11,5 mm	3,8 %	5,0 %

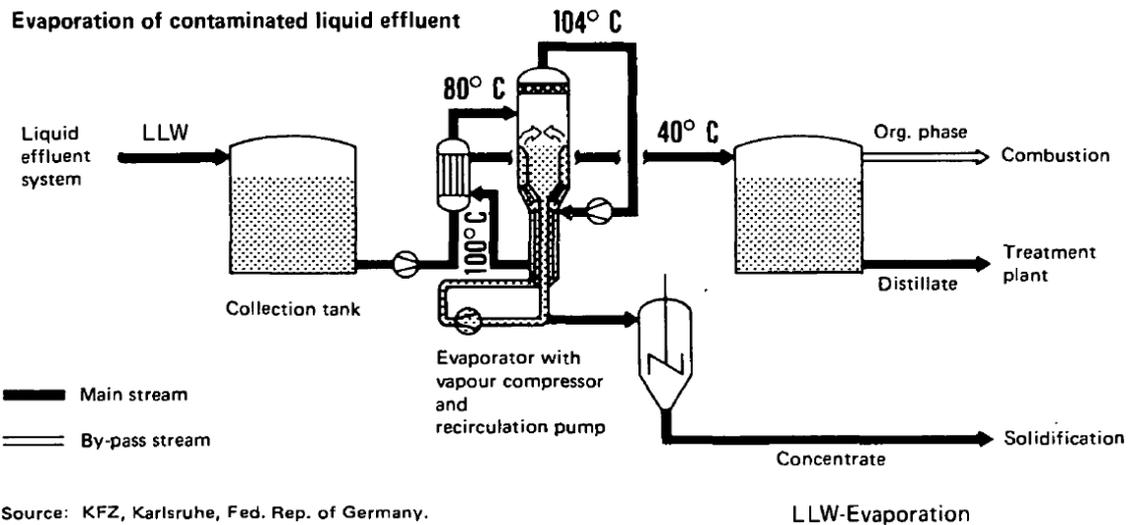
Bezüglich konditionierten Ionenaustauscherharzen wird in diesem Bericht noch zu folgenden Themenschwerpunkten eingegangen:

- Berechnung der ODL verschieden konditionierter Ionenaustauscherharze (siehe Kap. 3.2)
- Berechnung der ODL einer Lageranordnung von konditionierten Ionenaustauscherharze in MOSAIK®-Behältern (siehe Kap. 3.2)
- Nachkonditionierung von Ionenaustauscherharzen (siehe Kap. 4.1.1 und 4.1.2)

### 2.2.1.2 Verdampferkonzentrate

#### Menge und Eigenschaften der Rohabfälle

Zur Verringerung von Korrosion der metallischen Komponenten wird der pH-Wert des Kühlwassers durch Zugabe von LiOH alkalisch gehalten. Zusätzlich wird Borsäure als Neutronenabsorber im Kühlwasser gelöst /NEE 97/. Das im Kernkraftwerk eingesetzte Wasser – Kühlkreislauf, Abklingbecken, etc. – weist nur geringe Konzentrationen radioaktiver Spalt-, Aktivierungs-, und Korrosionsprodukte auf. Daher wird das Wasser verdampft, und es bleiben als Reststoffe die nicht flüchtigen Chemikalien, die zur Einstellung der Wasserchemie verwendet wurden, übrig (siehe Abb. 2.12).



**Abb. 2.12** Behandlung des Abwasser durch Verdampfung der flüchtigen Bestandteile /IAE 89/

Die Zusammensetzung der Verdampferkonzentrate (VDK) ist abhängig vom Reaktortyp, Hersteller, Brennstofftyp und der Betriebshistorie. Informationen zur Zusammensetzung dieses Rohabfalls sind nur sehr schwer zu finden. In einem Konferenzbeitrag ist die Zusammensetzung für einen WWER (DWR) angegeben (siehe Tab. 2.3). Diese VDK bestehen zum größten Teil aus Natrium- und Kaliumhydroxid und Borsäure sowie Natriumnitrat.

**Tab. 2.3** Zusammensetzung der Verdampferkonzentrate in g/l aus /SZA 00/

Verbindung	Konzentration (g/l)
NaOH	72,9
KOH	14,9
H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	76
Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	3,5
NaNO <sub>2</sub>	14,5
NaNO <sub>3</sub>	27,1
NaCl	2
C <sub>6</sub> H <sub>8</sub> O <sub>7</sub>	1,6
C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> O <sub>4</sub> x 2H <sub>2</sub> O	2,8

In Abb. 2.7 (siehe Kap. 2.2.1.1) ist eine Übersicht zur durchschnittlichen Menge und Aktivität von VDK in DWR pro Jahr gegeben. Im Schnitt fielen in deutschen DWR 18 m<sup>3</sup>

Verdampferkonzentrat bzw. in deutschen SWR 20 m<sup>3</sup> Verdampferkonzentrat pro Jahr an (siehe Tab. 2.4).

**Tab. 2.4** Jährlich anfallende Menge an Verdampferkonzentraten in deutschen Kernkraftwerken /TÜV 14/

DWR Volumen (m <sup>3</sup> /a)	DWR radioaktives Inventar (Bq/m <sup>3</sup> )	SWR Volumen (m <sup>3</sup> /a)	SWR radioaktives Inventar (Bq/m <sup>3</sup> )
18	10E+09 bis 10E+11	20	10E9 bis 10E11

Die Aktivitätskonzentration wird von /TÜV 14/ mit 10E+09 bis 10E+11 Bq/m<sup>3</sup> angegeben, die Aktivitätskonzentration für VDK eines WWER aus /SZA 00/ ist in Tab. 2.5. dargestellt und liegt mit 3,40E+08 bis 12,00E+09 Bq/m<sup>3</sup> um ein bis zwei Größenordnungen darunter.

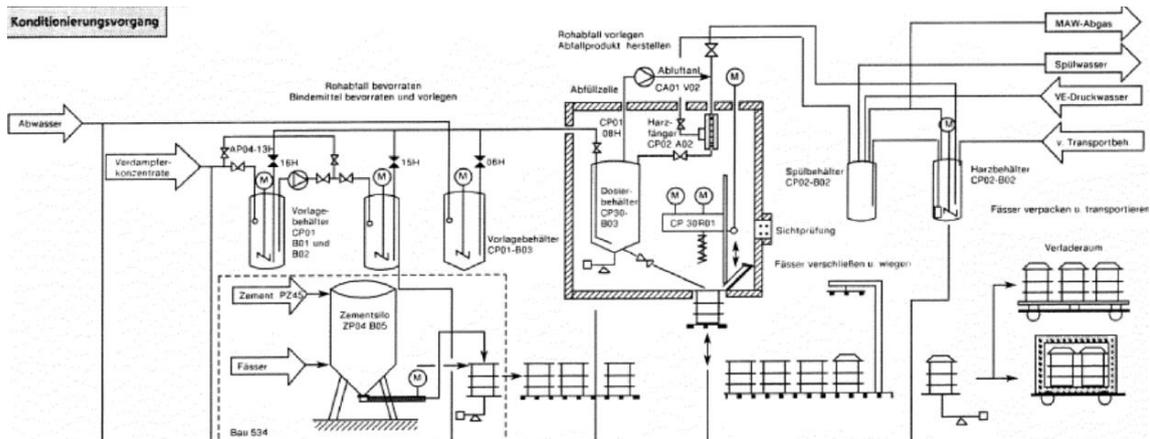
**Tab. 2.5** Aktivität der Verdampferkonzentrate in Bq/m<sup>3</sup> aus /SZA 00/

Es wurden die größten Werte aus /SZA 00/ für die Aktivitätskonzentration übernommen

Reaktor	WWER 440 MW	WWER 505 MW (aufgerüstet)
Co-60	1,10E+09	2,70E+07
Cs-134	2,00E+09	1,90E+07
Cs-137	8,40E+09	2,90E+08
Mn-54	5,00E+08	3,60E+06
Summe	12,00E+09	3,40E+08

## Konditionierung

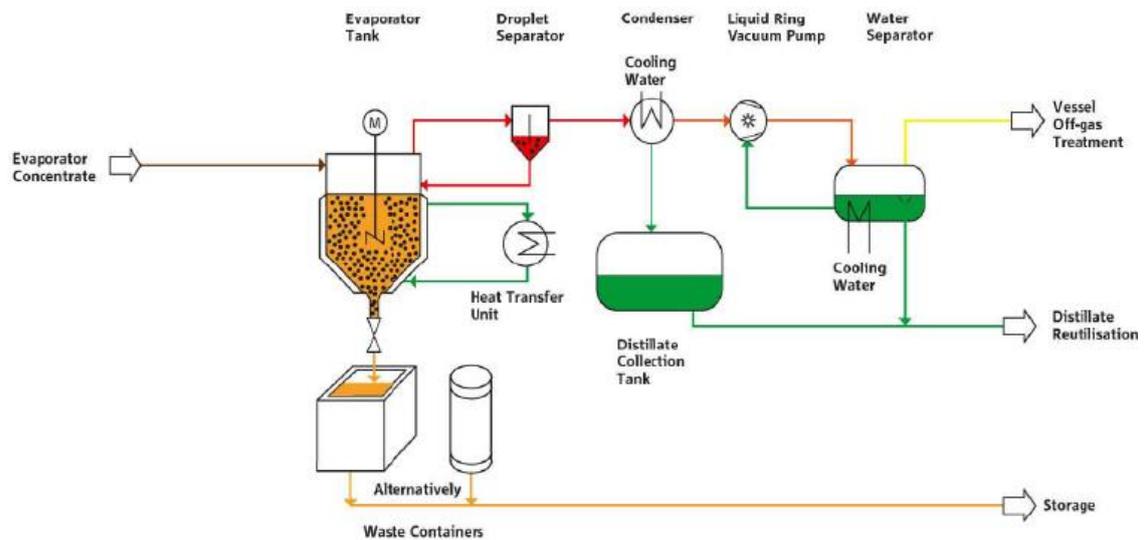
Bei der KTE wurden die radioaktiven wässrigen Rohabfälle nach Beprobung in der Eindampfungsanlage I bis auf einen Feststoffgehalt von ca. 30 % eingedampft und das Konzentrat mit Zement homogen in 200-l-Fässer immobilisiert. Danach wurden die Fässer in verlorene Betonabschirmungen (VBA) aus Normal-(NBA) bzw. Schwerbeton (SBA) eingestellt und mit Zement vergossen (siehe Abb. 2.13) /KTE 21a/. Zementierungen von VDK werden auch mit mobilen Anlagen wie der Mobile Waste-Konditionierungsanlage (MOWA) der Fa. Nukem durchgeführt.



**Abb. 2.13** Konditionierungsvorgang von Verdampferkonzentraten in der Zementierung II bei der KTE /HOG 21/

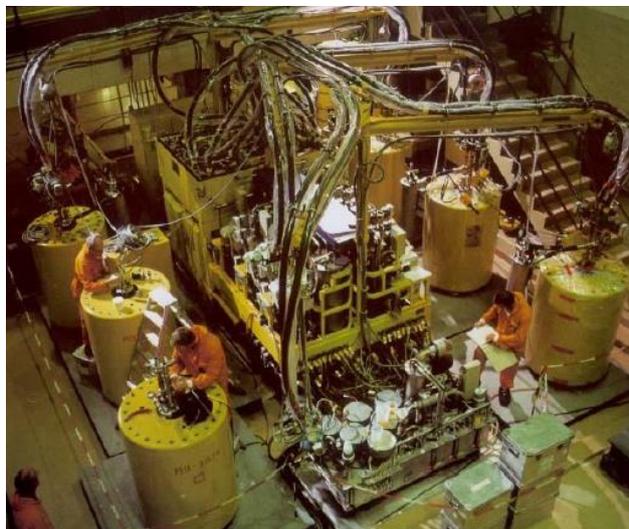
Bei den Kernkraftwerken Biblis, Gundremmingen und Mühlheim-Kärlich wurde die Konzentrat-Einengungsanlage ROBE verwendet. Die Salze der Konzentrate werden bei erhöhter Temperatur und Unterdruck ( $> 70^{\circ}\text{C}$ ,  $< 100\text{ mbar}$ ) im Eindampfbehälter in ihrer eigenen gesättigten Lösung suspendiert und als heiße Suspension in einen Abfallbehälter ausgetragen, wo sie bei Abkühlung erstarren /GRS 15/.

Die ROBE-Anlage zur Konditionierung von Verdampferkonzentraten kam in den Kernkraftwerken Gundremmingen und Biblis zum Einsatz. Die Verdampferkonzentrate werden chargenweise oder semikontinuierlich in einen unter Vakuum stehenden Verdampfungsbehälter überführt. Die Behälterwand wird mit einem geschlossenen Heißwasserkreislauf geheizt, und mit einem mechanischen Rührwerk wird das Konzentrat umgewälzt. Das erforderliche Vakuum wird mittels einer Flüssigkeitsring-Vakuumpumpe hergestellt. Nach Erreichen des gewünschten Konzentrationsgrades wird ein Ventil am Boden des Verdampfers zur Abfüllung in den entsprechenden Behälter geöffnet. Das Prozessschema ist in Abb. 2.14 dargestellt /NUK 07/.



**Abb. 2.14** Prozessschema der ROBE-Anlage aus /NUK 07/

Alternativ zum stationären System gibt es auch die Möglichkeit, die Konzentrate direkt im Behälter zu trocknen. Dafür wird der Rohabfall in abgeschirmte Behälter gepumpt und die Vakuumtrocknung gestartet. Freigewordenes Volumen wird mit neuem Konzentrat aufgefüllt und die Trocknung fortgesetzt (siehe Abb. 2.15). Die Trocknungszeit pro Behälter beträgt ca. eine Woche.

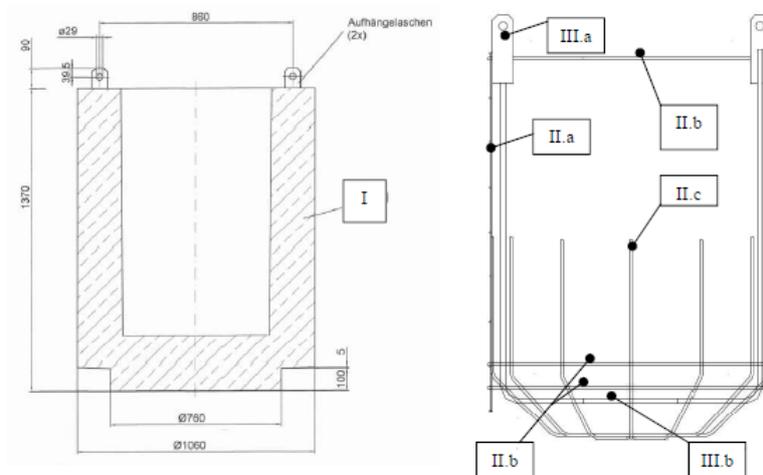


**Abb. 2.15** Anlage zur Trocknung von VDK /TÜV 14/

Für die Berechnung der ODL konditionierter VDK werden zementierte und getrocknete VDK in Verlorenen Betonabschirmungen berücksichtigt (siehe Kap. 3.3).

Die VBA ist ein Betonbehälter der als Bauart Konrad-Typ-I, Konrad-Typ-II und als Sonderbauart (z. B. mit größerem Durchmesser oder abweichender Behälterhöhe) herge-

stellt wurde. Sie wurde Anfang der 1970er Jahre durch das Kernforschungszentrum Karlsruhe (KfK, mittlerweile KIT) entwickelt, doch mit der Schließung der Betonsteinwerk Boschert GmbH & Co. KG im Jahr 2010 eingestellt. Durch die schnelle und kostengünstige Herstellung sowie eine hohen Abschirmwirkung und guten Störfalleigenschaften kam die VBA in den meisten deutschen kerntechnischen Anlagen zum Einsatz. Die VBA besteht aus einem Armierungskorb und einer Betonummantelung aus Normal- oder Schwerbeton (siehe Abb. 2.16 und Abb. 2.17) und bildet einen Außenbehälter für die Endlagerung fester oder verfestigter radioaktiver Abfallstoffe in 200-l-Fässern. Je nach Typ werden VBA mit oder ohne Deckel vergossen. Laschen zum Transport sind bei allen Typen von VBA zu finden /KTE 15/.



**Abb. 2.16** Schematische Darstellung der VBA Typ I, II und III /KTE 15/



**Abb. 2.17** Armierungskorb und vergossene VBA /KTE 15/

Bezüglich konditionierter VDK wird in diesem Bericht noch auf die folgenden Themenschwerpunkte eingegangen:

- Berechnung der ODL verschieden konditionierter und abgeschirmter VDK (siehe Kap. 3.3)
- Berechnung der ODL einer Lageranordnung von konditionierten VDK in VBA (siehe Kap. 3.3)
- Nachkonditionierung von VDK (siehe Kap. 4.1.1 und 4.1.2)

Die KTE, zu der Zeit WAK GmbH, hat das Bauartprüfverfahren für VBA als Bauart Konrad-Typ-I durchgeführt /KTE 15/<sup>3</sup>.

## 2.2.2 Behandlungsmethoden im internationalen Kontext

In diesem Kapitel werden internationale Forschungsergebnisse ausgewählter Behandlungsmethoden, wie der Fixierung von Pulver und Lösungsmitteln/Ölen in Geopolymeren, heißem isostatischem Verpressen, Verbrennen/Pyrolysieren, Plasmaschmelzen und elektrochemische Totaloxidation vorgestellt. Dies sind Methoden in der Erprobungsphase, von denen nur wenige bisher zur Anwendung in größeren Kampagnen mit radioaktiven Abfällen eingesetzt wurden sowie zum Teil Beispiele von externen Dienstleistern, die nur für eine kleine Gruppe spezieller radioaktiver Abfälle anwendbar sind.

### Fixierung pulverförmiger und flüssiger radioaktiver Abfälle

Die **Fixierung pulverförmiger Abfälle** mit Zement geht mit einer Volumenvergrößerung des ursprünglichen Abfalls einher. /SON 19/ zeigen, dass eine Volumenreduktion um den Faktor 4,3 möglich ist, wenn pulverförmige Abfälle zu Pellets verpresst werden. Im Test wird Bentonit mit einem Bindemittel zu Pellets verpresst und dann mit Epoxidharz vergossen. Bei der Vergleichsprobe wird Bentonit in Pulverform mit Epoxidharz vergossen. In Pulverform beträgt die Dichte  $0,87 \text{ g/cm}^3$ , nach dem Verpressen beträgt die Dichte  $2,00 \text{ g/cm}^3$ . Dies ergibt ein Volumenverhältnis 2,3. Im Vergleich wurden 228 g

---

<sup>3</sup> Aufgrund der großen Anzahl an vergossenen VBA bei der WAK GmbH und der Prüfung der betrieblichen Datenbasis wurde beschlossen das Bauartprüfverfahren für diese Behälterbauart von der WAK GmbH durchzuführen /KTE 15/.

Pellets bzw. 57 g Pulver für die Herstellung eines Epoxid-Zylinders von ca. 200 cm<sup>3</sup> verwendete.

Zur **Fixierung flüssiger Abfälle** wird standardmäßig Zement verwendet. Manche Abfälle eignen sich aufgrund ihrer chemischen oder physikalischen Eigenschaften nicht gut zum Zementieren, wie z. B. Ionenaustauscherharze, Abfälle mit hohen Salzkonzentrationen und einige flüssige Abfälle. Bei der Fixierung von Ionenaustauscherharzen mit Zement gibt es vor allem Probleme bei der Langzeitstabilität. Ionenaustauscherharze nehmen mehr Wasser auf als die Zementmatrix, und es kann beim Trocknen zur Trennung zu inhomogenen Phasen und Brüchen des Zementkörpers, und ggf. könnte ein Herauslösen der radioaktiven Elemente die Folge sein. Durch Alkali-Aggregat-Reaktionen, wie bspw. der Alkalikieselsäure-Reaktion kann die Betonstruktur u. a. aufgrund der Volumenzunahme der gebildeten Phase geschädigt werden.

In den letzten Jahren wurden viele Forschungsbeiträge zur Fixierung flüssiger radioaktiver Abfälle mit Geopolymeren<sup>4</sup>, auch geopolymere Silicatbindemittel, Alumino-Silikat-Mörtel und Alkali-Silikat-Mörtel genannt, veröffentlicht. Die Methode wurde bereits bei radioaktiven Abfällen slowakischer kerntechnischer Anlagen eingesetzt /PRA 19/. Es wird beschrieben, dass Geopolymere zur Fixierung von Schlämmen, Ionenaustauscherharzen und organischen Materialien verwendet werden können.

In /LIN 19/ wurde das anorganische Bindemittel SIAL<sup>®</sup>, ein Geopolymer, für Tests zur Fixierung von inaktiven Ionenaustauscherharzen eingesetzt, und es wurden Labortests bezüglich der mechanischen Festigkeit und der Beständigkeit gegenüber Wasser, Strahlung und Bakterien sowie dem Auslaageverhalten bestimmter Ionen (Cs, Sr und Co) durchgeführt. Es wurde eine Abfallbeladung von 27 Gew.- % erreicht, und die Anforderungen an die getesteten Größen wurden erreicht und zum Teil übertroffen.

In /GRE 21/ werden u. a. Ergebnisse zur Behandlung besonderer Abfallströme aus den Anlagen in Sellafield und Dounreay beschrieben. Hierbei werden Untersuchungen zur Fixierung mit Zement und mit SIAL<sup>®</sup> verglichen. Dabei wird die Abbindezeit von Abfällen ohne und mit gelöstem Zink für Zement und SIAL<sup>®</sup> verglichen. Es zeigt sich, dass sich die Abbindezeit von 7 auf 16 Stunden erhöht bei der Verwendung von Portland Zement,

---

<sup>4</sup> Bereits im Jahr 1975 wurden Geopolymere als Naturbeton benutzt. Zu dieser Zeit wurde der Begriff für die Reaktion von Metakaolinen in alkalischen Medien unter Bildung alumosilikatischer Polymere verwendet. Durch den Zusatz „Geo“ sollte die Nähe zu geologischen Materialien, also natürlichen Gesteinen und Mineralien, verdeutlicht werden.

wohingegen sich die Abbindezeit mit SIAL® nur von 6,5 auf 7 Stunden erhöht. Ein weiterer Abfallstrom, der getestet wurde, enthält einen hohen Anteil von gelöstem Magnesium. Dieser soll Schlämme simulieren, die einen höheren Anteil Magnesium enthalten, aufgrund der Korrosion von Magnox-Brennelementen. Mit SIAL® konnten Schlämme mit bis zu 30 Gew.- % Magnesiumhydroxid verfestigt werden. Bei der Verwendung von Portland-Zement konnten keine geeigneten festen Abfallprodukte hergestellt werden.

In /LAM 20/ wird davon berichtet, organische Flüssigkeiten wie Öle und Lösungsmittel in Geopolymer (GEOIL) zu fixieren. Gemäß eines Berichts der ANDRA<sup>5</sup>, einer Organisation, die in Frankreich für die Entsorgung und die Endlagerung der dort anfallenden radioaktiven Abfälle zuständig ist, machen organische radioaktive Flüssigkeiten 9,7 % des radioaktiven Abfalls in Frankreich aus, für den es kein Endlager gibt /AND 14/. Diese sind nicht zementierbar und können wegen Aktivitätsgrenzwerten und bzgl. des Halogen- und Schwefelgehalts nicht verbrannt werden. Für die Fixierung mit GEOIL wird die organische Flüssigkeit dispergiert und mit dem anorganischen Fixiermittel vermischt. Bei einem ersten Test zur Fixierung von radioaktiven Pumpenöl mit GEOIL konnte eine Beladerate von 15 Vol.- % erreicht werden. Die Kompressionstests verfestigter Öle liegen über den geforderten Anforderungen der ANDRA von 8 MPa. Eine Genehmigung zur Verwendung dieser Methode der ANDRA steht aus.

### **Synroc (synthetic rock) process – hot isostatic press**

An der Anlage zur Herstellung von Molybden-99 der Firma ANSTO in Lucas Heights bei Sydney ist der Bau einer Synroc-Anlage zur Behandlung der anfallenden flüssigen schwachradioaktiven Abfälle geplant. Bei der Synroc-Methode werden die Abfälle in einer Keramik eingeschlossen /THU 20/. Dafür wird der flüssige Abfall mit Additiven zu einer Suspension vermischt, diese Mischung getrocknet und als Pulver in eine Dose überführt und versiegelt. Dann wird die Dose in einen Ofen mit einer isostatischen Presse eingebracht (1200 °C, 150 MPa). An der Anlage sollen etwa 200 Dosen radioaktiver Abfall pro Jahr verarbeitet werden. Tests an Surrogaten zeigen, dass 40 % des Volumens im Vergleich zum Ausgangsvolumen eingespart werden kann /HOL 20/, /WNA 16/.

---

<sup>5</sup> Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs

## **Verbrennen/Pyrolysieren**

Die Firma Cyclife in Schweden bietet als externer Dienstleister für Abfallbehandlung verschiedene Behandlungsmethoden an. Sie betreibt eine Verbrennungs- und Pyrolyseanlage. Diese ist geeignet für Öle und andere flüssige Abfälle, für feste radioaktive Abfälle, Ionenaustauscherharze und in begrenzten Mengen für Gummi, PVC und Folien. Die Anlage ist für 600 t pro Jahr lizenziert. Es wird eine Volumenreduktion von 97 % und eine Gewichtsreduktion von 92 % erreicht /CYC 20/, /CYC 21/.

## **Plasmaschmelzanlage**

Im Mai 2018 wurde eine Plasma Melting Facility (PMF) am Kernkraftwerk bei Kozloduy in Bulgarien in Betrieb genommen. Darin können verschiedene Abfälle, die in 200-l-Fässern verpackt sind, verarbeitet werden. Als Verarbeitungsprodukt wird eine glasartige Schlacke erhalten. Für potenzielle Nachkonditionierungskampagnen wurde die Firma Belgoprocess beauftragt. Es wurden Tests mit nicht aktiven Probeabfallfässern durchgeführt. Für das Testfass, befüllt mit zementierten Konzentraten, wurde ein Volumenreduktionsfaktor (VRF) von 1,3 und für zementierte Ionenaustauscherharze ein VRF von 1,5 erreicht. Bei Fässern, die mit Bitumen und kompaktierten Abfällen befüllt waren, wurde ein VRF von 8 erreicht /DEC 20/.

## **Elektrochemische Totaloxidation**

Brennbare C-14-haltige Abfälle werden z. T. verbrannt. Das ist nur in begrenztem Maße möglich. Ein neuer Verfahrensansatz für die Konditionierung solcher Abfälle durch elektrochemische Totaloxidation wurde vom Fraunhofer-IKTS vorgestellt /FRA 19/. Hierbei wird die organische Substanz anodisch über mehrere Stufen zu Kohlenstoffdioxid oxidiert, und durch anschließende Leitung des Anodengasstroms durch ein festes Absorptionsmittel wie z. B. Drägersorb® kann das C-14-haltige Gas (CO<sub>2</sub>) in eine feste Form, nämlich Calciumcarbonat (CaCO<sub>3</sub>), überführt werden. Hierbei handelt es sich um Versuche im Labormaßstab.

### **2.2.3 Anforderungen an die Konditionierung von Konrad-Containern**

Einige grundlegenden Informationen zu Behältertypen, die für die Endlagerung radioaktiver Abfälle im Endlager Konrad verwendet werden können, sind in Kap. 2.1.1 zusammengefasst. Eine ausführliche Auflistung ist in den EBK gegeben /BFS 15/.

Die Firmen GNS und Eisenwerk Bassum m. b. H. (EWB) stellen Abfallbehälter her und Beladeequipment zur Verfügung. Mittels Bauartprüfung wird sichergestellt, dass die Behälter die Anforderungen der EBK erfüllen. Im Prüfzeugnis sind Hinweise und Anforderungen gegeben, die bei der Beladung der Behälter zu berücksichtigen sind.

Vor Beladung eines Behälters ist die Erstellung eines Beladeplans nötig, dabei müssen verschiedene Aspekte berücksichtigt werden, wie z. B. Beladehöhe, Lastverteilung, Schwerpunktlage gemäß EBK, max. Bruttogewicht-Verfüllung, Positionierhilfen und Ladungssicherungsmaßnahmen. In Abb. 2.18 sind Beispiele für die Beladung von Konrad-Containern (KC) gezeigt (links im Bild die direkte Beladung mit Positionierhilfe, mittig und rechts KC Typ V (ABK I, nsf) beladen mit Abfallprodukten). Die letzten beiden Beispiele werden ohne Resthohlraumverfüllung verpackt. Zum Füllen von Leerpositionen werden hier Polyurethan (PU)-Blöcke genutzt.



**Abb. 2.18** Verwendung von Positionierhilfen (links), Beladung mit 26 x 200-l-Fässern (mittig), Beladung mit Fässern, Presslingen und PU-Blöcken (rechts) ohne Resthohlraumverfüllung (ABK I, nsf) /EWB 20/

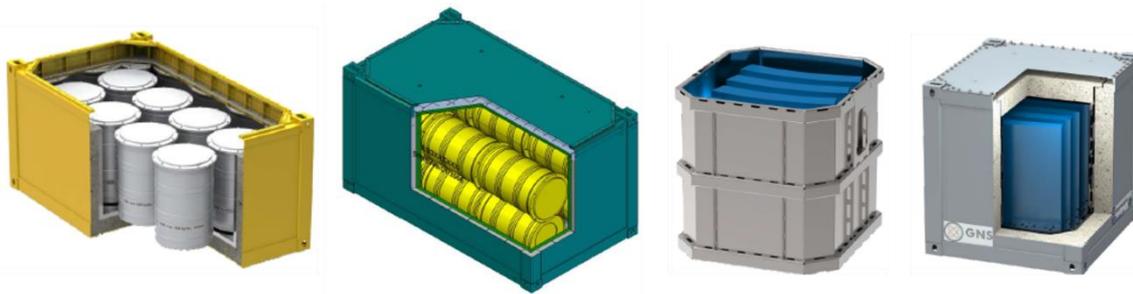
In der ABK I nsf kann zur Fixierung des Inhalts Beton oder als Alternative loser Füllstoff wie Bauschutt verwendet werden. An die Eigenschaften des Betons sind in der ABK I nsf keine Anforderungen gestellt. Anders ist dies in der ABK I und II sf. Bei Behältern der ABK I sf und ABK II sf muss der Inhalt durch Ausbetonierung formstabil fixiert sein. Direkte Anforderungen an den Beton ergeben sich aus:

- Verkehrsrecht → Ladungssicherung
- Endlagerungsbedingungen → Einhaltung der Schwerpunktlage, Störfallfeste Fixierung, Resthohlraumverfüllung (Gebirgsdruck)
- Prüfzeugnis der Endlagerbehälter → Festigkeitsklasse des Betons

und indirekte Anforderungen aus:

- Belade- und Nachweiskonzept → Druckfreiheit, auch für Innengebinde bei z. B. Fassbeladungen, Wärmeleitwiderstand und -kapazität

In Abb. 2.19 sind Beispiele für die Beladung von Konrad-Containern in der ABK I sf und ABK II sf gezeigt. Für die Restholraumverfüllung der Behälter muss Beton verwendet werden, der die Anforderungen der Prüfzeugnisse erfüllt.



**Abb. 2.19** Beladung in der ABK I sf und ABK II sf (verschiedene Beispiele in /EWB 20/)

Bis 2011/2012 hat die Fa. Maxit Trockenbetone („maxit 2010“ und „maxit 2015 GNS“) für den Entsorgungsbereich hergestellt. Im Anschluss musste ein neuer Hersteller gefunden werden und die Betone entsprechend neu qualifiziert werden. Die Entwicklung neuer Betone hat EWB in Zusammenarbeit mit Siemens, GNS und KTE durchgeführt und einen Verfüllbeton (K2010) und einen Leichtverfüllbeton (K2015) hergestellt und qualifizieren lassen (siehe Tab. 2.6) /EWB 18/.

**Tab. 2.6** Eigenschaften der Betonsorten

	Konrad 2010 (K2010)	Konrad 2015 (K2015)
Dichte (kg/dm <sup>3</sup> )	ca. 2,2	ca. 1,5
Festigkeitsklasse	≥ C20/25 bzw. ≥ B25	≥ LC20/22 bzw. ≥ C20/25

Die o. g. Betone wurden auch bei Betonierkampagnen der GNS verwendet. Als Dienstleister verfügt die GNS über die Betonieranlagen (mobil und stationär) und hat in einer Arbeitsanweisung (Verfüllung von Containern mit Beton zur Herstellung endlagerfähiger Abfallgebinde) die nötigen Arbeitsprozesse entwickelt und eingeführt /GNS 20/.

Im Folgenden sind drei Betonierkampagnen die von der GNS durchgeführt wurden dargestellt. Dies sind zwei mobile Kampagnen in Duisburg und Stade sowie eine stationäre

Kampagne in Jülich. In Abb. 2.20 und Abb. 2.21 sind die Arbeiten zur Betonierung von neun Stahlblechcontainern (KC III, ABK I sf) mit je 12x200-I-Fässer in Duisburg gezeigt. Die Durchführung erfolgte von November 2017 bis Januar 2018. Dies umfasst u. a. die Vorbereitung zur Nachweisführung der Druckfreiheit der Fässer, die Sicherstellung eines planeren Betonierplatzes und die Bereitstellung von Verguss- und Abschlussbeton sowie die Dokumentation der Konditionierungsschritte /GNS 20/.



**Abb. 2.20** Einmessen der Aufstellflächen (links), Keilschuhe als einstellbare Aufstellflächen /GNS 20/



**Abb. 2.21** Niederhaltung der Fässer (links), Vergussbeton mit Abziehlehre (mittig) und Einbringen Abschlussbeton (rechts) /GNS 20/

Bei einer stationären Betonierkampagne von Oktober 2019 wurden in der AVEC (Anlage zur Verfüllung von Endlager-Containern) in Jülich drei Stahlblechcontainer (KC III, ABK I sf) mit je 5x400-I-Fässern konditioniert (siehe Abb. 2.22).



**Abb. 2.22** Betonierung KC III mit 5 x 400-I-Fässer /GNS 20/

Am Kernkraftwerk Stade wurden Ende des Jahres 2019 15 Stahlblechcontainer mit unterschiedlichen Fässern störfallfest konditioniert. Es wurden KC IV mit zusätzlicher Abschirmung und Zwischendeckel verwendet (siehe Abb. 2.23).



**Abb. 2.23** Schematischer Aufbau der Container (links) und Bilder der Arbeiten (rechts) /GNS 20/

Die GNS zieht nach den ersten Betonierkampagnen folgendes Fazit: Der Durchsatz wird von Vor- und Nachbereitung bestimmt und konnte von einem KC auf drei KC pro Tag optimiert werden. Die Qualifikation „fachgerecht verpackt“ ist nach der Betonierfreigabe durch die Bundesgesellschaft für Endlagerung (BGE) noch offen. Für die geplante Einlagerung von 10.000 m<sup>3</sup> pro Tag ist für den Gesamtprozess eine Betonierung im industriellen Maßstab nötig.

Gemäß den EBK müssen Abfallgebinde zur Abgabe drucklos angeliefert werden. Dies gilt auch für Innenbehälter. Als Nachweisparameter wird die Gasbildungsrate herangezogen. Dabei sind in den Leitlinien der Entsorgungskommission (ESK) für die Zwischenlagerung radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung den verschiedenen Abfallproduktgruppen entsprechende max. Gasbildungsraten zugordnet. Falls diese überschritten werden, muss nachkonditioniert werden /ESK 13/.

Die Jülicher Entsorgungsgesellschaft für Nuklearanlagen (JEN) mbH hat ein vereinfachtes Verfahren zur Gasanalytik entwickelt. Mit mobilem Gaschromatographen können die Messungen direkt am Abfallbehälter durchgeführt werden, und jedwede Transporte entfallen /JEN 19/. Der Werkstattwagen mit mobilem Gaschromatograph (GC) wird direkt neben das Gebinde (KC bzw. Fass) herangefahren. Der Zugang zum Behälterinneren wird über die Deckeldichtung oder den Sintermetallfilter hergestellt (Abb. 2.24 und Abb. 2.25), der Gebindeinnendruck bestimmt und auf die Gase Wasserstoff, Stickstoff, Kohlenstoffmonoxid, Kohlenstoffdioxid, Methan, Ethen und Ethan analysiert.



**Abb. 2.24** Schaltbrett für die Verbindung (links), Knochenmarkskanüle zum Durchstechen der Deckeldichtung (rechts) /JEN 19/



**Abb. 2.25** Prototypen zur Gasentnahme über den Sintermetallfilter: Probennahme mittig (links), Probennahme über großen Druckentlastungsfilter (mittig) und Probennahme unter Winkelring /JEN 19/

Nach dem ersten Messdurchgang wird das Gebinde mit Zugang gasdicht verschlossen und nach einer Verweildauer von ein bis zwei Wochen der zweite Messdurchgang gestartet. Hierbei wird die jeweilige Gaskonzentration, der Gebindeinnendruck und das Leervolumen bestimmt und auf Dichtheit geprüft.

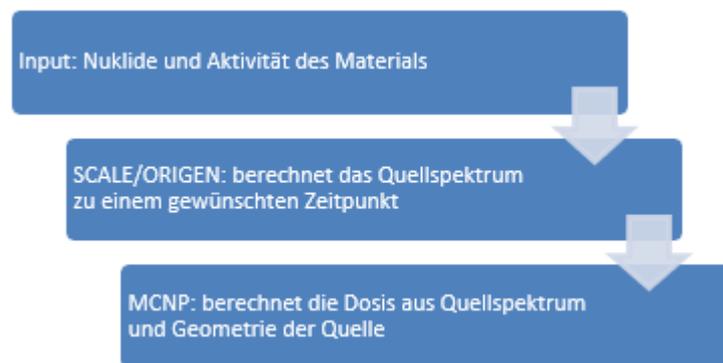
Das Leervolumen muss genau bestimmt werden, da das exakte Volumen der Fässer für die Bestimmungen der o. g. Parameter benötigt wird. Im Beispiel der GNS wurde das Innenvolumen eines 200-l-Fasses auf 210,6 l bestimmt. Die Methode wurde an 200-l-Fässern, befüllt mit verschiedenen inaktiven Abfällen, wie verpressten Mischabfällen, Aschepresslingen und losem Granulat, getestet.

### 3 Inventar- und Ortsdosisleistungsanalysen

Im folgenden Kapitel werden die im Kap. 2.2.1 gewonnenen und aufgearbeiteten Erkenntnisse zur Konditionierung von Ionenaustauscherharzen und Verdampferkonzentrationen genutzt und darauf aufbauend Inventar- und Ortsdosisleistungsanalysen durchgeführt. Ziel ist es, die Auswirkungen verschiedener Volumenreduktionsfaktoren und verschiedener Abschirmungs- und Behälterkonfigurationen auf die ODL zu bestimmen.

#### 3.1 Rechenmethode

Zur Bestimmung des Quellterms und der ODL für die Ionenaustauscherharze in MOSAIK®-Behälter werden die Programme SCALE/ORIGEN und MCNP genutzt. In Abb. 3.1 sind die Programmabfolge und die jeweiligen Rechenbeiträge skizziert.



**Abb. 3.1** Programmabfolge zur Bestimmung der ODL ausgehend von der Materialzusammensetzung, Geometrie und Quelltermberechnung bis zum Teilchen-transport mit MCNP

Die einzelnen Arbeitsschritte sind nachfolgend beschrieben:

- Definition des Inputs
- SCALE/ORIGEN: ORIGEN ist ein eigenständiges Modul im Rahmen von SCALE zur Berechnung von Abbrand, Aktivierung und zur Bestimmung des Quellterms. Weiterführende Informationen zum Code finden sich in der Dokumentation des Entwicklers /OAK 11/. Ausgehend von der Aktivität der Nuklide zum Zeitpunkt  $t_0$  wird die Simulation des Aufbaus und des Zerfalls der Nuklide bis zum gewünschten Zeitpunkt  $t_1$  durchgeführt. Die Quelltermsspektren müssen für die Weitergabe an MCNP manuell normalisiert werden.

- MCNP 6.2 ist ein Monte-Carlo-(Multi)Teilchentransportprogramm, das den Transport von Neutronen, Photonen (Gammastrahlung), Elektronen oder den gekoppelten Transport von Neutronen und Photonen simulieren kann /WER 17/. Die Teilchenrechnungen sind allerdings separat, je nach Korpuskelart, getrennt durchzuführen. Die dreidimensionale, realistische Darstellung ermöglicht es, alle Details zu berücksichtigen. Die verwendeten Materialien werden in ihrer chemisch-physikalischen Zusammensetzung nachgebildet. Die nuklearen Reaktionen werden durch Wirkungsquerschnittsbibliotheken für kontinuierliche Energien, basierend auf den evaluierten Datenstandard nach ENDF/B (Evaluated Nuclear Data File) oder JEF (Joint Evaluated Fission and Fusion Nuclear Data Library) verwendet.

Da das Monte-Carlo-Verfahren eine statistische Simulation ist, müssen die Ergebnisse, je nach Detektorart, eine bestimmte Güte einhalten, um als vertrauensvoll gelten zu können. Die Umwandlung von Teilchenflüssen in ODL erfolgt durch eine Multiplikation mit Dosiskonversionsfaktoren nach ICRP116 /ICR 10/.

Beim Monte-Carlo-Verfahren wird eine Simulation des Teilchentransportes individueller Teilchen vorgenommen, wobei die Auswahl der Teilcheneigenschaften einem statistischen Prozess unterliegt. Ob und wo im System das Teilchen eine Wechselwirkung erfährt und von welcher Art diese ist, wird durch einen Zufallsgenerator bestimmt. Die physikalischen Eigenschaften des Systems ergeben sich als Wahrscheinlichkeitsverteilungen, die das Teilchenschicksal beeinflussen. Bei der Berechnung von vielen Teilchenschicksalen erhält man so eine Zustandsbeschreibung des Systems an ausgewählten Orten mit einer statistischen Unschärfe, die von der Teilchenzahl abhängt.

Zur Berechnung der Gamma-Aktivität müssen bezüglich des Beitrags von Cs-137 das Mutternuklid Cs-137 ( $t_{1/2} = 30,17$  a) und das Tochternuklid Ba-137m ( $t_{1/2} = 2,55$  min) berücksichtigt werden /PFE 98/. Cs-137 ist ein reiner Beta-Strahler, dessen Betastrahlung zum großen Teil von der Abfallmatrix selbst absorbiert wird. Die in der Messtechnik und Dosimetrie für die Anwesenheit von Cs-137 charakteristische Gammastrahlung von 662 keV ist dem Tochternuklid Ba-137m zuzuordnen, das sich aufgrund seiner kurzen Halbwertszeit mit dem Mutternuklid im Gleichgewicht befindet. Abweichungen im Aktivitätsverhältnis zwischen Mutter- und Tochternuklid Cs-137/Ba-137m bestehen für ca. 30 Minuten, wenn anfangs Cs-137 ohne das Tochternuklid Ba-137m vorliegt. Dieser Zeitraum ist für die hier durchgeführten Analysen vernachlässigbar.

Die Ermittlung der ODL erfolgt mittels MCNP-Simulationen an den Innen- und Außenflächen des Behältermantels (als mittlere Oberflächendosisleistung) sowie an definierten Punkten im Abstand von 0, 0,5, 1, 2, 5, 10, 20 und 30 Metern von der Behälteroberfläche. Die ermittelte Gamma-Flussdichte wurde mit „Flux-to-dose“-Konversionsfaktoren (Anterio-posterio) nach ICRP 116 in ODL umgewandelt. Die Bremsstrahlung trägt weniger als 1 % zur Gesamtdosisleistung bei und wurde aufgrund der etwa 10-fach erhöhten Rechenzeit in den nachfolgenden Berechnungen vernachlässigt. Teilchen mit Energien oberhalb von 20 MeV wurden in MCNP mit vereinfachter Physik verfolgt, und die Thompson-Streuung wurde vernachlässigt (Details siehe /LAN 17/).

### 3.2 Ionenaustauscherharze im MOSAIK®-Behälter

#### 3.2.1 Ausgangsdaten

Im Folgenden werden die Ausgangsdaten für die Berechnungen der ODL von MOSAIK®-Behältern, die mit verschiedenen konditionierten Ionenaustauscherharzen beladen sind, dargestellt. Für die Erstellung des Quellterms werden die Zusammensetzungen der Ionenaustauscherharze und die entsprechenden Aktivitätskonzentrationen der relevanten Nuklide benötigt. In Veröffentlichungen der IAEA werden Gesamtaktivitäten von bis zu 18,5 TBq/m<sup>3</sup> (500 Ci/m<sup>3</sup>) für Ionenaustauscherharze aus deutschen DWR mit einer Nennleistung von 1300 MWe angegeben /IAE 81/.

**Tab. 3.1** Aktivitätskonzentrationen für Ionenaustauscherharze /IAE 85/

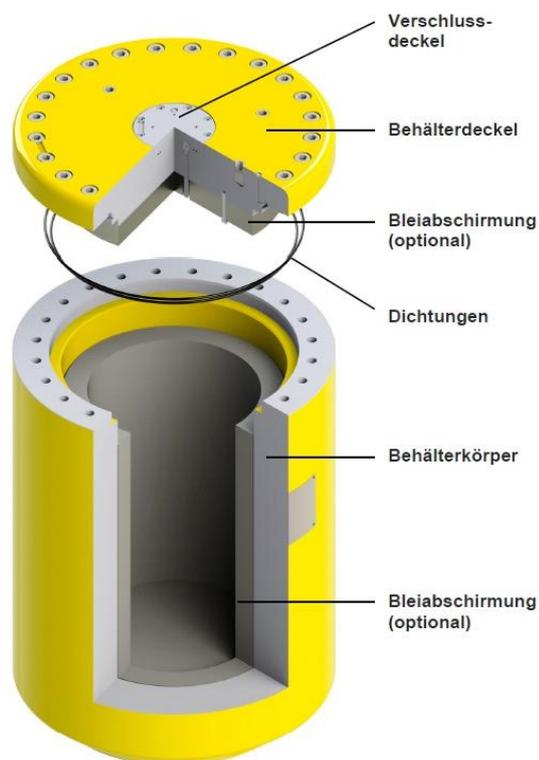
Reaktor	DWR	SWR
Co-60 (Bq/m <sup>3</sup> )	3,7E+11	3,7E+11
Cs-137 (Bq/m <sup>3</sup> )	1,9E+12	7,4E+11

Die stoffliche Zusammensetzung /PNN 11/ und die Funktionsweise ist in Kap. 2.2.1.1 beschrieben. Für die Berechnungen werden die drei Konditionierungszustände entwässert, getrocknet und kompaktiert betrachtet (siehe Tab. 3.2, weitere Details siehe Kap. 2.2.1.1).

**Tab. 3.2** Berücksichtigte Szenarien für konditionierte Ionenaustauscherharze

Eigenschaft	Entwässert	Getrocknet	Kompaktiert
Wassergehalt	53 %	4 %	1 %
Dichte [kg/m <sup>3</sup> ]	0,71 (Schüttung)	0,81 (Schüttung)	1,12 (Monolithisch)
Aktivität	$A_0$	$2,5 \cdot A_0$	$3 \cdot A_0$

Der MOSAIK<sup>®</sup>-Behälter kann bei Bedarf auf der Innenseite zusätzlich mit bis zu 12 cm mächtigen Blei-Linern versehen werden. Zur Durchführung der Inventar- und Dosisleistungsanalysen wurde ein generisches Modell eines MOSAIK<sup>®</sup>-Behälters (Typ M II-15 EI) basierend auf den Daten aus Tab. 3.3 erstellt.



**Abb. 3.2** Aufbau eines MOSAIK<sup>®</sup>-Behälters /GNS 19/

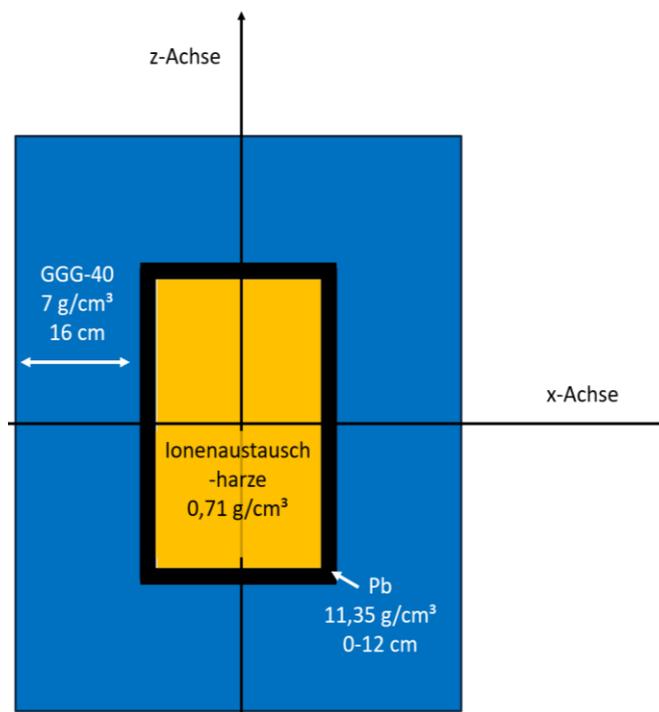
**Tab. 3.3** Abmessungen für einen MOSAIK<sup>®</sup>-Behälter vom Typ M II-15 EI /BFS 15, /GNS 19/

Größen	Maße
Innendurchmesser	740 mm
Außendurchmesser	1060 mm

Größen	Maße
Innenhöhe	1140 mm
Außenhöhe	1500 mm
Bleieinsatz	0-120 mm
Wanddicke	160 mm
Nutzvolumen	165 - 490 cm <sup>3</sup>

### 3.2.2 Ergebnisse

Auf Basis der Daten (siehe Tab. 3.3) wurde ein geometrisches Modell (MCNP 6.2) /WER 18/ erstellt (siehe Abb. 3.3): In blau ist der Behältermantel aus Grauguss dargestellt, der optionale Blei-Liner in schwarz und die Abfallmatrix ist in Gelb dargestellt. Die Berechnungen wurden ohne Blei-Liner durchgeführt. Die Dichte für die Harze wurde für die drei verschiedenen Verarbeitungsszenarien angepasst und ist in Abb. 3.3 beispielhaft für den Fall der entwässerten Harze gegeben.



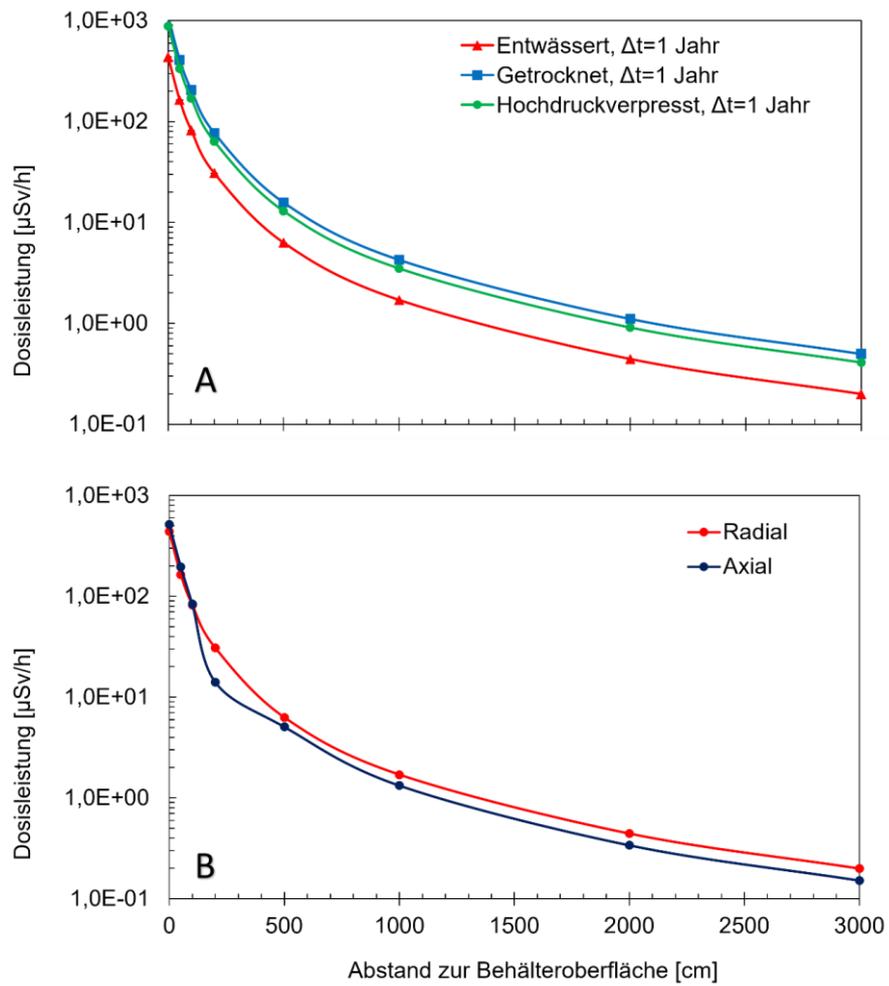
**Abb. 3.3** Schematische Darstellung des Behältermodells (MCNP 6.2)

Für die drei Szenarien (siehe Tab. 3.2) wurde unter Annahme einer homogenen Füllung des MOSAIK<sup>®</sup>-Behälters die ODL von der Oberfläche bis 30 Meter Entfernung in axialer und radialer Richtung bestimmt. Dafür wurden in bestimmten Abständen auf mittlerer

Höhe des Behälters Punkt-Tallies verwendet. Als Abklingzeiten wurden ein, zehn und 50 Jahre gewählt. Die Ergebnisse sind in Tab. 3.4 gelistet und in Abb. 3.4 und Abb. 3.5 dargestellt.

Unabhängig von der Konditionierung ist die ODL in radialer Richtung bis ca. 1 m Entfernung geringer als die in axialer Richtung. Bei größerer Entfernung überwiegt die ODL in radialer Richtung (siehe Abb. 3.4 B). Die Abweichung der ODL für die zwei Richtungen (axial und radial) beträgt direkt an der Oberfläche ca. 20 %, in 1 m Entfernung ca. 0 % und bei 30 m ca. 25 %.

Die ODL der drei Konditionierungsszenarien im direkten Vergleich (siehe Abb. 3.4 A) und die ODL für die verschiedenen Abklingzeiten der einzelnen Konditionierungsszenarien verlaufen mit der Entfernung zum Behälter subparallel (siehe Abb. 3.5 A, B und C). Im Vergleich der Konditionierungsszenarien untereinander weisen die getrockneten Ionenaustauscherharze die höchste ODL auf. Die ODL der entwässerten Harze beträgt 54 bis 40 % (je nach Abklingzeit) der ODL der getrockneten Harze, wohingegen die ODL kompakter Harze bei 92 bis 82 % beträgt. Nach zehn Jahren Abklinglagerung beträgt die ODL (abhängig von der Konditionierung) ca. 60 bis 80 % und nach 50 Jahren ca. 22 bis 24 % im Vergleich zur Dosisleistung der jeweiligen Konditionierung nach einem Jahr.

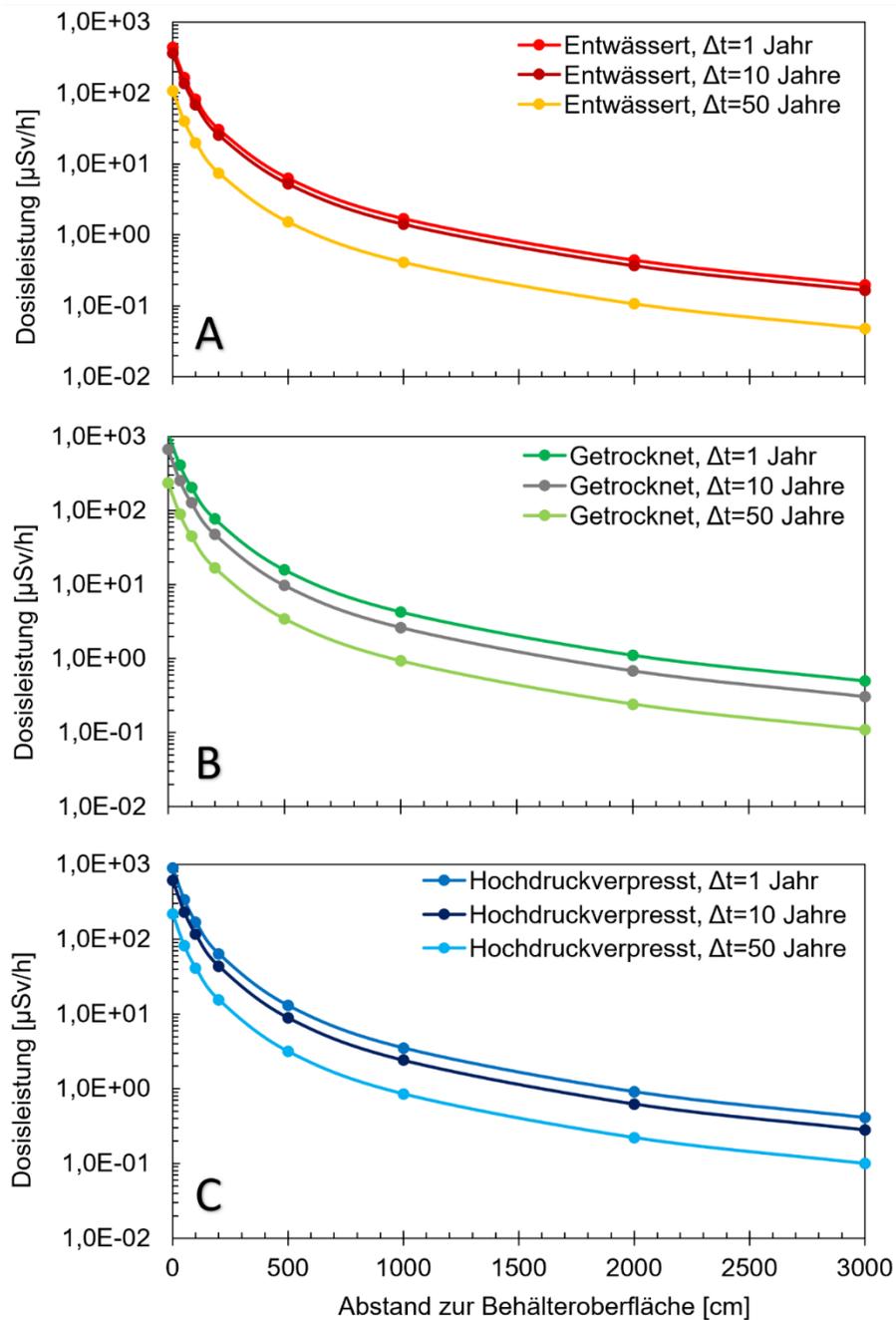


**Abb. 3.4** (A) ODL der verschiedenen konditionierten Ionenaustauscherharze nach einem Jahr Abklinglagerung in radialer Richtung zur Behälteroberfläche, (B) Vergleich der ODL in radialer und axialer Richtung

**Tab. 3.4** ODL in radialer und axialer Richtung eines MOSAIK®-Behälters beladen mit entwässerten, getrockneten und kompaktierten Ionenaustauscherharzen für verschiedene Abklingzeiten und Abstände (Werte in  $\mu\text{Sv/h}$ )

<sup>1)</sup> Mittelwert der Mantel- bzw. Deckeloberfläche

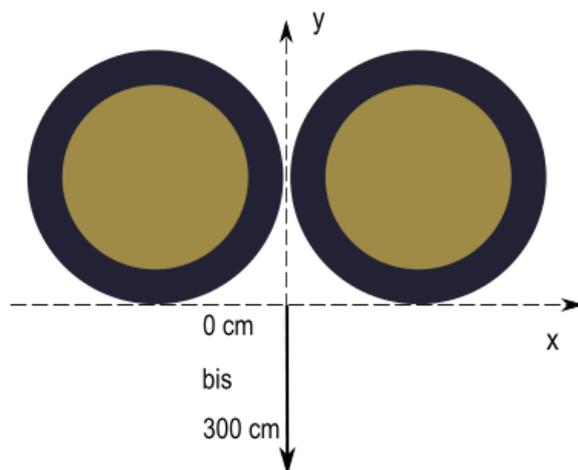
<b>radial</b>									
<b>Abstand [cm]</b>	<b>Mantelfläche<sup>1)</sup></b>	<b>0</b>	<b>50</b>	<b>100</b>	<b>200</b>	<b>500</b>	<b>1000</b>	<b>2000</b>	<b>3000</b>
entwässert, $\Delta t=1$ a	3,22E+02	4,39E+02	1,64E+02	8,21E+01	3,07E+01	6,29E+00	1,70E+00	4,42E-01	1,99E-01
entwässert, $\Delta t=10$ a	2,67E+02	3,65E+02	1,36E+02	6,83E+01	2,56E+01	5,23E+00	1,41E+00	3,67E-01	1,65E-01
entwässert, $\Delta t=50$ a	7,81E+01	1,06E+02	3,98E+01	1,99E+01	7,46E+00	1,53E+00	4,13E-01	1,07E-01	4,82E-02
getrocknet, $\Delta t=1$ a	8,04E+02	1,10E+03	4,10E+02	2,05E+02	7,68E+01	1,57E+01	4,25E+00	1,10E+00	4,97E-01
getrocknet, $\Delta t=10$ a	4,96E+02	6,63E+02	2,53E+02	1,27E+02	4,75E+01	9,69E+00	2,62E+00	6,82E-01	3,07E-01
getrocknet, $\Delta t=50$ a	1,76E+02	2,35E+02	8,95E+01	4,49E+01	1,68E+01	3,43E+00	9,29E-01	2,42E-01	1,09E-01
kompaktiert, $\Delta t=1$ a	6,62E+02	8,91E+02	3,38E+02	1,70E+02	6,35E+01	1,29E+01	3,50E+00	9,10E-01	4,09E-01
kompaktiert, $\Delta t=10$ a	4,54E+02	6,11E+02	2,32E+02	1,16E+02	4,36E+01	8,88E+00	2,40E+00	6,24E-01	2,81E-01
kompaktiert, $\Delta t=50$ a	1,61E+02	2,16E+02	8,20E+01	4,12E+01	1,54E+01	3,14E+00	8,50E-01	2,21E-01	9,94E-02
<b>axial</b>									
<b>Abstand [cm]</b>	<b>Deckelfläche<sup>1)</sup></b>	<b>0</b>	<b>50</b>	<b>100</b>	<b>200</b>	<b>500</b>	<b>1000</b>	<b>2000</b>	<b>3000</b>
entwässert, $\Delta t=1$ a	2,28E+02	5,17E+02	1,97E+02	8,37E+01	1,41E+01	5,07E+00	1,33E+00	3,39E-01	1,52E-01
entwässert, $\Delta t=10$ a	1,90E+02	4,30E+02	1,64E+02	6,96E+01	1,17E+01	4,22E+00	1,10E+00	2,82E-01	1,26E-01
entwässert, $\Delta t=50$ a	5,54E+01	1,26E+02	4,78E+01	2,03E+01	3,42E+00	1,23E+00	3,22E-01	8,23E-02	3,68E-02
getrocknet, $\Delta t=1$ a	5,71E+02	1,29E+03	4,92E+02	2,09E+02	3,52E+01	1,27E+01	3,32E+00	8,47E-01	3,79E-01
getrocknet, $\Delta t=10$ a	3,51E+02	7,88E+02	3,06E+02	1,30E+02	2,16E+01	7,78E+00	2,03E+00	5,19E-01	2,32E-01
getrocknet, $\Delta t=50$ a	1,24E+02	2,79E+02	1,08E+02	4,58E+01	7,66E+00	2,75E+00	7,19E-01	1,84E-01	8,22E-02
kompaktiert, $\Delta t=1$ a	4,74E+02	1,05E+03	4,14E+02	1,75E+02	2,89E+01	1,04E+01	2,70E+00	6,87E-01	3,07E-01
kompaktiert, $\Delta t=10$ a	3,25E+02	7,21E+02	2,84E+02	1,20E+02	1,98E+01	7,11E+00	1,85E+00	4,72E-01	2,11E-01
kompaktiert, $\Delta t=50$ a	1,15E+02	2,55E+02	1,01E+02	4,24E+01	7,02E+00	2,52E+00	6,55E-01	1,67E-01	7,46E-02
<b>2x1x1-Anordnung</b>									
<b>Abstand [cm]</b>	<b>Mantelfläche<sup>1)</sup></b>	<b>0</b>	<b>50</b>	<b>100</b>	<b>200</b>	<b>500</b>	<b>1000</b>	<b>2000</b>	<b>3000</b>
entwässert, $\Delta t=1$ a	4,10E+02	5,29E+02	2,71E+02	1,49E+02	5,93E+01	1,26E+01	3,42E+00	8,91E-01	4,01E-01



**Abb. 3.5** ODL für einen MOSAIK<sup>®</sup>-Behälter beladen mit entwässerten (A), getrockneten (B) und hochdruckverpressten (c) Ionenaustauscherharzen für verschiedene Abklingzeiten und Abstände zur Behälteroberfläche in radialer Richtung

### 3.2.3 2x1x1-Anordnung von MOSAIK®-Behältern

Bei den vorangegangenen Untersuchungen wurde die ODL von einem mit Ionenaustauscherharzen befüllten MOSAIK®-Behälter bestimmt. Nachfolgend wird eine 2x1x1-Anordnung von MOSAIK®-Behältern betrachtet, um den Einfluss auf die ODL zu untersuchen. Dabei wird das Szenario, dass zwei MOSAIK®-Behälter mit entwässerten Ionenaustauscherharzen befüllt sind, und in einem Abstand von 1 cm nebeneinanderstehen, betrachtet (siehe Abb. 3.6). Als Referenz dient der einzelne MOSAIK®-Behälter befüllt mit entwässerten Ionenaustauscherharzen (siehe Tab. 3.4).



**Abb. 3.6** Schematische Darstellung der Behälter- und Messanordnung mit Blickrichtung entlang der z-Achse

Für die Bestimmung der ODL werden im Abstand von 0 cm bis 300 cm auf halber Höhe der Behälter Punkt-Tallies gesetzt. Hierbei beginnen 0 cm auf der Tangente mittig zwischen den Behältern, da hier die höchste ODL erwartet wird. Die Ergebnisse sind in Tab. 3.4 gelistet. Verglichen mit einem Behälter ist die gemittelte Oberflächendosisleistung am äußeren Mantel um einen Faktor von rund 1,27 erhöht. Die ODL nähert sich mit zunehmender Entfernung von der Behälteranordnung dem Faktor 2 an. Im Abstand von 50 cm beträgt der Faktor der ODL der Lageranordnung im Vergleich zum Einzelbehälter 1,65 und in 2 m 1,93.

### 3.2.4 Bewertung

Die ODL für die unterschiedlich konditionierten Ionenaustauscherharze in MOSAIK®-Behältern zeigt den Trend, dass die ODL der entwässerten Harze geringer ist als die ODL der kompaktierten Harze, welche wiederum geringer ist als die ODL der getrockneten

Harze. Der Unterschied zwischen den kompaktierten und getrockneten Harzen ist jedoch gering.

Die kompaktierten Harze haben im Vergleich zu den getrockneten Harzen eine höhere Ausgangsaktivität (ca. 20 %) und höhere Dichte (ca. 38 %). Die höhere Dichte bedingt eine effizientere Selbstabschirmung im Fall der kompaktierten Harze. Die Trends – hohe Anfangsaktivität und hohe Dichte – sind gegenläufig, deshalb ist die ODL der kompaktierten Harze geringer, trotz höherer Anfangsaktivität. Bei einer ähnlichen Dichte – entwässerte und getrocknete Harze – aber einer höheren Anfangsaktivität (Faktor 2,5) spiegelt sich dies auch bei den Werten der ODL, die auch etwa um den Faktor 2,2 bis 2,5 (je nach Abklingzeit) höher ist.

In Tab. 3.5 sind die relevanten Ergebnisse aus Kap. 3.2.2 den Grenzwerten aus den EBK – 10.000  $\mu\text{Sv/h}$  für die maximale lokale, 2.000  $\mu\text{Sv/h}$  für die gemittelte Oberflächen-Dosisleistung und maximal 100  $\mu\text{Sv/h}$  in einem Meter Abstand – gegenübergestellt.

**Tab. 3.5** Vergleich der Ergebnisse der Ortsdosisleistung in  $\mu\text{Sv/h}$  für getrocknete und kompaktierte Ionenaustauscherharze im MOSAIK<sup>®</sup>-Behälter

<b>Ortsdosisleistung</b>	<b>Oberfläche Maximalwert</b>	<b>Oberfläche Mittelwert</b>	<b>100 cm Abstand</b>
Endlagerungsbedingungen Konrad	1,00E+4	2,00E+3	1,00E+2
<b>radial</b>			
getrocknet, $\Delta t = 1$ Jahr	1,10E+03	8,04E+02	<b>2,05E+02</b>
getrocknet, $\Delta t = 10$ Jahre	6,63E+02	4,96E+02	<b>1,27E+02</b>
getrocknet, $\Delta t = 50$ Jahre	2,35E+02	1,76E+02	4,49E+01
kompaktiert, $\Delta t = 1$ Jahr	8,91E+02	6,62E+02	<b>1,70E+02</b>
kompaktiert, $\Delta t = 10$ Jahre	6,11E+02	4,54E+02	<b>1,16E+02</b>
kompaktiert, $\Delta t = 50$ Jahre	2,16E+02	1,61E+02	4,12E+01
<b>axial</b>			
getrocknet, $\Delta t = 1$ Jahr	1,29E+03	5,71E+02	<b>2,09E+02</b>
getrocknet, $\Delta t = 10$ Jahre	7,88E+02	3,51E+02	<b>1,30E+02</b>
getrocknet, $\Delta t = 50$ Jahre	2,79E+02	1,24E+02	4,58E+01
kompaktiert, $\Delta t = 1$ Jahr	1,05E+03	4,74E+02	<b>1,75E+02</b>
kompaktiert, $\Delta t = 10$ Jahre	7,21E+02	3,25E+02	<b>1,20E+02</b>
kompaktiert, $\Delta t = 50$ Jahre	2,55E+02	1,15E+02	4,24E+01

Die ODL für die entwässerten Ionenaustauscherharze liegen unter den Grenzwerten (siehe Tab. 3.4). Die ODL für getrocknete und kompaktierte Ionenaustauscherharze im Abstand von 100 cm liegt über den Grenzwerten. Dies betrifft die Harze mit Abklingzeiten von einem und zehn Jahren. Diesbezüglich sind zwei Effekte zu berücksichtigen, zum einen die Modellierung als Volumenquelle und zum anderen die Eigenschaften von Co-60. Aufgrund der hohen Ausgangsaktivität, der hohen  $\gamma$ -Energien und einer Halbwertszeit von 5,27 Jahren des Nuklides Co-60 wird die ODL in kurzen Zeiträumen in der Behälterumgebung von diesem Nuklid dominiert /PFE 98/.

Der MOSAIK<sup>®</sup>-Behälter bietet die Möglichkeit einer stärkeren Abschirmung durch das Einbringen eines Blei-Liners. Auf Basis der  $\gamma$ -Energie des in den Zeiträumen dominierenden Nuklides (Co-60) und der Halbwertsdicke für Blei, kann die notwendige Dicke des Blei-Liners auf ca. 20 mm abgeschätzt werden. Zusätzlich reduziert der Einsatz des Blei-Liners auch das für die Abfallmatrix nutzbare Volumen im Innenraum des Behälters, was mit einer Reduktion des Aktivitätsinventars einhergeht. Alternativ kann die Einhaltung des Grenzwertes durch eine Abklinglagerungen von über zehn Jahren erreicht werden.

Bei einer 2x1x1-Anordnung von MOSAIK<sup>®</sup>-Behältern befüllt mit entwässerten Harzen ist die ODL wie erwartet höher als beim Einzelbehälter.

### **3.3 Verdampferkonzentrate in VBA-Behältern**

#### **3.3.1 Ausgangsdaten**

Im Folgenden werden die relevanten Ausgangsdaten für die Berechnungen der ODL von konditionierten VDK aufgeführt. In Tab. 3.6 sind die für die Bestimmung der ODL berücksichtigten Verarbeitungs- und Verpackungsszenarien gelistet. Für die beiden Konditionierungsmethoden – getrocknet und zementiert – wurden jeweils drei Abschirmungsfälle betrachtet: VDK im Fass, Fass mit VDK in der VBA aus Normalbeton (NBA) und aus Schwerbeton (SBA). Zusätzlich sind drei Abklingzeiten berücksichtigt worden, um den Zeithorizont vom Anfall der Rohabfälle, Verarbeitung und Zwischenlagerung abzudecken.

**Tab. 3.6** Berücksichtigte Verarbeitungs- und Verpackungsszenarien

<sup>1)</sup> als Referenzfall für 2x1x1-Anordnung von VBA-Behältern berücksichtigt

Verarbeitung	Fass	VBA	Für die Abklingzeit $\Delta t$ (a)
VDK getrocknet	x	-	1, 10, 50
VDK getrocknet <sup>1)</sup>	x	NBA	1, 10, 50
VDK getrocknet	x	SBA	1, 10, 50
VDK zementiert	x	-	1, 10, 50
VDK zementiert	x	NBA	1, 10, 50
VDK zementiert	x	SBA	1, 10, 50

Die stoffliche Zusammensetzung der VDK hängt stark von der Art der Anlage und den anlagenspezifischen Prozessen ab. In Kap. 2.2.1.2 in Tab. 2.3 ist beispielhaft die Zusammensetzung von VDK eines WWER-Reaktors gegeben. Dies wurde als Ausgangspunkt für die Modellierung der ODL der VDK genutzt. Für die Bestimmung der Aktivität wurde die Aktivitätskonzentration der WWER (440 MW) aus Tab. 2.5 verwendet. Sie bilden einen realistischen Wert der erwarteten Konzentrationen von Radionukliden in VDK. Für die Berechnung wurden Co-60 und Cs-137 berücksichtigt. In Tab. 3.7 sind die berechneten Aktivitäten pro 200-l-Fass sowie die Dichte für getrocknete und zementierte VDK angegeben.

**Tab. 3.7** Aktivität und Dichte für getrocknete und zementierte VDK

Konditionierung	Aktivität Co-60 (Bq/Fass)	Aktivität Cs-137 (Bq/Fass)	Dichte (g/cm <sup>3</sup> )
VDK getrocknet	1,06E+09	8,07E+09	2,13
VDK zementiert	2,85E+07	2,18E+08	1,38

Gemäß der Angaben von aus /SZA 00/ bestehen die VDK zum größten Teil aus NaOH und KOH (in Summe) sowie Borsäure. Aufgrund der geringen Datenlage und dem Sachverhalt, dass die Art des Salzes für den Photonentransport in MCNP zur Berechnung der ODL eine verschwindend geringe Rolle spielt, wird für die Berechnung vereinfacht von einer NaOH-Lösung mit 30 % Feststoffgehalt /KTE 21a/ ausgegangen<sup>6</sup>. Getrocknete VDK wurden als NaOH mit 10 % Restwasser und einer Dichte von 2,13 g/cm<sup>3</sup> modelliert

<sup>6</sup> Zum Zeitpunkt vor der Konditionierung

und zementierte VDK wurden als Betonmatrix mit einem Wasseranteil von 12,5 % und einer Materialdichte von 1,38 g/cm<sup>3</sup> /HAV 14/ modelliert.

**Tab. 3.8** Zusammensetzung der Betonmatrix für betonierte Abfälle in Massen-% /HAV 14/

Verbindung	Massen-%
H <sub>2</sub> O	12,5
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	9,5
SiO <sub>2</sub>	37
SO <sub>3</sub>	2
K <sub>2</sub> O	2
CaO	33
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4

Zur Modellierung von zementierten VDK wurde die Zusammensetzung des Betons in Tab. 3.8 genutzt. Für den Fall der Zementierung von VDK ist allerdings zu beachten, dass potenzielle Schwankungen des Feststoffgehalts eine große Auswirkung auf die Nuklidkonzentrationen haben. Diese Unsicherheit wird in Kap. 3.3.4 adressiert.

In Tab. 3.9 ist die Gamma-Intensität des Fasses für verschiedene Zeitpunkte gelistet. Es wurde angenommen, dass die Aktivität gleichmäßig im Fass verteilt ist.

**Tab. 3.9** Mit SCALE berechnete Gamma-Intensität in Photonen/s

Konditionierung	Intensität (Gammas/s/Fass) Δt = 1 Jahr	Intensität (Gammas/s/Fass) Δt = 10 Jahre	Intensität (Gammas/s/Fass) Δt = 50 Jahre
VDK getrocknet	1,05E+10	7,56E+09	2,78E+09
VDK zementiert	2,84E+08	2,04E+08	7,50E+07

Die Ausgangsdaten für die Behältermaterialien sind in Tab. 3.10 gelistet.

**Tab. 3.10** Daten zur VBA und zum 200-l-Fass /KTE 15/

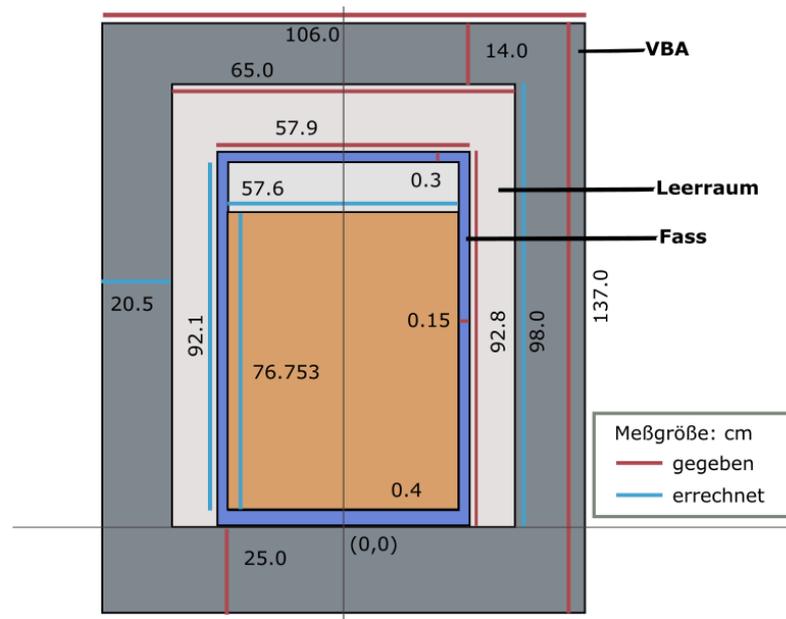
Größe	200-l-Fass	NBA	SBA
Höhe (mm)	928	1370	1370
Außendurchmesser (mm)	579	1060	1060
Innendurchmesser (mm)	576	650 - 670	650 - 670
Wandstärke Mantel (mm)	2,5	195 - 205 konisch	195 - 205 konisch
Wandstärke Boden (mm)	4	250	250
Materialdichte (g/cm <sup>3</sup> )	7,85 (Stahl)	2,4 (Beton)	3,5 (Beton)

### 3.3.2 Ergebnisse

Die ODL für die gewählten Szenarien (siehe Tab. 3.6) wurde mit folgenden Methoden in MCNP berechnet. Die ODL im Abstand von bis zu 30 Metern in radialer Richtung wurde mit einem Ring-Tally berechnet, der die Strahlungsfluenz in einem Ring um den Behälter mittelt. In axialer Richtung wurden Punkt-Tallies verwendet, welche jeweils die Fluenz an einem Punkt detektieren. Für die Oberflächendosis wurden zwei verschiedene Methoden genutzt. Die maximale ODL wurde mit einem Ring-Tally auf halber Höhe des Behälters berechnet. Außerdem wurde ein Surface-Tally genutzt, um die durchschnittliche ODL auf dem Behältermantel auszugeben. Die Ergebnisse für getrocknete und zementierte Verdampferkonzentrate sind respektive in Tab. 3.11 und Tab. 3.12 gelistet. Eine graphische Darstellung der Daten findet sich in Abb. 3.8 bis Abb. 3.10.

### Behälter

In Abb. 3.7 ist das geometrische Modell (MCNP 6.2) für die VDK in einer VBA gezeigt. Die VDK-Abfallmatrix (zementiert oder getrocknet) ist in orange, der Mantel des Rollreifens in blau und die VBA (Typ I) in dunkelgrau dargestellt. Für beide Konditionierungsmethoden wird eine Befüllung von 200 l angenommen. Der Leerraum zwischen Fass und VBA ist mit Normalbeton aus Tab. 3.10 vergossen. Die Betonzusammensetzung der VBA wurde aus Tab. 3.8 und die Dichte aus Tab. 3.10 übernommen. In beiden Fällen wurde der Armierungskorb nicht explizit modelliert, da der Abschirmungseffekt der Metallstäbe nur einen lokalisierten Anteil leistet.

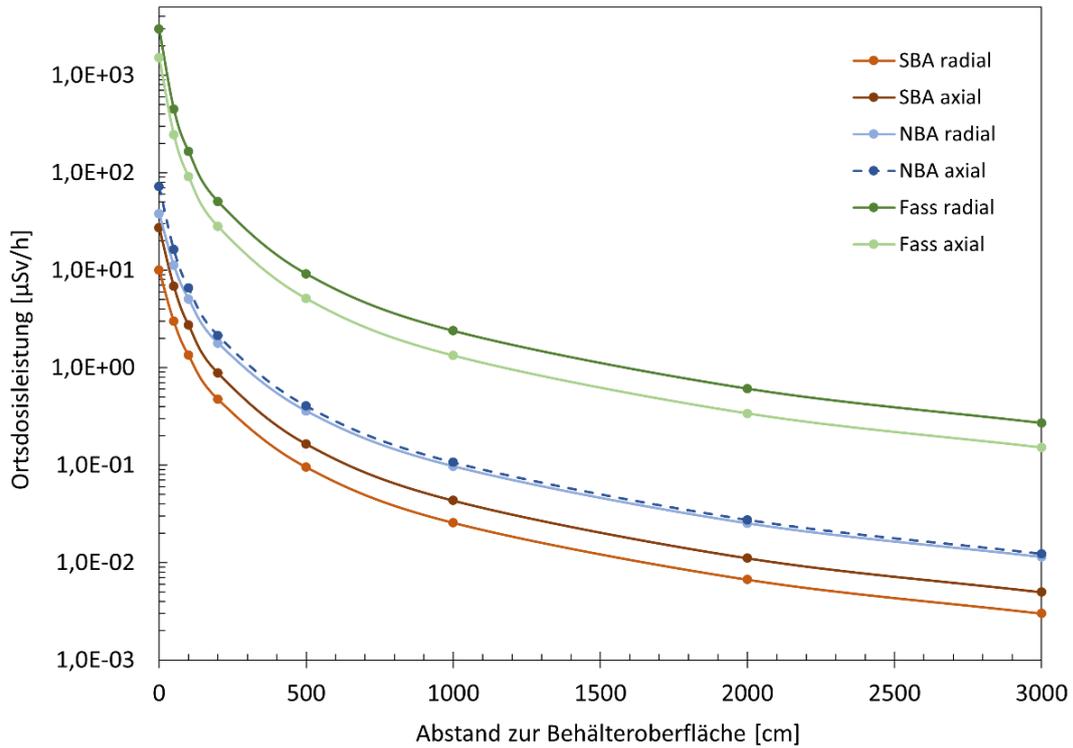


**Abb. 3.7** MCNP-Modell einer VBA in die ein 200-l-Fass, befüllt mit VDK, eingebracht ist

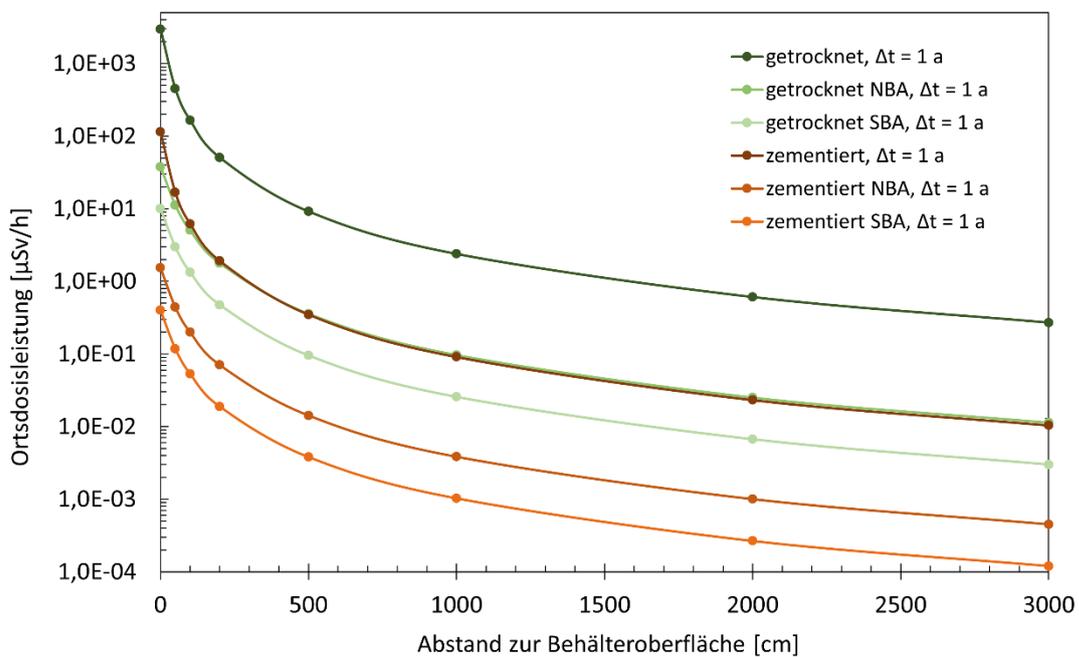
### Ortsdosisleistung

Unabhängig von der Konditionierung der VDK verhält sich die ODL für die verschiedenen Abschirmungen gleich. Ohne Abschirmung ist die ODL in axialer Richtung kleiner als in radialer Richtung. Für eine Abschirmung mit einer VBA aus Normalbeton ist die ODL in axialer und radialer Richtung annähernd identisch. Im Falle der Abschirmung mit einer VBA aus Schwerbeton ist die ODL in axialer Richtung größer als in radialer Richtung (siehe Abb. 3.8).

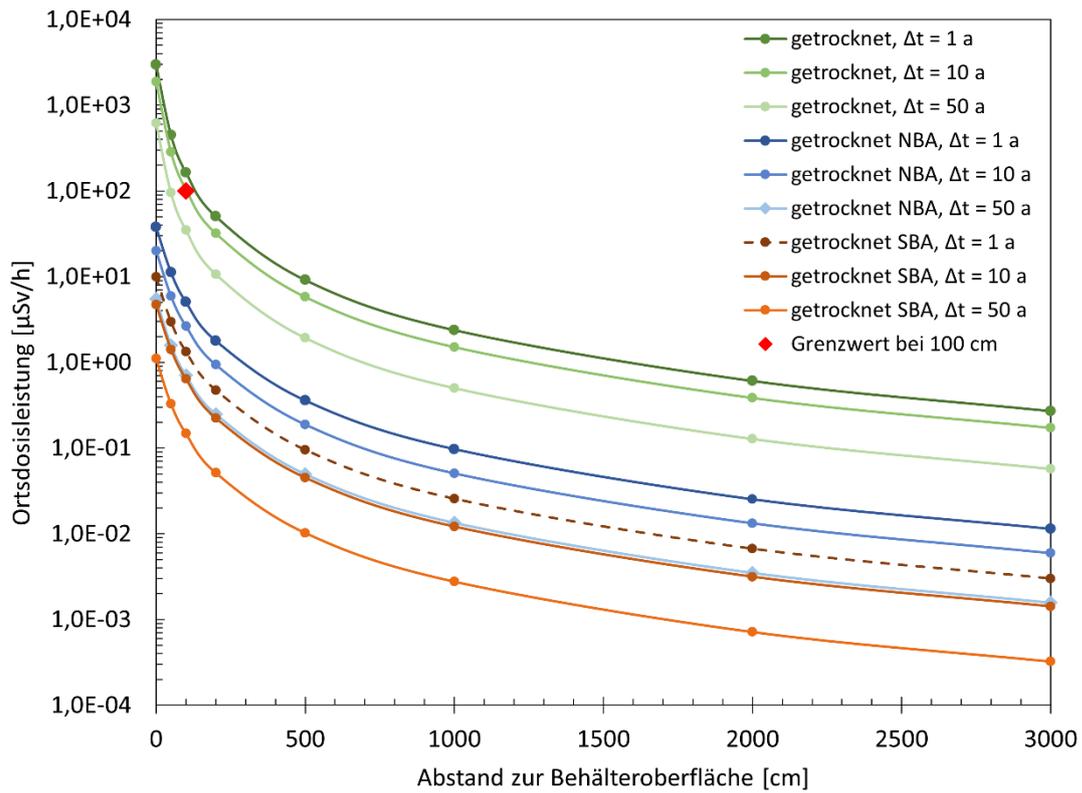
Die ODL der zwei Konditionierungsszenarien im direkten Vergleich (siehe Abb. 3.9) und die ODL der jeweiligen Konditionierungsmethode bezogen auf die Abklingzeiten verlaufen mit der Entfernung zum Behälter subparallel (siehe Abb. 3.10). Die ODL verringert sich wie erwartet mit der Dichte der Abschirmung sowie der Konzentration der Quelle. Getrocknete Konzentrate haben eine höhere ODL als zementierte. Die Abschirmwirkung ist am höchsten für die VBA aus Schwerbeton, gefolgt von der VBA aus Normalbeton. Die höchste ODL haben nicht abgeschirmte Fässer.



**Abb. 3.8** Vergleich ODL getrockneter VDK in axialer und radialer Richtung (nach einem Jahr Abklinglagerung)



**Abb. 3.9** ODL (radial) getrockneter und zementierter VDK in verschiedenen Behältern (nach einem Jahr Abklinglagerung)



**Abb. 3.10** ODL (radial) für getrocknete VDK im Fass, in einer NBA und SBA für verschiedene Abklingzeiten (1, 10, 50 Jahre) und der ODL-Grenzwert in 100 cm Abstand

**Tab. 3.11** ODL in radialer und axialer Richtung von getrockneten Verdampferkonzentraten mit und ohne VBA als Abschirmung für verschiedene Abklingzeiten und Abstände (Werte in  $\mu\text{Sv/h}$ )

<sup>1)</sup> ODL an Mantelfläche ist der Durchschnitt über die Oberfläche des Behälters. ODL bei 0 cm ist der Durchschnitt eines Ringes in der Mitte des Behälters.

<b>radial</b>									
<b>Abstand [cm]</b>	<b>Mantelfläche<sup>1)</sup></b>	<b>0</b>	<b>50</b>	<b>100</b>	<b>200</b>	<b>500</b>	<b>1000</b>	<b>2000</b>	<b>3000</b>
getrocknet NBA, $\Delta t = 1$ Jahr	2,29E+01	3,79E+01	1,12E+01	5,05E+00	1,78E+00	3,58E-01	9,71E-02	2,52E-02	1,14E-02
getrocknet NBA, $\Delta t = 10$ Jahre	1,21E+01	2,01E+01	5,93E+00	2,65E+00	9,38E-01	1,88E-01	5,08E-02	1,33E-02	5,95E-03
getrocknet NBA, $\Delta t = 50$ Jahre	3,22E+00	5,48E+00	1,59E+00	7,07E-01	2,49E-01	4,97E-02	1,34E-02	3,50E-03	1,57E-03
getrocknet SBA, $\Delta t = 1$ Jahr	5,76E+00	9,98E+00	2,98E+00	1,33E+00	4,74E-01	9,52E-02	2,56E-02	6,69E-03	3,00E-03
getrocknet SBA, $\Delta t = 10$ Jahre	2,73E+00	4,72E+00	1,42E+00	6,39E-01	2,24E-01	4,50E-02	1,21E-02	3,15E-03	1,42E-03
getrocknet SBA, $\Delta t = 50$ Jahre	6,47E-01	1,11E+00	3,28E-01	1,48E-01	5,16E-02	1,03E-02	2,77E-03	7,16E-04	3,24E-04
getrocknet, $\Delta t = 1$ Jahr	2,49E+03	2,98E+03	4,49E+02	1,65E+02	5,06E+01	9,14E+00	2,38E+00	6,07E-01	2,70E-01
getrocknet, $\Delta t = 10$ Jahre	1,58E+03	1,88E+03	2,86E+02	1,05E+02	3,22E+01	5,81E+00	1,51E+00	3,86E-01	1,73E-01
getrocknet, $\Delta t = 50$ Jahre	5,23E+02	6,22E+02	9,52E+01	3,49E+01	1,07E+01	1,93E+00	5,01E-01	1,28E-01	5,72E-02
<b>Axial</b>									
<b>Abstand [cm]</b>	<b>Deckelfläche<sup>1)</sup></b>	<b>0</b>	<b>50</b>	<b>100</b>	<b>200</b>	<b>500</b>	<b>1000</b>	<b>2000</b>	<b>3000</b>
getrocknet NBA, $\Delta t = 1$ Jahr	2,42E+01	7,20E+01	1,62E+01	6,54E+00	2,14E+00	4,03E-01	1,06E-01	2,74E-02	1,23E-02
getrocknet NBA, $\Delta t = 10$ Jahre	1,32E+01	3,76E+01	9,06E+00	3,61E+00	1,16E+00	2,18E-01	5,74E-02	1,47E-02	6,60E-03
getrocknet NBA, $\Delta t = 50$ Jahre	3,74E+00	9,65E+00	2,60E+00	1,02E+00	3,26E-01	6,04E-02	1,59E-02	4,06E-03	1,82E-03
getrocknet SBA, $\Delta t = 1$ Jahr	9,14E+00	2,73E+01	6,83E+00	2,72E+00	8,78E-01	1,64E-01	4,32E-02	1,11E-02	4,96E-03
getrocknet SBA, $\Delta t = 10$ Jahre	4,81E+00	1,41E+01	3,61E+00	1,42E+00	4,53E-01	8,40E-02	2,20E-02	5,64E-03	2,53E-03
getrocknet SBA, $\Delta t = 50$ Jahre	1,28E+00	3,39E+00	9,78E-01	3,77E-01	1,18E-01	2,16E-02	5,64E-03	1,44E-03	6,44E-04
getrocknet, $\Delta t = 1$ Jahr	1,14E+03	1,51E+03	2,46E+02	9,08E+01	2,80E+01	5,09E+00	1,33E+00	3,38E-01	1,51E-01
getrocknet, $\Delta t = 10$ Jahre	7,26E+02	9,66E+02	1,57E+02	5,77E+01	1,78E+01	3,22E+00	8,38E-01	2,13E-01	9,54E-02
getrocknet, $\Delta t = 50$ Jahre	2,43E+02	3,27E+02	5,21E+01	1,91E+01	5,88E+00	1,06E+00	2,76E-01	7,03E-02	3,14E-02

**Tab. 3.12** ODL-Berechnung in radialer und axialer Richtung von zementierten Verdampferkonzentraten mit und ohne VBA als Abschirmung für verschiedene Abklingzeiten und Abstände (Werte in  $\mu\text{Sv/h}$ )

<sup>1)</sup> ODL an Mantelfläche ist der Durchschnitt über die Oberfläche des Behälters. ODL bei 0 cm ist der Durchschnitt eines Ringes in der Mitte des Behälters.

radial									
Abstand [cm]	Mantelfläche <sup>1)</sup>	0	50	100	200	500	1000	2000	3000
zementiert NBA, $\Delta t = 1$ Jahr	9,04E-01	1,54E+00	4,41E-01	1,99E-01	7,06E-02	1,42E-02	3,84E-03	1,00E-03	4,51E-04
zementiert NBA, $\Delta t = 10$ Jahre	4,75E-01	8,24E-01	2,33E-01	1,05E-01	3,72E-02	7,44E-03	2,01E-03	5,23E-04	2,36E-04
zementiert NBA, $\Delta t = 50$ Jahre	1,29E-01	2,18E-01	6,33E-02	2,83E-02	9,97E-03	2,00E-03	5,39E-04	1,40E-04	6,30E-05
zementiert SBA, $\Delta t = 1$ Jahr	2,25E-01	4,00E-01	1,18E-01	5,33E-02	1,89E-02	3,81E-03	1,03E-03	2,66E-04	1,20E-04
zementiert SBA, $\Delta t = 10$ Jahre	1,12E-01	1,87E-01	5,63E-02	2,54E-02	8,99E-03	1,80E-03	4,83E-04	1,26E-04	5,67E-05
zementiert SBA, $\Delta t = 50$ Jahre	2,63E-02	4,42E-02	1,32E-02	5,89E-03	2,08E-03	4,14E-04	1,11E-04	2,91E-05	1,30E-05
zementiert, $\Delta t = 1$ Jahr	9,39E+01	1,14E+02	1,68E+01	6,20E+00	1,92E+00	3,49E-01	9,10E-02	2,32E-02	1,04E-02
zementiert, $\Delta t = 10$ Jahre	5,96E+01	7,27E+01	1,07E+01	3,95E+00	1,22E+00	2,22E-01	5,78E-02	1,48E-02	6,61E-03
zementiert, $\Delta t = 50$ Jahre	1,98E+01	2,41E+01	3,57E+00	1,32E+00	4,06E-01	7,37E-02	1,92E-02	4,91E-03	2,20E-03
axial									
Abstand [cm]	Deckelfläche <sup>1)</sup>	0	50	100	200	500	1000	2000	3000
zementiert NBA, $\Delta t = 1$ Jahr	9,32E-01	2,57E+00	6,24E-01	2,54E-01	8,33E-02	1,58E-02	4,20E-03	1,08E-03	4,85E-04
zementiert NBA, $\Delta t = 10$ Jahre	5,10E-01	1,32E+00	3,45E-01	1,39E-01	4,51E-02	8,50E-03	2,25E-03	5,77E-04	2,59E-04
zementiert NBA, $\Delta t = 50$ Jahre	1,46E-01	3,76E-01	9,94E-02	3,94E-02	1,26E-02	2,36E-03	6,21E-04	1,59E-04	7,13E-05
zementiert SBA, $\Delta t = 1$ Jahr	3,52E-01	1,21E+00	2,62E-01	1,06E-01	3,44E-02	6,47E-03	1,71E-03	4,39E-04	1,97E-04
zementiert SBA, $\Delta t = 10$ Jahre	1,82E-01	6,12E-01	1,38E-01	5,48E-02	1,76E-02	3,28E-03	8,64E-04	2,22E-04	9,93E-05
zementiert SBA, $\Delta t = 50$ Jahre	4,79E-02	2,42E-01	3,67E-02	1,43E-02	4,51E-03	8,31E-04	2,17E-04	5,56E-05	2,49E-05
zementiert, $\Delta t = 1$ Jahr	4,15E+01	5,68E+01	9,02E+00	3,40E+00	1,07E+00	1,98E-01	5,17E-02	1,32E-02	5,92E-03
zementiert, $\Delta t = 10$ Jahre	2,66E+01	3,45E+01	5,74E+00	2,16E+00	6,77E-01	1,24E-01	3,25E-02	8,31E-03	3,72E-03
zementiert, $\Delta t = 50$ Jahre	8,86E+00	1,18E+01	1,91E+00	7,17E-01	2,24E-01	4,11E-02	1,07E-02	2,74E-03	1,23E-03

### 3.3.3 2x1x1-Anordnung von VBA-Behältern

Bei den vorangegangenen Untersuchungen wurde die ODL von einem mit VDK befüllten VBA-Behälter bestimmt. Nachfolgend wird eine 2x1x1-Anordnung von VBA-Behältern betrachtet, um den Einfluss auf die ODL zu untersuchen. Dabei werden die folgenden zwei Szenarien gewählt:

- zwei VBA sind mit getrockneten VDK und Aktivität befüllt
- zwei VBA sind mit getrockneten VDK befüllt, davon eine mit und eine ohne Aktivität (siehe Tab. 3.13)

Als Referenzfall dient der einzelne VBA-Behälter (siehe Tab. 3.6). Die Behälter stehen in einem Abstand von 1 cm nebeneinander. Eine schematische Darstellung findet sich in Abb. 3.11.

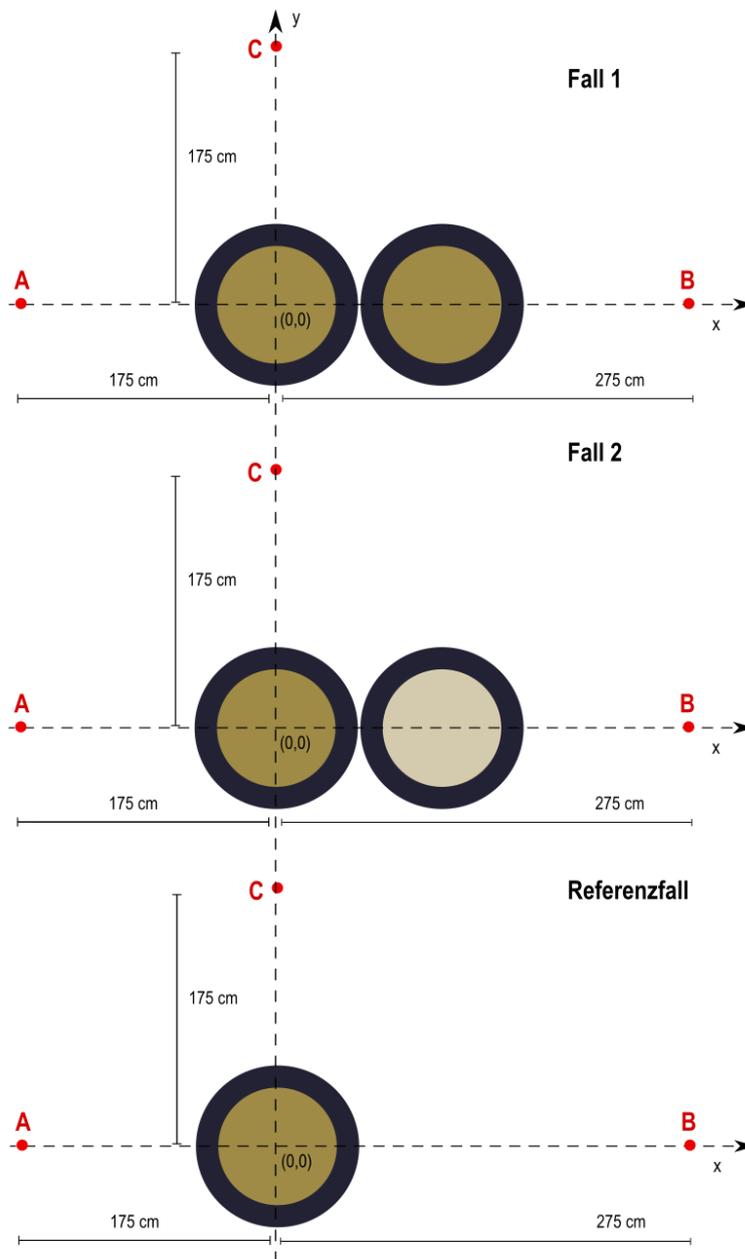
**Tab. 3.13** Szenarien für die 2er-VBA-Anordnung

Die VBA sind aus Normalbeton und für die VDK wurde eine Abklingzeit von einem Jahr berücksichtigt.

Fall	VBA		VBA	
	1)	Mit getrockneten VDK befüllt	1,05E+10 Bq	Mit getrockneten VDK befüllt
2)	Mit getrockneten VDK befüllt	1,05E+10 Bq	Mit getrockneten VDK befüllt	0 Bq
Referenzfall	Mit getrockneten VDK befüllt	1,05E+10 Bq		

Für Fall 1 (siehe Abb. 3.12), Fall 2 (siehe Abb. 3.13) und den Referenzfall (siehe Abb. 3.14) wurden die ODL um die Behälter simuliert. Die Abbildungen zeigen die ODL kurz über und ca. zwei Meter über dem Behälter. Zur besseren Vergleichbarkeit wurden zusätzlich drei Punkte um die 2x1x1-Anordnung bzw. den Referenzfall explizit aufgeführt (siehe Abb. 3.11 und Tab. 3.14). Die Punkte liegen in einem Abstand von 122 cm zur Oberfläche des ersten Behälters (Punkte A und C) sowie im Abstand von 115 cm zur Oberfläche des zweiten Behälters (Punkt B). Die Rechnungen wurden mit einem MCNP-Mesh-Tally ausgewertet. Hierbei wird der normalisierte Fluss über vordefinierte Voxel ausgewertet und daraus die Dosisleistung berechnet. Diese in Tab. 3.14 dargestellten

Werte sind Ergebnisse der den Referenzpunkt umgebenden bins des Mesh-Tallies. Das Detektionsgitter ist in radiale bins von 20 Grad aufgeteilt.



**Abb. 3.11** Schematische Darstellung der Fälle 1, 2 sowie des Referenzfalles mit Blickrichtung in z-Achse

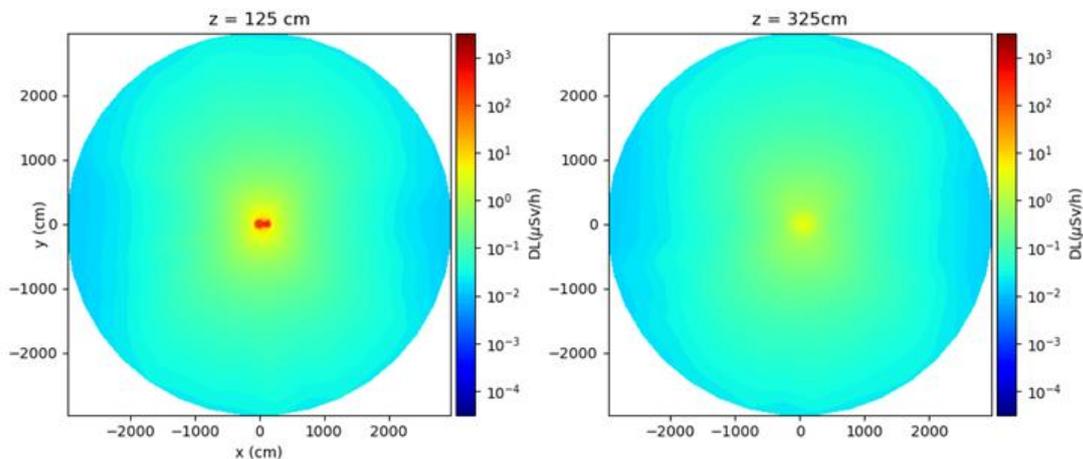
**Tab. 3.14** ODL für die Punkte A, B und C in  $\mu\text{Sv/h}$

\* Im betrachteten Voxel um Punkt B wurden keine Teilchen detektiert. Dies wurde zusätzlich durch Punkt Tallies (Fluenz an einem Punkt) mit Dosisleistungen in der Größenordnung von  $10^{-7} \mu\text{Sv/h}$  verifiziert. Auch mit dieser Detektionsmethode ist die Standardabweichung der Ergebnisse zu hoch, um ein belastbares Ergebnis zu produzieren. Die Absorption ist in beiden Fällen so hoch, dass das Modell für diese Berechnungen für Berechnungen von größeren Lageranordnungen angepasst werden müsste.

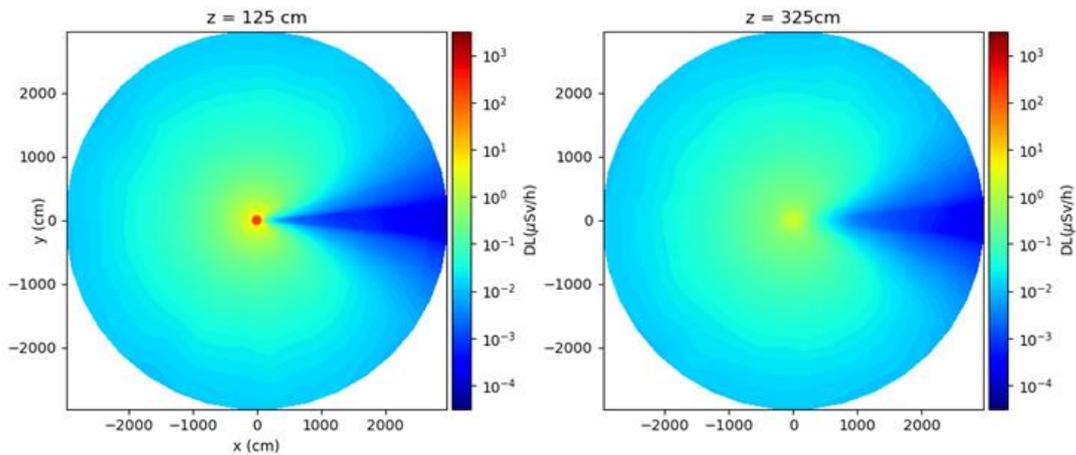
Aufnahmepunkt	A	B	C
Fall 1)	3,46	3,77	6,24
Fall 2)	3,49	0*	3,52
Referenzfall	3,47	1,45	3,48

Im Vergleich des Referenzfalls mit

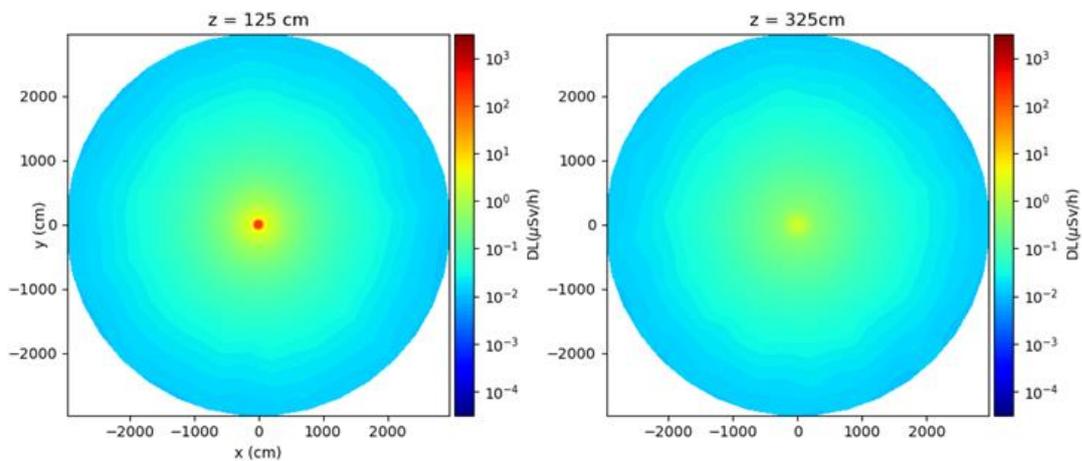
- Fall 1 ist die ODL in x-Richtung durch den zweiten Behälter abgeschirmt (siehe Abb. 3.12 und Punkte A und B im Vergleich zu C) und
- Fall 2 ist die ODL in x-Richtung durch den zweiten Behälter, der keine Aktivität trägt, vollständig abgeschirmt (siehe Abb. 3.13 und Punkt B).



**Abb. 3.12** ODL um die VBA-Behälter für Fall 1 mit Blickrichtung entlang z-Achse



**Abb. 3.13** ODL um die VBA-Behälter für Fall 2 mit Blickrichtung entlang z-Achse



**Abb. 3.14** ODL um den VBA-Behälter für den Referenzfall mit Blickrichtung entlang z-Achse

### 3.3.4 Bewertung

Die ODL für die unterschiedlich konditionierten VDK folgt dem Trend, dass die ODL zementierter VDK geringer ist als die ODL getrockneter VDK. Es wurde zusätzlich der Einfluss verschiedener Abschirmungen berücksichtigt, indem die ODL von VDK in einem 200-l-Fass sowie die ODL, wenn selbiges Fass in eine VBA aus Normal- und Schwerbeton eingebracht wird, bestimmt wurde.

Die Berechnungen zeigen, dass die ODL von getrockneten höher ist als die ODL der zementierten VDK. Dies liegt an der Aufkonzentrierung der Aktivität durch den Trocknungsprozess. Die Abschirmung mit Schwerbeton ist, wie erwartet, besser als mit Normalbeton.

Im Vergleich der Ergebnisse aus Kap. 3.3.2 mit den Grenzwerten aus den EBK zeigt sich, dass die ODL für die zementierten und die getrockneten VDK in einer VBA aus Normal- und Schwerbeton unter den Grenzwerten liegt. Sogar die ODL der zementierten VDK im Fass liegt unter den Grenzwerten. Lediglich die ODL der getrockneten VDK im Fass liegt über den Grenzwerten (siehe Tab. 3.15). Dies betrifft die VDK mit Abklingzeiten von einem und zehn Jahren. Diesbezüglich sind zwei Effekte zu berücksichtigen, zum einen die Modellierung als Volumenquelle und zum anderen die Eigenschaften von Co-60 das eine Halbwertszeit von 5,27 Jahren hat.

**Tab. 3.15** Vergleich der Ergebnisse der ODL in  $\mu\text{Sv/h}$  für getrocknete Verdampferkonzentrationen im Fass ohne Abschirmung mit den Grenzwerten

Ortsdosisleistung	Oberfläche Maximalwert	Oberfläche Mittelwert	100 cm Abstand
Endlagerungsbedingungen Konrad	1,00E+4	2,00E+3	1,00E+2
<b>radial</b>			
getrocknet, $\Delta t = 1$ Jahr	2977,30	<b>2489,60</b>	<b>165,02</b>
getrocknet, $\Delta t = 10$ Jahre	1882,70	1580,50	<b>105,08</b>
getrocknet, $\Delta t = 50$ Jahre	622,26	523,23	34,92
<b>axial</b>			
getrocknet, $\Delta t = 1$ Jahr	1512,50	1137,30	90,75
getrocknet, $\Delta t = 10$ Jahre	966,48	726,48	57,68
getrocknet, $\Delta t = 50$ Jahre	326,63	242,71	19,13

Für die Behandlung und Konditionierung von VDK kann festgehalten werden, dass die Trocknung der Konzentrate das Potential hat, die Abfallmenge signifikant zu verringern. Allerdings geht das einher mit einer höheren Strahlenbelastung und entsprechenden Anforderungen an die Abschirmung. Beim Zementieren von VDK ist unter Berücksichtigung der Anfangsaktivität durchaus denkbar, dass Fässer ohne weitere Abschirmung ausreichend sind.

Die Ergebnisse zur Dosisleistung und die Rückschlüsse beziehen sich wie beschrieben nur auf die hier gewählten Aktivitätskonzentrationen. Es ist jedoch bekannt, dass die Aktivitätskonzentration eine große Bandbreite aufweist (siehe Kap. 2.2.1.2). Um qualitative Aussagen über die jeweiligen Abschirmungs- und Strahlenschutzanforderungen treffen zu können, wurde für die Ergebnisse zur ODL der VDK (siehe Tab. 3.11 und Tab. 3.12) der Faktor aus ODL und Gamma-Intensität gebildet, um die Dosis pro Gamma-Intensität zu erhalten (hier als relative ODL bezeichnet), welche direkt mit der Aktivität des Gebindes korreliert. In Abb. 3.15 sind die Ergebnisse zur Visualisierung in

einer Heatmap dargestellt. Wie bereits bei den Ergebnissen zur berechneten ODL sieht man auch hier, dass die relative ODL mit der Dichte der Abschirmung und der Länge der Lagerdauer abnimmt. Interessant jedoch ist, dass die relative ODL (Dosis pro Intensität) in getrockneten VDK niedriger ist als in zementierten VDK. Dies ist vermutlich auf die Selbstabschirmung des dichteren Materials zurückzuführen.

VDK			radial			axial		
			Mantelfläche	100 cm	1.000 cm	Mantelfläche	100 cm	1.000 cm
getrocknet	NBA	1 Jahr						
		10 Jahre						
		50 Jahre						
	SBA	1 Jahr		1,22E-11	1,02E-11			
		10 Jahre			1,32E-11		1,30E-10	1,20E-10
		50 Jahre		1,00E-11	1,20E-11	1,18E-11		1,10E-10
	Fass	1 Jahr	2,28E-10			1,04E-10		1,21E-10
		10 Jahre	1,00E-10		1,38E-10	1,00E-10		
		50 Jahre						
zementiert	NBA	1 Jahr						
		10 Jahre						
		50 Jahre					1,33E-10	1,20E-10
	SBA	1 Jahr		1,11E-11	1,01E-11			
		10 Jahre			1,34E-11		1,89E-10	1,23E-10
		50 Jahre			1,02E-11	1,62E-11		1,17E-10
	Fass	1 Jahr				1,04E-10		1,75E-10
		10 Jahre				1,01E-10		1,10E-10
		50 Jahre						

niedrigster Wert
  höchster Wert

**Abb. 3.15** Heatmap der relativen Dosis abhängig von der Anfangsintensität

Bei einer 2x1x1-Anordnung ist die ODL im Vergleich zum Einzelbehälter im Allgemeinen erhöht. Dabei ist allerdings zu beachten, dass ein VBA einen dahinterstehenden vollständig abschirmt. Das bedeutet, dass sich die ODL auf der Achse, die zwei VBAs verbindet, nicht erhöht. Senkrecht zu dieser Achse (Punkt C in Abb. 3.11) ist die Dosisleistung in etwa verdoppelt im Vergleich zu einem einzelnen VBA.

## 4 Nachkonditionierung und -qualifizierung von Altabfällen

In den vergangenen Jahren wurde von Betreibern der Kernkraftwerke, der KTE, der JEN, den Landessammelstellen und dem TÜV SÜD, der u. a. als unabhängiger Sachverständiger bei der Produktkontrolle von der BGE eingebunden wird, von Projekten und Herausforderungen bei der Nachqualifizierung von Altabfällen (siehe Kap. 2.1) berichtet. Nachfolgend sind einige Projekte kurz aufgelistet, und stellvertretend ist der Umgang mit Altabfällen anhand von Fallbeispielen etwas detaillierter in Kap. 4.1.1 bis 4.1.3 beschrieben.

Projekte von Kernkraftwerken:

- Am Kernkraftwerk Brunsbüttel wurden zur Nachkonditionierung von Fässern mit Filterharzen und VDK die Anlagen PUSA und FAVORIT III verwendet (siehe Kap. 4.1.2) /VAT 16/.
- Das Vorhaben der PreussenElektra zur Um-/Nachkonditionierung der Alt- und Betriebsabfälle umfasst ca. 13.000 Bestandsgebilde aus den letzten drei Jahrzehnten Leistungs- und insbesondere Rückbaubetrieb der PreussenElektra. Die Gebilde befinden sich an den Standorten Gorleben, Ahaus, Mitterteich, Würgassen, Stade, Unterweser, Isar und Grohnde sowie an diversen Konditionierungsstätten der GNS /PRE 19/.

Projekte bei KTE, JEN und Landessammelstelle Niedersachsen:

- Die KTE berichtet über die Herausforderung bei der Entsorgung von Altabfällen (siehe Kap. 4.1.1).
- Ein Teil der Altabfälle bei der KTE wurde durch Hochdruckverpressen hergestellt. Mittels experimentellen – an inaktiven Dummy-Pellets und Fässern – und theoretischen Untersuchungen – u. a. Temperaturfeldberechnungen – soll der Nachweis des Rückhalts von brennbaren Abfallbestandteilen<sup>7</sup> erbracht werden. Dadurch soll die Einhaltung des Schutzziels der APG04 nachgewiesen werden (siehe Kap. 2.1) /HEG 19/.

---

<sup>7</sup> Der Rückhalt von brennbaren Bestandteilen im Fall eines Schadenfeuers (1 h bei 800 °C und 24 h Abkühlzeit).

- Die JEN berichtet von der Erstellung separater, übergeordneter, sich auf Teilaspekte beziehende Abweichungsbehandlungen und die finale Einbindung der nachqualifizierten Abfälle in die laufenden Kampagnen über Mengenerhöhungen. Dabei wurden die Kampagnen „Verarbeitung Jülicher Aschen, Verarbeitung Jülicher Granulate, Verarbeitung Klärschlämme im Trockenbett und Hochdruckverpressen“ identifiziert, für die Nachqualifizierungsmaßnahmen erforderlich sind /KRE 19/.
- In einem Beitrag der Landessammelstelle Niedersachsen wird von den speziellen Abfalleigenschaften und den damit verbundenen Besonderheiten bei der Nachqualifizierung von Altabfällen berichtet /HAT 20/ (siehe Kap. 4.1.3).

Beitrag des TÜV SÜD:

- Im Beitrag des TÜV SÜD werden Gemeinsamkeiten und Unterschiede bei den Anforderungen an radioaktive Abfälle, die für das Endlager für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM) und die für das Endlager Konrad bestehen, beschrieben. So waren für ERAM zugelassene Gebindetypen, u. a. Fässer, meist 200-l-Fässer. Weitere Anforderungen, die unter aktuellen Anforderungen restriktiver sind, gelten bspw. für die Aktivitätsbegrenzung von Co-60 bezüglich eines Störfalls, für die Aktivitätsbegrenzung von C-14 (bestimmungsgemäßer Betrieb) und für die Begrenzung zusätzlicher Nuklide in Tab. 10 der EBK /STE 22/.

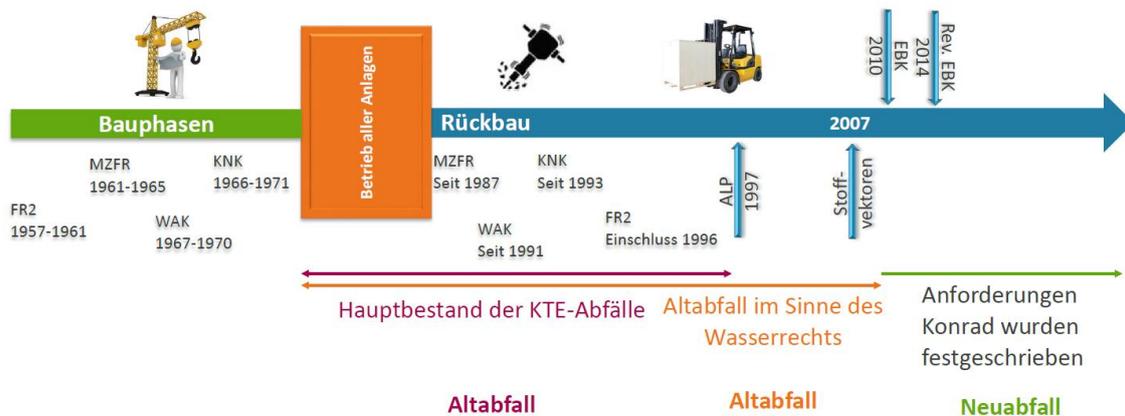
#### **4.1 Fallbeispiele zum Umgang mit Altabfällen bei der KTE, beim Kernkraftwerk Brunsbüttel und der Landessammelstelle Niedersachsen**

##### **4.1.1 Altabfälle bei der KTE**

Die Abfälle bei der KTE sind vielfältig und zeichnen sich u.a. durch eine hohen alpha-Anteil sowie viele störfallrelevante Nuklide aus. Die Abfälle stammen aus folgenden Anlagen:

- Betrieb und Stilllegung der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK)
- Betrieb, Stilllegung und Rückbau der Forschungsreaktoren
- Europäisches Institut für Transurane (ITU)
- Landessammelstelle Baden-Württemberg (inkl. Institute KIT)
- Abgeber aus Industrie- und Energieversorgungsunternehmen

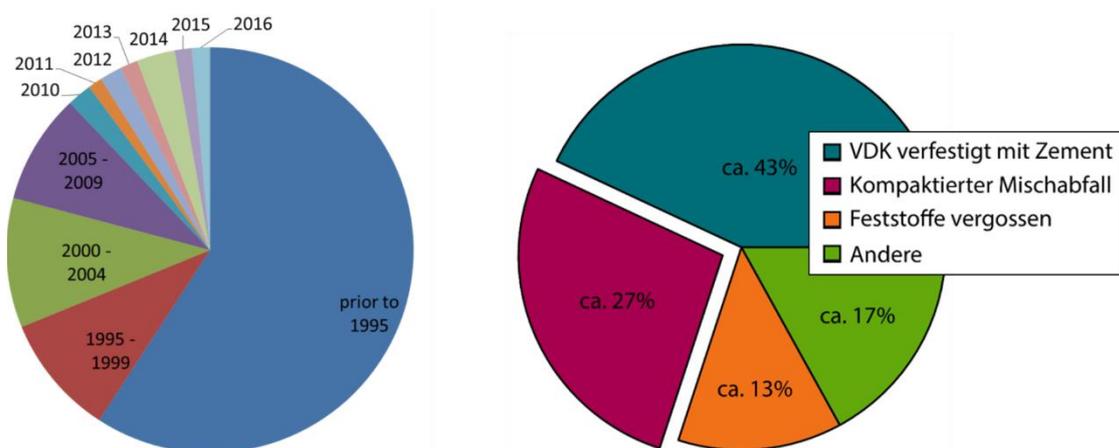
In Abb. 4.1 ist der zeitliche Kontext der nuklearen Anlagen am Standort Karlsruhe mit Bezug zur Entsorgung der entstehenden Abfälle gezeigt.



**Abb. 4.1** Zeitlicher Überblick zu Anfall von radioaktiven Abfällen durch Betrieb und Rückbau der nuklearen Anlagen in Karlsruhe /KTE 22/

Die KTE betreibt das größte Zwischenlager für radioaktive Abfälle in Deutschland. Dort lagern 2.707 m<sup>3</sup> konditionierte Abfallprodukte (Fässer) und 58.531 m<sup>3</sup> Endlagergebände (Container) (Stand: 31. Dezember 2019) /BMU 20/ bzw. lagern ca. 80.000 Fässer in Containern, Einzelabschirmungen oder Lagerkammern /KTE 18/.

In Abb. 4.2 ist ein Überblick zum Herstellungsjahr der bei der KTE zwischengelagerten Abfälle dargestellt. Ein großer Teil wurde vor dem Jahr 1995 hergestellt, und der überwiegende Teil des Abfallbestandes wurde vor dem Jahr 2010 hergestellt.



**Abb. 4.2** Herstellungsjahr des Zwischenlagerbestandes bei der KTE /KTE 18/ (links) und Anteile der verschiedenen Stoffströme der KTE-Abfälle /KTE 21b/ (rechts)

Der Zwischenlagerbestand der Altabfälle der KTE lässt sich über die drei Konditionierungsmethoden bzw. den darüber hergestellten Hauptabfallströmen: Verfüllen, Hochdruckverpressen und Verfestigung von VDK beschreiben (siehe Tab. 4.1). Insgesamt müssen ca. 60.000 m<sup>3</sup> Altabfälle inspiziert, nachqualifiziert und ggf. nachkonditioniert werden. Davon sind ca. 35.500 m<sup>3</sup> vor 1995 hergestellt worden.

**Tab. 4.1** Altabfall im Zwischenlagerbestand der KTE /KTE 18/

<b>Konditionierungsmethoden bzw. Hauptabfallströme</b>	Verfüllen	Hochdruckverpressen	Verfestigen von VDK
<b>Altabfall von vor 1995</b>	8.491 m <sup>3</sup>	4.773 m <sup>3</sup>	22.252 m <sup>3</sup>
<b>Altabfall seit 1995</b>	4.954 m <sup>3</sup>	12.041 m <sup>3</sup>	3.975 m <sup>3</sup>

Wegen der verzögerten Inbetriebnahme des Endlagers Konrad überprüft die KTE die Abfallgebinde auf mögliche Alterungsschäden. Im Zeitraum von 2005 bis Ende März 2021 wurden 45.000 Abfallproduktfässer überprüft, hiervon wiesen ca. 8 % (Mittelwert) der Fässer Korrosionserscheinungen auf. Fässer mit zementierten VDK wiesen vermehrt Korrosionserscheinungen (ca. 20 % des Gesamtbestandes) auf. Dies ist auf die chemischen Eigenschaften der VDK zurückzuführen.

Die Handhabung korrodierter Abfallproduktfässer bzw. Container orientiert sich an den Abfällen bzw. der Verarbeitungsform der Alt-Gebinde /KTE 21c/:

- „Fässer mit direkt im Fass vergossenen Abfällen (z. B. Konzentrate) werden volumenoptimiert in neu konzipierte Schutzfässer (MMS A-300, A-301) eingestellt (siehe Abb. 4.3).
- Fässer mit kompaktierten Abfällen (Presslingen) werden in der LAW-Entsorgung in neue Fässer umgepackt.
- Alte vergossene Fassstahlcontainer (Alt-FSC) werden in der Gerätedekontamination zerlegt und die Abfallproduktfässer bei kompaktierten Abfällen in neue Fässer umgepackt und bei direkt im Fass vergossenen Abfällen in Schutzfässer gestellt.
- Alte Produktstahlcontainer (Alt-PSC) werden in der Gerätedekontamination zerlegt und der Bauschutt in 200-l-Fässer umgepackt.“



**Abb. 4.3** Bei der KTE neu konzipierte Schutzfässer /KTE 21c/

Die KTE bewertet die Abfälle auf Basis von Requalifikations-Ablaufplänen neu. Bei nicht vertretbarem Aufwand die Abfälle nachbehandelt werden. Fehlende Informationen werden durch Analysen, Abbrand- und Aktivierungsrechnungen sowie Bilanzierungsberichte ergänzt. Mittels zerstörungsfreier Messungen und Recherchen von Altunterlagen kann viel Aufwand vermieden werden. Die existierende Altdokumentation ist grundsätzlich richtig, aber nicht vollständig. In Bezug auf die Hauptabfallströme wird folgende Strategie verfolgt /KTE 18/:

- Verpresste Mischabfälle: Nachdeklaration der Rohabfälle gefolgt von Nachberechnung des Chargen- und Produktinventars
- Verpresste Aschen und verfestigte VDK: Bei diesen Abfallströmen basiert die Deklaration der Zwischenprodukte auf Analysen, an denen die Nachdeklaration angreifen kann.
- MAW-Abfälle: Durch die hohen Dosisleistungen und Inventare sind MAW-Chargen meist klein und eine direkte Zuordnung von Reststoff zum Produkt möglich. Die Nachdeklaration findet direkt am Produkt statt.

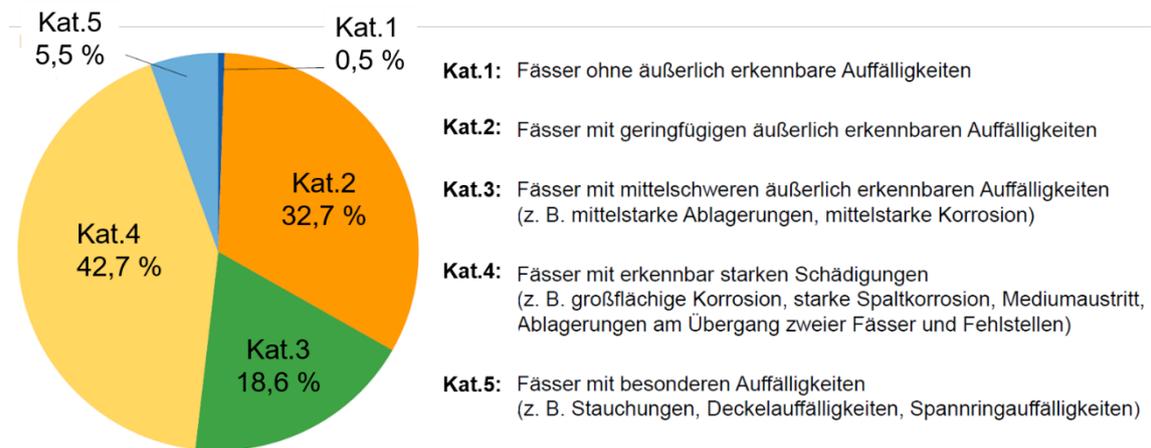
#### **4.1.2 Altabfälle beim Kernkraftwerk Brunsbüttel**

Beim Kernkraftwerk Brunsbüttel (Siedewasserreaktor) wurden 632 Abfallfässer, die im Zeitraum 1979 bis 2010 eingelagert worden sind, über eine fernhantierte Spezialkamera inspiziert. Die Fässer lagerten in sechs Kavernen, und z. T. waren die Fässer sechsfach gestapelt.

Die Inspektion ergab folgende Befunde /VAT 16/:

- „Geringfügige bis starke Korrosion am Boden- und Deckelring, am Rollreifen sowie am Fassmantel
- Geringfügige bis starke Aufblühungen am Boden- und Deckelring, am Rollreifen sowie am Fassmantel
- Geringfügige bis starke bräunliche bzw. schwarze Ablagerungen am Boden- und Deckelring, am Deckel, am Rollreifen sowie am Fassmantel
- Geringfügige bis starke Lackschäden am Boden- und Deckelring, am Rollreifen sowie am Fassmantel
- Geringfügige bis starke bräunliche Verfärbungen am Boden- und Deckelring sowie am Fassmantel
- Weiße Ablagerungen am Fassmantel und am Fassdeckel
- Keine zentrische Positionierung zweier übereinanderstehender Fässer im Fassstapel A5 und D1
- Deckel am Fass V 193 nicht ordnungsgemäß verschlossen
- Spannring nicht ordnungsgemäß angezogen
- Flüssigkeitsansammlung und Folie am Kavernenboden
- Fehlstellen am Fassmantel mit Ablagerungen und Ablaufspuren“

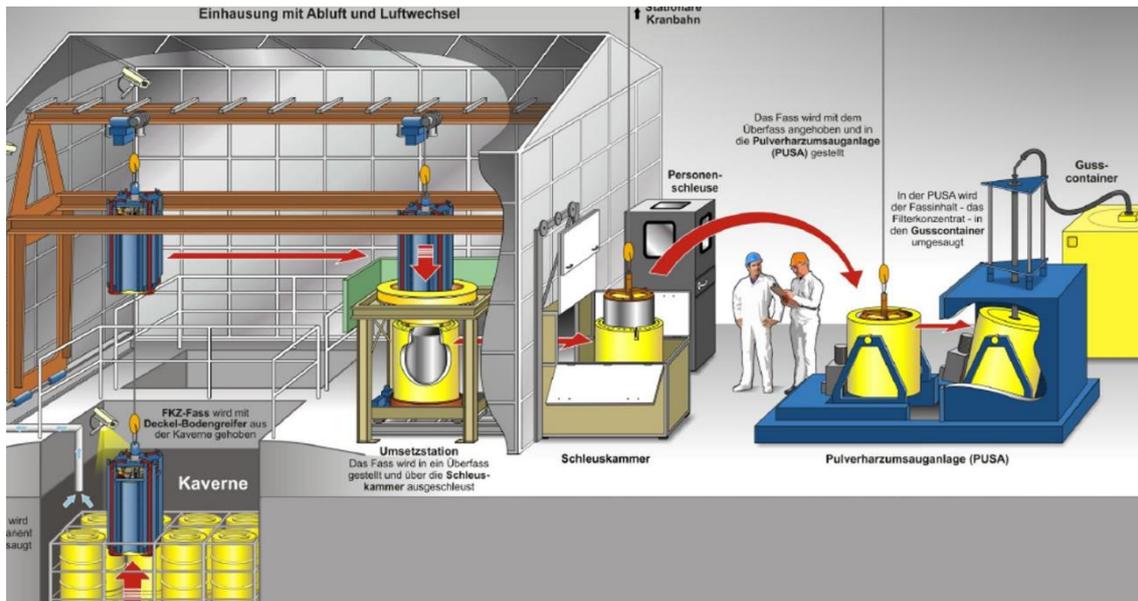
In der Auswertung wurden die verschiedenen Auffälligkeiten in fünf Schadenskategorien unterteilt, je nach Schwere der Auffälligkeit oder Schädigung. Von den in Kaverne 1 bis 4 inspizierten Fässern sind 382 Fässer mit Befunden identifiziert und den Kategorien zugeordnet worden. In Abb. 4.4 ist die Verteilung auf die Kategorien und die Beschreibung der Kategorien 1 bis 5 dargestellt.



**Abb. 4.4** Schadenskategorien und die Verteilung von den in Kaverne 1 bis 4 inspierten Fässer /VAT 16/

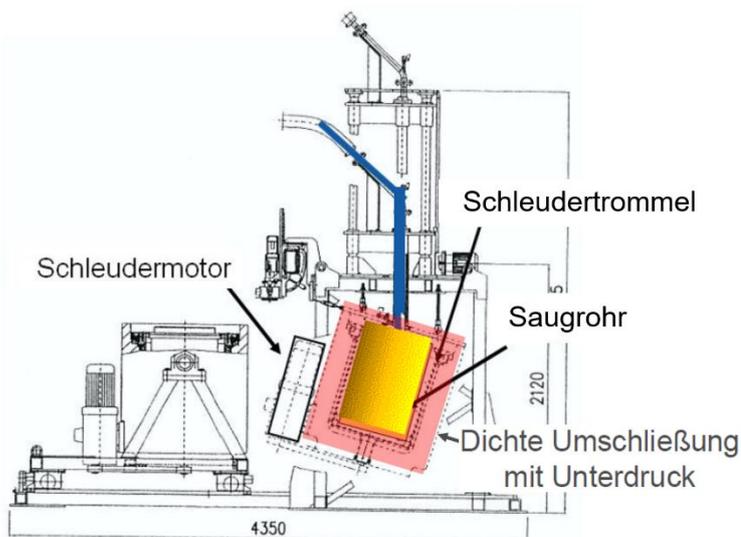
Für die Konditionierung der Altabfälle, hier speziell Filterkonzentrate, wurde vom Betreiber (Vattenfall) des Kernkraftwerks Brunsbüttel der Auftrag zur Entwicklung einer Umsaugeeinrichtung mit dem Ziel der Herstellung endlagerfähiger Container in Auftrag gegeben. Ende des Jahres 2004 wurde die Pulverharzumsauganlage (PUSA), mit welcher trockene Pulverharze und andere trockene und rieselfähige Filterhilfsmittel verarbeitet werden können, am Kernkraftwerk Brunsbüttel in Betrieb genommen.

Für die Nachkonditionierung der Abfallfässer wurden die mit Filterkonzentraten befüllten Fässer mit neu konzipierten Handhabungswerkzeugen (Umfanggreifer, Unterschwenkgreifer) aus den Kavernen in ein Überfass gestellt, über die Schleusenkammer aus der Einhausung ausgeschleust und in die PUSA gestellt (siehe Abb. 4.5).



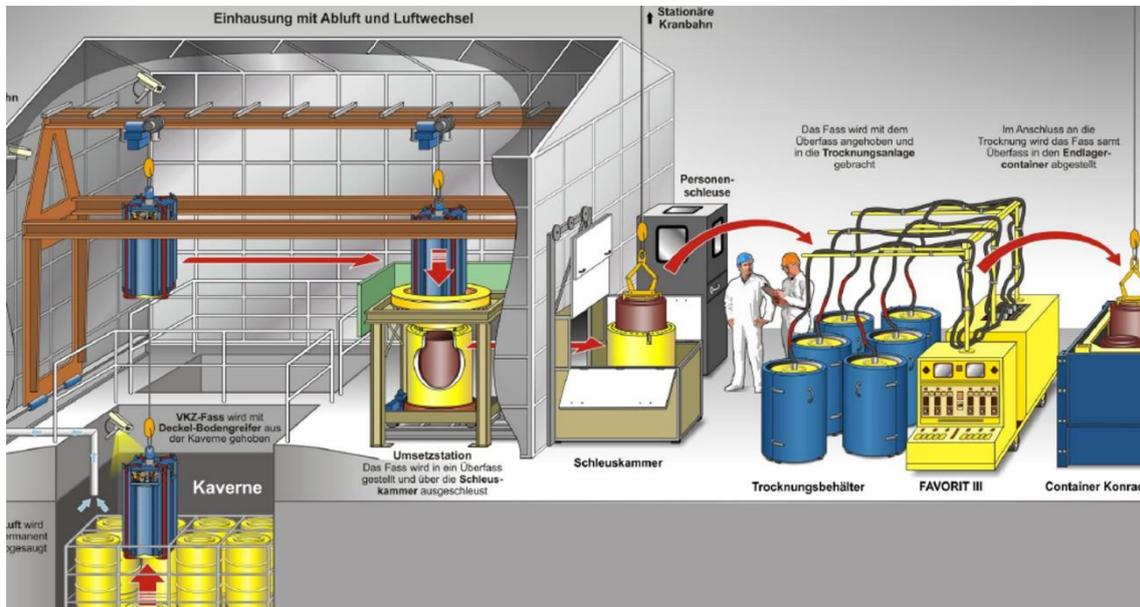
**Abb. 4.5** Nachkonditionierung von Fässern mit Filterharzen /VAT 16/

Der Fassinhalt wird durch den angelegten Unterdruck in einen Abfallcontainer umgesaugt. Der zu befüllende Container wird ebenfalls evakuiert. Die Befüllung des Containers wird in mehreren Teilschritten durchgeführt, und zur Volumenreduzierung wird der Gusscontainer beim Umfüllvorgang ständig gerüttelt. Die Rüttleinheiten werden vor der Befüllung in den Container eingestellt und verbleiben anschließend darin /GNS 21b/. Bei der Nachkonditionierung der Filterharze am Kernkraftwerk Brunsbüttel wird der Inhalt von durchschnittlich 18 Fässern (200 l) in einen Konrad Typ VI-Gusscontainer umgefüllt. Mit Stand 7. Dezember 2016 wurden vier Gusscontainer (GC VI-15) mit Filterkonzentrat befüllt.



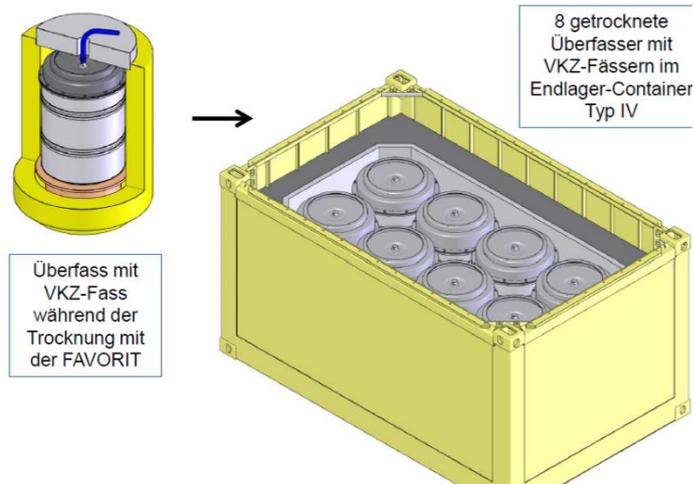
**Abb. 4.6** Schematische Darstellung PUSA /VAT 16/

Für die Nachkonditionierung der Abfallfässer wurden die mit VDK befüllten Fässer mit neu konzipierten Handhabungswerkzeugen (Umfanggreifer, Unterschwenkgreifer) aus den Kavernen in ein Überfass gestellt. Die geborgenen Fässer werden aus der Einhausung ausgeschleust und mit dem Überfass in die Trocknungsbehälter gestellt (siehe Abb. 4.7).



**Abb. 4.7** Nachkonditionierung von Fässern mit VDK /VAT 16/

Die Fässer mit VDK werden mit der GNS-Konzentrat-Trocknungsanlage FAVORIT nachgetrocknet und Fass samt Überfass in den Endlagercontainer gestellt (siehe Abb. 4.8). Mit Stand 7. Dezember 2016 wurden neun Konrad-Container (KC Typ IV) mit je acht nachgetrockneten VDK-Fässern beladen und eingelagert.



**Abb. 4.8** Fass mit VDK in Überfass und Abschirmtopf und Konrad-Container mit acht nachkonditionierten Fässern /VAT 16/

#### 4.1.3 Altabfälle bei der Landessammelstelle Niedersachsen

Die Landessammelstelle Niedersachsen (LNI) verfolgt aktuell ein Projekt zur Nachqualifizierung und Nachkonditionierung von Altabfällen /HAT 20/. Ziel des Projekts ist die Herstellung längerfristig zwischenlagerbarer und endlagerfähiger Abfallgebinde.

Radioaktive Abfälle sind seit 1960 an eine Landessammelstelle (LSSt) abzuliefern<sup>8</sup>, demnach sind die Abfälle bzw. Abfallprodukte mehrere Jahrzehnte alt. Abfälle, die an eine LSSt abgeliefert werden, unterscheiden sich deutlich von den großen Abfallströmen der Betriebs- und Stilllegungsabfälle der Kernkraftwerke. An LSSt sind radioaktive Abfälle aus der medizinischen Anwendung, der Forschung und Industrie abzugeben. Deshalb zeichnen sich die Abfälle der LSSt v. a. durch ihre Unterschiedlichkeit und das breite Nuklidspektrum aus.

Im Rahmen des Projekts sollen 1.484 Fässer aus der ehemaligen LSSt Steyerberg<sup>9</sup>, die in den 1980er und 1990er Jahren anfielen, nachqualifiziert und -konditioniert werden. Die weit zurückliegende Konditionierung, die nach anderen als den aktuellen EBK erfolgte, entspricht u. U. nicht dem heutigen Stand von Wissenschaft und Technik. Des Weiteren werden aktuell eine umfangreiche Dokumentation zur Herstellung sowie die stofflichen und radiologischen Eigenschaften der Abfälle gefordert. Durch die lange

<sup>8</sup> Früher § 42 Abs. 1 StrSchV, jetzt § 4 Abs. 4 AtEV

<sup>9</sup> Die Zwischenlagerung der konditionierten Abfälle des Landes Niedersachsen erfolgt in einem Lager in Leese, welches von der Firma Eckert & Ziegler Nuclitec GmbH (EZN) betrieben wird /LNI 20/.

Langerzeit und weit zurückliegende Konditionierung können zudem Alterungseffekte (Korrosion, Druckaufbau) am Fass auftreten.

In Abb. 4.9 sind zwei Beispiele geöffneter Abfallfässern des Altbestands der LNI gezeigt. Darin sind unverarbeitete Abfälle wie u. a. Papier und Zellstoff (siehe Abb. 4.9 links) und Mischabfall und Thoriumsulfat, die mit einer Betonschicht bedeckt wurden, enthalten (siehe Abb. 4.9 rechts).



**Abb. 4.9** Zerlegtes Fass mit Papier und Zellstoff (links) und geöffnetes Fass mit Aufbruch der Betondecke gefüllt mit Mischabfall und Thoriumsulfat (rechts) /HAT 20/

Die Nachqualifizierung wird von der GNS in Jülich durchgeführt. Dafür werden die radioaktiven Abfälle in kleinen Chargen von Steyerberg nach Jülich gebracht. Der erste Abtransport von Fässern fand im Herbst 2020 statt /LNI 20/.

Die nachträgliche stoffliche Beschreibung der Altabfälle nach den aktuellen Anforderungen gestaltet sich schwierig. Es existieren keine oder kaum Erfahrungswerte für vergleichbare Abfälle. Die Stofflisten zur Abfallbeschreibung der BGE sind noch unvollständig. Die LNI plant, die nachkonditionierten und -qualifizierten Abfälle in Konrad-Containern zwischenzulagern, da diese besser für eine längerfristige Lagerung geeignet sind /HAT 20/.

## 4.2 Bewertung

Die dargestellten Beispiele zur Nachkonditionierung und -qualifizierung verdeutlichen die unterschiedlichen Ausgangslagen der Akteure. Bei Kernkraftwerken fallen große einheitliche Abfallströme an. Diese können lokal am Kernkraftwerks-Standort nachkonditioniert werden. Bei der KTE und LNI lagern Abfälle, deren Eigenschaften stark variieren, gleichbedeutend mit einem deutlich höheren Aufwand bei der Nachkonditionierung und -qualifizierung dieser Altabfälle. Bei der LNI erfolgt die Nachkonditionierung/-qualifizierung am Standort des beauftragten externen Dienstleisters, d. h. die radioaktiven Abfälle müssen dorthin transportiert werden.

Neben der Nachqualifizierung von Altabfällen wird, insbesondere bei 200-I-Fässern, von Alterungsschäden berichtet. Dies betrifft u. a. bestimmte Abfallgruppen wie Harze und VDK bzw. zementierte und betonierte Abfälle mit längeren Zwischenlagerzeiten. Dies deckt sich mit den Ergebnissen zur Umfrage der ESK zu Befunden an zwischengelagerten radioaktiven Abfällen /ESK 18/. Eine länderspezifische, bzw. anlagenspezifische Auswertung der ESK-Umfrage ist in /GRS 19/ gegeben.

Auftretende Alterungseffekte bei 200-I-Fässern sind wenig überraschend, da diese nicht für eine solch lange Lagerzeit konzipiert sind. Die Strategie des Kernkraftwerks Brunsbüttel und der LNI, die Fässer bzw. die Abfälle aus den Fässern in Konrad-Container zu überführen und zu konditionieren, dient dem Ziel, endlagerfähige Abfallgebilde herzustellen und sorgt ggf. für eine sichere längerfristige Zwischenlagerbarkeit der Abfallgebilde.

## **5            Behandlungsmöglichkeiten von Abfällen mit hohen Salzfrachten**

### **5.1           Sachstand zu den Abfällen der Schachtanlage Asse II**

Die Schachtanlage Asse II ein ehemaliges Kali- und Steinsalzbergwerk im Landkreis Wolfenbüttel in Niedersachsen ist seit 1. Januar 2009 ein Endlager nach Atomrecht und wird seit April 2017 von der BGE betrieben. Bis zum Jahr 1978 wurden 46.300 m<sup>3</sup> in 125.787 Fässern in die Schachtanlage verbracht /TIE 16/. Im Jahr 2013 wurde mit der Novellierung des Atomgesetzes bzw. „Lex Asse“ beschlossen, dass die Schachtanlage Asse II unverzüglich stillgelegt und zuvor die radioaktiven Abfälle zurückgeholt werden sollen /BGE 20a/. Als Randbedingungen zu beachten sind die mangelnde Stabilität der Grube, der Lösungszutritt über das Deckgebirge und dass die Einlagerung nicht mit dem Ziel einer möglichen Rückholung erfolgte.

Ein großer Teil der in der Schachtanlage Asse II eingelagerten Abfälle wurde von den ehemaligen Forschungseinrichtungen in Karlsruhe und Jülich abgeliefert (siehe Tab. 5.1). Die Abfälle der ehemaligen Forschungseinrichtungen machen in etwa 94 % der Gesamtaktivität der Abfälle und 59 % der Abfallgebinde aus. Ein Viertel der Abfälle wurde von Kernkraftwerken und etwa ein Sechstel von verschiedenen anderen Einrichtungen, wie bspw. Transnuklear Hanau, GNS Essen, NUKEM (heute: RD Hanau) und Amersham-Buchler /HEL 10/ abgeliefert.

**Tab. 5.1** Prozentuale Aufteilung der in der Schachtanlage Asse II eingelagerten Abfallgebände hinsichtlich Abfallherkunft, Anzahl und Aktivität /BMU 18/

<b>Ablieferer</b>	<b>Anteil Abfallgebände [%]</b>	<b>Anteil Gesamtaktivität [%]</b>
Kernforschungszentrum Karlsruhe (KfK), (heute Teile davon KTE)	49	93
Kernforschungsanlage Jülich (KFA), (heute Teile davon JEN)	10	1
Kernkraftwerke	25	2
Übrige Abliefernde	16	4
<b>Summe</b>	<b>100</b>	<b>100</b>

Der größte Teil sind schwach-radioaktive Abfälle mit 124.494 Fässern die mit Filtern, Harzen, Metallen, Schutt und Mischabfällen befüllt sind. Die mittelradioaktiven Abfälle mit 1.293 Fässern sind hauptsächlich Metalle und Filter/Filterhilfsmittel (siehe Tab. 5.2).

**Tab. 5.2** Prozentuale Aufteilung der Abfälle auf die unterschiedlichen Abfallarten nach LAW und MAW /BMU 18/

<b>Abfallart</b>	<b>LAW-Gebinde [%]</b>	<b>MAW-Gebinde [%]</b>
Filter, Filterhilfsmittel, Schlämme, Verdampferkonzentrate, Harze, usw.	30	35
Metallschrott (Eisen, Blech, Strukturteile, Rohre, usw.)	20	65
Bauschutt, Kies, Bodenbelag, usw.	10	-
Mischabfall, Papier, Folien, Overalls, Überschuhe, Putzlappen, Holz, Glas, usw.	40	-
<b>Summe</b>	<b>100</b>	<b>100</b>

Der genaue Zustand sowie die genaue Zusammensetzung des Inventars in den Kammern sind nicht bekannt. Grundlegende Informationen können aus der Dokumentation der Einlagerung, aus Probennahmen aus den Kammern und aus Untersuchungen an den durch Wassereintritt entstandenen Laugestellen abgeleitet werden.

Die in der Schachtanlage Asse II vorliegenden Abfälle sind in 100 bis 400 l fassende Behälter eingelagert. In 45 % dieser Fässer wurde das Inventar mit einer Zementmatrix und in weiteren 5 % mit Bitumen oder als Borate fixiert /BGE 21/.

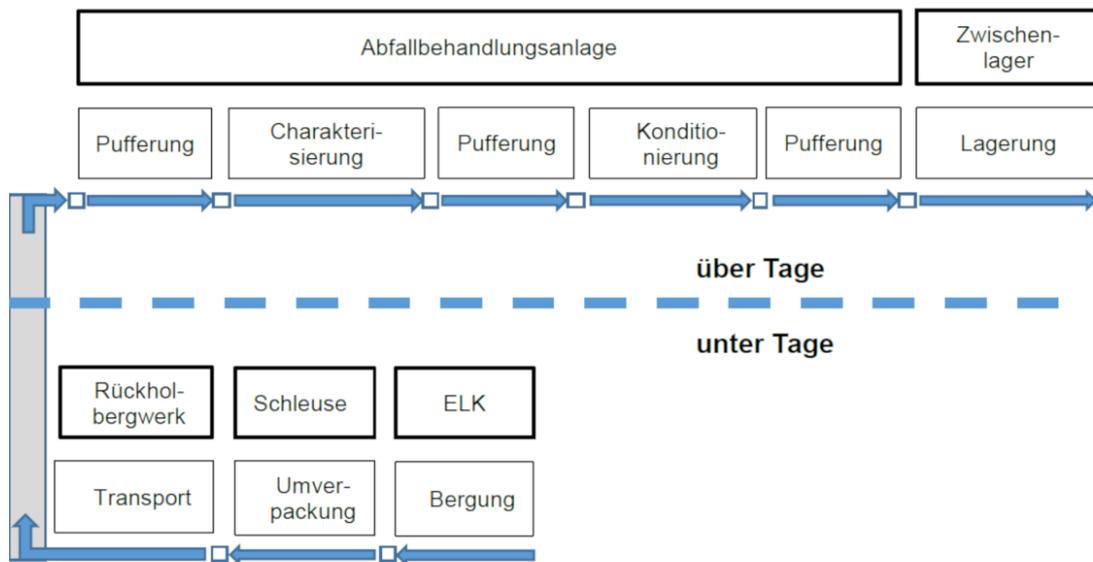
Nicht alle eingelagerten Gebinde sind noch intakt, weshalb die verwendeten Techniken die Handhabung loser Bestandteile ermöglichen müssen. Auch für den weiteren Transport und die Bearbeitung müssen defekte oder zerstörte Gebinde berücksichtigt werden, weshalb auch eine unbeabsichtigte Zerstörung durch die Rückholung selbst akzeptiert wird, aber zu vermeiden ist.

Es wird zudem damit gerechnet, dass Abfälle, die aus zerstörten Gebinden ausgetreten sind, das umgebende Salzgrus kontaminiert haben, so dass sich Schätzungen zufolge das rückzuziehende Abfallvolumen von 47.000 m<sup>3</sup> auf ca. 100.000 m<sup>3</sup> erhöhen wird /BGE 20a/.

Im Jahr 2008 konnten durch Messungen an der Laugestelle vor der Kammer zwölf Abschätzungen zu den im Salz der Kammer enthaltenen Radionukliden durchgeführt werden. Hierbei sind die Ergebnisse Aktivitäten von  $4,2 \cdot 10^5$  Bq/kg für Cs-137, 4,8 Bq/kg für Co-60, 1,0 Bq/kg für Sr-90 und 8 Bq/kg für Tc-99. Die Alphanuklide sowie H-3, C-14, Cl-36 und I-129 wurden nicht gemessen. Besonders die zuletzt genannten leicht flüchtigen Radionuklide stellen für die Konditionierung des Salzes durch Trocknung ein wesentliches Problem dar /ESK 10/.

## **5.2 Rückholkonzepte**

Die Rückholung der Abfälle wird durch die BGE durchgeführt. Ein Konzept hierfür wurde in /BGE 20a/ dargelegt. Der Ablauf der Schritte von Bergung über Transport, Charakterisierung, Konditionierung und Zwischenlagerung sowie die Einteilung der Arbeiten Unter- bzw. Übertage sind in Abb. 5.1 dargestellt.



**Abb. 5.1** Schematische Darstellung des Rückholprozesses /BGE 20b/

Die Bedingungen, die in den Kammern anzutreffen sind, unterscheiden sich teils stark, weshalb jeweils angepasste Rückholkonzepte angewendet werden müssen. Es wird eine Bergung von oben mittels Krananlagen bevorzugt, da somit eine Verbreitung von Kontaminationen sowie neue Kontaminierung von Flurfahrzeugen und anderem Bergungsequipment minimiert wird. Je nach Zustand der Kammer kann jedoch auch eine bodengebundene Bergung erforderlich sein. Die Einlagerungskammern (ELK) werden mit Schliessensystemen verschlossen, und die Bergung findet in einem gesicherten Arbeitsbereich statt, der nur zu Interventionszwecken mit Schutzausrüstung betreten werden darf /BGE 20a/.

Die Gebinde bzw. der Abfall wird vor dem Ausschleusen in eine Umverpackung verladen, um für den innerbetrieblichen Transport Freisetzungen zu vermeiden. Diese Umverpackungen sind nicht gasdicht und enthalten einen Aerosolfilter. Für den Transport an die Oberfläche wird mit dem SchachtASSE 5 ein neuer Schacht bereitgestellt, der im Jahr 2028 in Betrieb genommen werden soll. Die Behälter sollen nach Übertage transportiert und in einem Pufferlager zwischengelagert werden. Die Pufferlagerung ermöglicht die kontinuierliche Durchführung der Bergung. Die Rückholung aus dem Bergwerk soll so schnell wie möglich erfolgen und nicht durch Verzögerungen in den nachfolgenden Schritten unterbrochen werden müssen /BGE 20a/.

### 5.3 Behandlungsmöglichkeiten

Die rückgeholten Abfälle müssen bis zur Einlagerung in ein noch zu errichtendes Endlager zwischengelagert werden. Hierzu ist eine Charakterisierung zur Bestimmung der stofflichen und radiologischen Eigenschaften notwendig, um die folgenden Behandlungsschritte und Verpackung festlegen zu können sowie die Einordnung als kernbrennstoffhaltiger oder sonstiger radioaktiver Stoff tätigen zu können. Für die Charakterisierung sollen zerstörungsfreie Messverfahren verwendet werden, die eine Zuordnung der Abfälle zu Quelldaten bzw. Abfallströmen möglich machen und so genauere Erkenntnisse über ihre stoffliche Zusammensetzung erlangen. In Betracht gezogene Messverfahren sind Gammaskopie, Tomografie und Neutronenaktivierungsanalyse. Sollte eine zerstörungsfreie Prüfung nicht möglich sein, muss eine Probennahme stattfinden. In der darauffolgenden Konditionierung werden die Umverpackungen mit erprobten Verfahren wie Trocknung, Kompaktierung und Verfestigung behandelt /BGE 20a/. Die Charakterisierung, Konditionierung und Pufferlagerung der geborgenen Abfälle soll nahe am Standort der Schachtanlage erfolgen. Für die Zwischenlagerung strebt die BGE ebenfalls ein Lager nahe der Schachtanlage Asse II an /BÜH 20/. Diese Entscheidung muss noch zwischen allen Interessengruppen abgestimmt werden und soll von einem Expertengremium, welches aus Vertreterinnen und Vertretern der Asse-2-Begleitgruppe (A2B) und des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz (BMUV) besteht, kritisch hinterfragt werden /NIE 20/.

Der Umgang mit kontaminiertem Salzgrus wird laut der Arbeitsgruppe – Optionen Rückholung (AGO) und Lex Asse abhängig vom Kontaminationsgrad bestimmt. Die Lex Asse sieht vor, dass Salzgrus mit Kontamination bis zum Zehnfachen der Freigrenze nach Anlage III Tabelle 1 Spalte 3 StrISchV (2001) zur Verfüllung der geräumten ELK verwendet wird. Für stärker kontaminierten Salzgrus müssen neue Verfahren entwickelt werden bzw. bereits bestehende genutzt werden. Durch Wasch- und Rekristallisationsverfahren könnten die Kontaminationen in der Mutterlauge aufkonzentriert werden. Im Salzbergwerk Asse wurden hauptsächlich Natrium- und Kaliumsalze abgebaut, welche in Wasser löslich sind und ein Abtrennen von nicht löslichen Kontaminationen erlauben. Ein Großteil des verbleibenden Salzes könnte zur Auffüllung der ELK verwendet werden, und das Abfallvolumen ließe sich derart deutlich reduzieren /BÜH 20/.

Die Konditionierung von Filterhilfsmitteln, die aus beschädigten Gebinden ausgetreten sein können, wird durch die enthaltenen wasserlöslichen Radionuklide erschwert, welche mit dem umgebenden Salz in Lösung vorliegen können. Eine Verfestigung der Hilfsmittel ist nur nach Abtrennung des Salzes und Trocknung möglich und vergrößert das

Abfallvolumen. Ionenaustauscherharze, welche mit Natrium gesättigt sind, können bei Kontakt mit dem Salzgrus ebenfalls die ursprünglich zurückgehaltenen Radionuklide und chemotoxischen Stoffe durch Auslaugung abgeben. Die Trennung von Salz und Radionukliden ist in diesem Fall nicht zielführend und die Trocknung führt zur Freisetzung leicht flüchtiger Stoffe. Die Verfestigung ist nur mit großer Verdünnung möglich, was wiederum zu einem bis zu fünffach erhöhten Abfallvolumen führen kann. Die gleichen Probleme der Trennung von Salz und Abfall sind bei Verdampferkonzentraten zu erwarten. Die Abtrennung alter Abfallbehälter und ihre Trocknung und Kompaktierung wird größtenteils möglich sein /ESK 10/.

Zum Umgang mit kontaminiertem Salzgrus kann auch die vom Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) beauftragte Bewertung für die Rückholung von radioaktiven Abfällen mit hohen Salzfrachten aus dem ERAM herangezogen werden. Diese sieht die Verarbeitung von kontaminiertem Salzgrus in Salzbeton vor. Dieser kann z. B. für die Herstellung des Betoninnenbehälters von Konrad V-Containern verwendet werden, so dass bereits bei der Herstellung der Container kontaminiertes Salz verbraucht wird. Hierbei müssen hochwertige Innenbeschichtungen der Container dem durch das Salz zu erhöhenden Korrosionsschutz Sorge tragen /TÜV 06/.

#### **5.4 Internationaler Vergleich**

International gibt es keinen Standort, der mit der Situation in der Schachanlage Asse II und den vorliegenden Abfallströmen, besonders in Bezug auf das anfallende kontaminierte Salz, vergleichbar ist. Um weitere Herangehensweisen an den Umgang mit radioaktiven Abfällen mit hohen Salzfrachten zu betrachten, kann jedoch die Savannah River Site in den USA herangezogen werden. Hier liegen in 51 Tanks flüssige radioaktive Abfälle aus der Produktion von Kernwaffen vor. Der Hauptteil der Abfälle liegt in Form kontaminierter Salze vor, welche ursprungsbedingt eine deutlich andere Zusammensetzung als die in der Schachanlage Asse II vorliegenden kontaminierten Salze aufweisen. Bei Untersuchungen der festen Ablagerungen in einem Tank wurden Natriumsulfat und Natriumcarbonat als Hauptbestandteile ermittelt /NAV 11/, /HOB 94/. Es werden die hochaktiven Nuklide durch Lösung, Filtrierung und Zentrifugen bzw. im Falle von Cäsium durch Lösungsmittelextraktion abgetrennt. Der verbleibende Salzabfall weist niedrige Aktivität auf, liegt jedoch in großen Volumen vor. Insgesamt müssen 125.000 m<sup>3</sup> flüssige Salzabfälle verarbeitet werden /MAS 20/. Zur Lagerung werden die flüssigen Abfälle in eine feste zementbasierte Form überführt, indem sie mit einer Mischung aus Zement, Schlacke und Flugasche vermischt werden /DOE 17/, /DOE 20/.

## 6 Zusammenfassung

Anfallende radioaktive Rohabfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung werden mit dem Ziel einer sicheren Zwischen- und Endlagerfähigkeit verarbeitet und konditioniert. In vorliegenden Forschungsvorhaben wurde der Stand von Wissenschaft und Technik der Verarbeitungs- und Konditionierungstechniken radioaktiver Abfälle adressiert und die Themen Nachkonditionierung und -qualifizierung von Altabfällen und die Behandlung von Abfällen mit hohen Salzkonzentrationen wurden behandelt.

Auf die Behandlung und Konditionierung von Abfallströmen mit hohen Aktivitäten, wie Ionenaustauscherharze und Verdampferkonzentrate, wurde vertieft eingegangen. Für beide Abfallarten wurden verschiedene Konditionierungsszenarien gewählt und ausführliche Inventar- und Dosisleistungsanalysen durchgeführt. Die Ergebnisse verdeutlichen, dass eine Volumenreduktion zu einer höheren Dichte und zu einer höheren ODL führt. Eine höhere Dichte verstärkt gleichzeitig die selbstabschirmende Wirkung. Für eine Abklingzeit von ein und zehn Jahren liegen wenige Ortsdosisleistungswerte über den Grenzwerten der EBK. Bei einer Anordnung von zwei nebeneinanderstehenden Behältern, befüllt mit Ionenaustauscherharzen bzw. Verdampferkonzentraten, ist die ODL, wie erwartet, höher als beim Einzelbehälter.

Die dargestellten internationalen Forschungsergebnisse zu Behandlungsmethoden von radioaktiven Abfällen umfassen Methoden zur Volumenreduzierung, wie Verbrennen/Pyrolysieren, Plasmaschmelzen und elektrochemische Totaloxidation. Für Abfälle, die nicht mittels dem Standardverfahren Zementierung verfestigt werden können, wurden auch Methoden zur Fixierung mit Geopolymeren und das heiße isostatische Verpressen beleuchtet. Die Methoden sind zumeist noch in der Erprobungsphase, und nur wenige wurden bisher bei größeren Abfallkampagnen eingesetzt. Einige Methoden sind nur für eine kleine Gruppe spezieller radioaktiver Abfälle konzipiert. Ferner wurden die Anforderungen an die Behälterbeladung und an Betonierkampagnen von Konrad-Containern dargestellt und anhand von Beispielen beschrieben. Die aufgeführten Beispiele verdeutlichen den hohen Zeitaufwand solcher Kampagnen.

Abfallgebinde, die Alterungsschäden aufweisen, bzw. Abfälle, die nicht nach den EBK konditioniert worden sind, müssen nachkonditioniert bzw. -qualifiziert werden. Die gewählten Fallbeispiele der Kernkraftwerke, der KTE und der LNI zeigen, dass es einen sehr großen Bestand an Altabfällen gibt und, dass sehr alte Fässer/Gebinde mit bestimmten Abfällen häufiger Alterungsschäden aufweisen und nachkonditioniert werden

müssen. Von den Abfalleigentümern wird bei einer Nachkonditionierung das Ziel verfolgt, die Abfälle aus Fässern in Konrad-Container zu überführen, um länger zwischenlagerbare sowie endlagerfähige Abfallgebinde herzustellen.

Für Abfälle mit hohen Salzfrachten, insbesondere kontaminiertes Salzgrus, wie es z. B. aus der Schachanlage Asse II zu erwarten ist, bestehen je nach Kontaminationsgrad verschiedene Verarbeitungs- oder Behandlungsoptionen. Das Salzgrus könnte z. B. für die Verfüllung von Einlagerungskammern oder in Form von Salzbeton genutzt werden. Wenn Filterhilfsmittel, Ionenaustauscherharze oder Verdampferkonzentrate aus beschädigten Gebinden ausgetreten und mit dem umgebenden Salz in Kontakt getreten sind, so verkomplizieren sich die möglichen Behandlungsoptionen und gehen oft mit einer Vergrößerung des Abfallvolumens einher. International gibt es derzeit keinen Standort, der mit der Situation in der Schachanlage Asse II und den vorliegenden Abfallströmen, besonders in Bezug auf das anfallende kontaminierte Salz, vergleichbar ist.

Durch die erneute Verbesserung der Abschätzung der C-14 Aktivität aus allen aktivierten Strukturen aus Kernkraftwerken wird die Erkenntnis gewonnen, dass diese im Einklang mit dem zugehörigen Grenzwert für die Gesamtaktivität von C-14 im Endlager Konrad stehen. Im nächsten Schritt müsste eine Zusammenstellung der C-14-Aktivität aus anderen Quellen, insbesondere Forschung und Industrie sowie aus aktivierten Strukturen des AVR und THTR (sofern diese für die Endlagerung im Endlager Konrad vorgesehen bzw. zulässig sind) erfolgen, um die Einhaltung des Grenzwerts für die Gesamtaktivität von C-14 durch alle radioaktiven Abfälle einschätzen zu können.

Die Analysen zum Bestand an alpha-haltigen Abfällen der Abfallverursacher in Deutschland und das hieraus abgeleitete Gesamtaufkommen für das Endlager Konrad zeigen im Ergebnis, dass der in den Endlagerbedingungen vorgegebene Zielwert um Größenordnungen unterschritten werden wird. Dies ist auch gültig vor dem Hintergrund, dass für die Abfalldeklaration oft sehr konservative Hochrechnungsfaktoren zu den Schlüsselnucliden Co-60/Cs-137 angewendet werden.

## Literaturverzeichnis

- /AND 14/ ANDRA - Agence nationale pour la gestion des dechets radioactifs: rapport 2014 du groupe de travail "dechets actuellement sans filiere de gestion", document technique. 2014.
- /BFS 15/ Brennecke, P.: Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle, Endlagerungsbedingungen, Stand: Dezember 2014, Endlager Konrad. Bundesamt für Strahlenschutz (BfS), SE-IB-29/08-REV-2: Salzgitter, Februar 2015.
- /BGE 20a/ Bundesgesellschaft für Endlagerung mbH (BGE): Plan zur Rückholung der radioaktiven Abfälle aus der Schachanlage Asse II, Rückholplan. 2020.
- /BGE 20b/ BGE: Schematische Darstellung des Rückholprozesses. Erreichbar unter <https://www.bge.de/de/asse/themenschwerpunkte/themenschwerpunkt-rueckholung/der-rueckholungsprozess-im-ueberblick/>, abgerufen am 3. August 2020.
- /BGE 21/ BGE: Fragen und Antworten zum Asse-Rückholplan. Erreichbar unter <https://www.bge.de/de/asse/themenschwerpunkte/themenschwerpunkt-rueckholung/fragen-und-antworten-rueckholplan-asse>, abgerufen am 3. August 2020.
- /BMU 20/ Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Nukleare Sicherheit (BMU): Verzeichnis radioaktiver Abfälle (Bestand zum 31. Dezember 2019 und Prognose).
- /BMU 18/ Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB), [www.bmub.bund.de](http://www.bmub.bund.de): Gemeinsames Übereinkommen über die Sicherheit der Behandlung abgebrannter Brennelemente und über die Sicherheit der Behandlung radioaktiver Abfälle. 357 S., 2018.

- /BRA 12/ Braet, J., Charpentier, D., Centner, B., Vanderperre, S.: Radioactive Spent Ion-Exchange Resin Conditioning by the Hot Supercompaction Process at Tihange NPP - Early Experience - 12200. In: Waste Management Symposia (Hrsg.): Waste Management Symposia 2012. Waste Management, Phoenix, 28. Februar - 1. März 2012, ISBN 978-0-9836186-1-4, WM Symposia: Phoenix, 2012.
- /BÜH 20/ Bühler, M., Stacheder, M., Brückner, U., Gellermann, R., Hoffmann, F., Kreuzsch, J., Krupp, R.: Stellungnahme zum Bericht: Plan zur Rückholung der radioaktiven Abfälle aus der Schachtanlage Asse II - Rückholplan. Bundesgesellschaft für Endlagerung (BGE), Arbeitsgruppe Optionen - Rückholung (AGO). 6. August 2020.
- /CEN 09/ Centner, B., Charpentier, D.: Spent Resin Hot Compaction at Tihange NPP, ICON17-75696. In: ASME (Hrsg.): 17th International Conference on Nuclear Engineering. Bruges, 12. - 16. Juni 2009: New York, 2009.
- /CYC 20/ Larsson, A.: Incineration of Radioactive Waste at the Cyclife Facility in Sweden (cyclife), Technical concept and generated Waste Products. In: TÜV NORD (Hrsg.): 10. Symposium zur Endlagerung radioaktiver Abfälle, G2-Gebinde: Wo geht es hin? Hannover, 5. - 6. Februar 2020, Februar 2020.
- /CYC 21/ Larsson, A., Nilsson, F.: Enhanced Sustainability in Treatment of Contaminated Metals for Clearance and Recycling. Hrsg.: Waste Management Symposia, Cyclife, 2021.
- /DEC 20/ Deckers, J.: Test for Reconditioning RA Waste with Simulated Bitumen and Concrete in a 1,2MW Plasma Test Facility. 2020.
- /DOE 17/ Savannah River Remediation LLC: Radioactive Liquid Waste Facilities, Fact Sheet. Erreichbar unter <https://www.energy.gov/sites/prod/files/2019/02/f59/Radioactive%20Liquid%20Waste%20Facilities.pdf>, Stand von 2017.
- /DOE 20/ Savannah River Site, U.S. Department of Energy (DOE): Saltstone Disposal Units. Erreichbar unter [https://www.srs.gov/general/news/factsheets/srr\\_saltstone.pdf](https://www.srs.gov/general/news/factsheets/srr_saltstone.pdf), Stand von 2020.

- /ESK 10/ Saas, A., ESK: Bewertung des Kenntnisstandes zum Stoffinventar der Kammer 12/750 der Schachtanlage Asse und Hinweise zur Verbesserung der Aussagequalität, Arbeitsbericht für die ESK-SSK- Ad-hoc-Arbeitsgruppe ASSE. 2010.
- /ESK 13/ Entsorgungskommission (ESK): ESK-Leitlinien für die Zwischenlagerung radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung. revidierte Fassung vom 10. Juni 2013.
- /ESK 18/ Entsorgungskommission (ESK): Umsetzung der ESK-Leitlinien für die Zwischenlagerung radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung, STELLUNGNAHME der Entsorgungskommission. 7. September 2018.
- /EWB 18/ Grunau, H.: Verwendung von Beton bei der endlagergerechten Konditionierung von radioaktiven Stoffen in Stahlblechbehältern, Eisenwerke Bassum mbH (EWB). In: TÜV NORD (Hrsg.): 09. Symposium zur Endlagerung radioaktiver Abfälle, Vorbereitung auf Konrad - Wege zum G2-Gebinde. Hannover, 18. - 19. April 2018, 2018.
- /EWB 20/ Grunau, H., Rüchel, H.: Konrad - Container auf Grundlage des Prüfzeugnisses richtig beladen, Eisenwerke Bassum mbH (EWB). In: TÜV NORD (Hrsg.): 10. Symposium zur Endlagerung radioaktiver Abfälle, G2-Gebinde: Wo geht es hin? Hannover, 5. - 6. Februar 2020, Februar 2020.
- /FEH 14/ Fehrmann, H.: Hot Resin Supercompaction - The Development through the Years. atw-International Journal for Nuclear Power, Bd. 59, Nr. 4, S. 228–234, 2014.
- /FEH 13/ Fehrmann, H., Aign, J.: Westinghouse Modular Grinding Process - Enhancement of Volume Reduction for Hot Resin Supercompaction - 13491. In: Waste Management Symposia (Hrsg.): Waste Management Symposia 2013. WM Symposia, Ohoenix, Arizona, 24. - 28. Februar 2013, ISBN 978-0-9836186-2-1, WM Symposia: Phoenix, 2013.

- /FRA 19/ Friedrich, H., Viehweger, K.: Verfahrensoptimierung und Maßstabsvergrößerung bei der elektrochemischen Totaloxidation flüssiger organischer C-14-Abfälle zur Überführung in C-14-CaCO<sub>3</sub>. Fraunhofer-IKTS: Dresden, 2019.
- /GNS 19/ Gesellschaft für Nuklear Service mbH (GNS): MOSAIK Produktinfo. Hrsg.: GNS: Essen, Januar 2019.
- /GNS 20/ Berthold, M.: Betonverguss bei der Herstellung von Abfallgebinden, Gesellschaft für Nuklear Service mbH (GNS). 2020.
- /GNS 21a/ Gesellschaft für Nuklear Service mbH (GNS): Nachentwässerungsanlage NEWA. Hrsg.: GNS: Essen, erreichbar unter <https://www.gns.de/binary.ashx/language=de/~fo/23993/nachentwaesserungsanlage-newa.pdf>, abgerufen am 22. März 2021.
- /GNS 21b/ Gesellschaft für Nuklear Service mbH (GNS): Pulverharz-Umsaug-Anlage PUSA - GNS. Stand vom 21. Dezember 2021, erreichbar unter <https://www.gns.de/language=de/23991/pulverharz-umsaug-anlage-pusa>, abgerufen am 21. Dezember 2021.
- /GRE 21/ Green, A.: Comparison between Cement and Geopolymers: Progress of Waste Encapsulation using Geopolymers in the UK. Hrsg.: Waste Management Symposia, 2021.
- /GRS 15/ Wehrfritz, M., Keßen, S., Rowold, F., Moser, F.-E., Peters, E., Kilger, R., Wolf, R., Gärtner, S., Möller, T., Thierfeldt, S.: Weiterentwicklung und Vertiefung des Fachwissens über Mengen, Spezifikation und Konditionierungsverfahren radioaktiver Abfälle - Pre-disposal Waste Management, Teil A: Nationaler und internationaler Stand von Wissenschaft und Technik. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-A-3807: Garching, Dezember 2015.

- /GRS 19/ Keßen, S., Archinger, M., Bartos, B., Behler, M., Hummelsheim, K., Kaufholz, P., Krüger, J., Peters, E., Alter, U.: Weiterentwicklung und Vertiefung des Fachwissens über Mengen, Spezifikationen und Konditionierungsverfahren radioaktiver Abfälle – Predisposal Waste Management (PDWM). Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-A-3949, 2019.
- /GUN 97/ Gunten, A., Trummer, L., Weber, C.: Behandlung von Harzen und Schlämmen im Kernkraftwerk Mühleberg. 1997.
- /HAT 20/ Hattermann, H.: Nachqualifizierung von Altabfällen aus Landessammelstellen (NMU). In: TÜV NORD (Hrsg.): 10. Symposium zur Endlagerung radioaktiver Abfälle, G2-Gebinde: Wo geht es hin? Hannover, 5. - 6. Februar 2020, Februar 2020.
- /HAV 14/ Havenith, A. W.: Stoffliche Charakterisierung radioaktiver Abfallprodukte durch ein Multi-Element-Analyseverfahren basierend auf der instrumentellen Neutronen-Aktivierungs-Analyse– MEDINA –. 2014.
- /HEG 19/ Heger, S., Binz, B., Himmerkus, F., Leber, A.: Untersuchungen zur Einhaltung des Schutzziels der Abfallproduktgruppe 04. Hrsg.: Kontec GmbH, KTE, WTI Wissenschaftlich-Technische Ingenieurberatung GmbH, 2019.
- /HEL 10/ Helmholtz Zentrum München: AG Asse Inventar - Abschlussbericht, Helmholtz Zentrum München Deutsches Forschungszentrum für Gesundheit und Umwelt Projektgruppe Jülich. 2010.
- /HOB 94/ Hobbs, D. T., Coleman, C. J.: Characterization of High-Level Waste Saltcake Stored at the Savannah River Site (U), Proceedings of the Symposium at the 208th National American Chemical Society Meeting. Washington, D.C, 20. August 1994.
- /HOG 21/ Hoog, I., Runyon, N., Himmerkus, F.: Deklaration und Endlagerdokumentation von Altabfällen am Beispiel von Verdampferkonzentraten der KTE. Kontec, 2021.

- /HOL 20/ Holmes, R., Abboud, A., Biggrigg, B., Gregg, D. J., Deura, M., Townsend, W., Fleming, P., Triani, G.: Current Status of the Synroc Waste Treatment Facility. 2020.
- /IAE 81/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Management of Spent Ion-Exchange Resins from Nuclear Power Plants, IAEA-TECDOC-238. Hrsg.: International Atomic Energy Agency, IAEA TECDOC Series, Nr. 238, 78 S.: Wien, 1981.
- /IAE 85/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Technical Report Series No. 254, Treatment of Spent Ion-Exchange Resins for Storage and Disposal. Hrsg.: IAEA - International Atomic Energy Agency, 120 S.: Wien, 1985.
- /IAE 89/ Efremenkoy, V. M.: Radioactive waste management at nuclear power plants. Hrsg.: IAEA BULLETIN, 1989.
- /IAE 02/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Application of ion exchange processes for the treatment of radioactive waste and management of spent ion exchangers. Internationale Atomenergie-Organisation, Technical reports series / International Atomic Energy Agency, Bd. 408, Nr. 408, 115 S., International Atomic Energy Agency: Vienna, 2002.
- /IAE 18/ International Atomic Energy Agency (IAEA): IAEA Safety Glossary, Terminology Used in Nuclear Safety and Radiation Protection. 2018.
- /ICR 10/ Petoussi-Henss, N., Bolch, W. E., Eckerman, K. F., Endo, A., Hertel, N., Hunt, J., Pelliccioni, M., Schlattl, H., Zankl, M.: Conversion Coefficients for Radiological Protection, ICRP Publication 116. Stand vom 7. März 2023, erreichbar unter <https://www.icrp.org/publication.asp?id=icrp%20publication%20116>, abgerufen am 7. März 2023.
- /JEN 19/ Niedree, B., Rosenzweig, S., Steinhardt, T.: Mobile Gasprobenahme und Gasanalytik von Abfallfässern und Konradgebinden. JEN, 2019.
- /KRE 19/ Kreft, S., Breunig, K., Steinhardt, T., Caspary, G., Printz, R.: Nachqualifizierung von Altabfällen bei der JEN mbH. Hrsg.: Kontec GmbH, JEN mbH, 2019.

- /KTE 15/ Melzer, J., Bayiha, P.-S., Himmerkus, F.: Zulassung von Altbehältern - Die Verlorene Betonabschirmung (VBA). Hrsg.: Kontec, 2015.
- /KTE 18/ Himmerkus, F.: Herausforderung bei der Entsorgung von Abfällen, Kerntechnische Entsorgung Karlsruhe GmbH (KTE). In: TÜV NORD (Hrsg.): 09. Symposium zur Endlagerung radioaktiver Abfälle, Vorbereitung auf Konrad - Wege zum G2-Gebinde. Hannover, 18. - 19. April 2018, 2018.
- /KTE 21a/ Himmerkus, F., Wagner, C.: Gebinde-Requalifikation von vergossenen VBAs bei der KTE. Kontec, 2021.
- /KTE 21b/ Schepperle, J.: Herleitung von Stoffvektoren für radioaktive Mischabfälle der KTE. Hrsg.: Kontec, 2021.
- /KTE 21c/ Himmerkus, F.: Qualifizierungs- und Überwachungskonzept der KTE. Hrsg.: 9. TÜV-Symposium Lagerung und Transport radioaktiver Stoffe, 2021.
- /KTE 22/ Himmerkus, F.: Auf die Mischung kommt es an, gezielte Endlagerdokumentation für bestmöglichen Gebindemix für Konrad, Kerntechnische Entsorgung Karlsruhe GmbH (KTE). In: TÜV NORD (Hrsg.): 11. Symposium zur Endlagerung radioaktiver Abfälle, Von losen Enden und digitalen Verknüpfungen. Hannover, 16. - 17. März 2022, 2022.
- /LAM 20/ Lambertin, D., Planel, B., Brunier, B., Davy, C.: 3D Structure of Oil Droplets in Hardened Geopolymer Emulsion (GEOIL). 2020.
- /LAN 17/ Los Alamos National Security, LLC: MCNP User's Manual, Code Version 6.2. Oktober 2017.
- /LAN 19/ LANXESS: Ion Exchange Resins for the Power Industry, XLewatit®. Erreichbar unter [https://lanxess.com/-/media/Project/Lanxess/Corporate-Internet/Products-and-Solutions/Brands/Lewatit/Service-Center-Product-Literature/Brochure\\_Power\\_Industry\\_EN\\_web.pdf](https://lanxess.com/-/media/Project/Lanxess/Corporate-Internet/Products-and-Solutions/Brands/Lewatit/Service-Center-Product-Literature/Brochure_Power_Industry_EN_web.pdf), abgerufen 2022.
- /LIN 19/ Lin, W. H., Huang, C. P., Chen, C.-H., Blazsekova, M., Prazska, M.: The performance tests of the solidified ion exchange bead resins using SIAL® matrix. 2019.

- /LNI 20/ Niedersächsisches Ministerium für Umwelt, Energie und Klimaschutz: Stand vom 17. März 2023, erreichbar unter [https://www.umwelt.niedersachsen.de/startseite/themen/atomaufsicht\\_amp\\_strahlenschutz/schwachradioaktiver\\_abfall/landessammelstelle/landessammelstelle-fur-radioaktive-abfalle-183946.html](https://www.umwelt.niedersachsen.de/startseite/themen/atomaufsicht_amp_strahlenschutz/schwachradioaktiver_abfall/landessammelstelle/landessammelstelle-fur-radioaktive-abfalle-183946.html), 2020.
- /MAS 20/ Mast, S.: Overview of Upcoming Process Improvement Efforts at the Saltstone Facilities at the Savannah River Site. Hrsg.: Waste Management Conference: Phoenix, Arizona, USA, 2020.
- /NAV 11/ Navarrete, M., Müller, G., Espinosa, G., Golzarri, J., Camacho, M., Zúñiga, M. A.: Radioactivity in Marine Salts and Sediments. ISBN 9533075104, INTECH Open Access Publisher, 2011.
- /NEE 97/ Neeb, K. H.: The Radiochemistry of Nuclear Power Plants with Light Water Reactors. ISBN 3-11-013242-7, De Gruyter: Berlin, 1997.
- /NIE 20/ Niedersächsisches Ministerium für Umwelt, Energie, Bauen und Klimaschutz: Beleuchtungsprozess Asse-Zwischenlager: Experten nehmen Arbeit auf. Erreichbar unter <https://www.umwelt.niedersachsen.de/startseite/aktuelles/pressemitteilungen/beleuchtungsprozess-asse-zwischenlager-experten-nehmen-arbeit-auf-200981.html>, Stand von 2020.
- /NUK 07/ NUKEM Technologies GmbH (Hrsg.): Concentration of Evaporator Concentrates. 2007.
- /PFE 98/ Pfenning, G., Klewe-Nebenius, H., Seelmann-Eggebert, W.: Karlsruher Nuklidkarte. Institut für Instrumentelle Analytik, Forschungszentrum Karlsruhe GmbH: Karlsruhe, Dezember 1998.
- /PNN 11/ McConn, R. J., Gesh, J. J., Pagh, P. T., Rucker, R. A., Williams, R. G.: Compendium of Material Composition Data for Radiation Transport Modeling. Hrsg.: Pacific Northwest National Laboratory, 2011.
- /PRA 19/ Prazska, M., Stuilier, P., Blazsekova, M., Mrazova, H., Rezbarik, J., Tatransky, P.: Operational experience from application of advanced decommissioning methods on Slovak nuclear installations. 2019.

- /PRE 19/ Weiß, G.: Um-/Nachkonditionierung der Alt- und Betriebsabfälle bei PreussenElektra. Hrsg.: Kontec GmbH, 2019.
- /ROT 07/ Roth, A., Centner, B., Lemmens, A.: Radioactive Spent Resin Conditioning by the Hot Super-Compaction Process, ICEM07-7310. In: ASME: 11 th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management. Bruges, Belgium, 2. - 6. September 2007, S. 687–693: New York, 2007.
- /SON 19/ Songa, J. S., Junga, M. Y., Lima, S. H., Kimb, K. H.: Compaction of Powdered Radioactive Wastes. 2019.
- /STE 22/ Steyer, S.: Herausforderungen bei der Nachqualifizierung von ERAM-Abfällen (TÜV Süd). In: TÜV NORD (Hrsg.): 11. Symposium zur Endlagerung radioaktiver Abfälle, Von losen Enden und digitalen Verknüpfungen. Hannover, 16. - 17. März 2022, 2022.
- /SZA 00/ Szalo, A., Zatkulak, M.: Borate compound content reduction in liquid radioactive waste from nuclear power plants with vver reactor. International conference nuclear energy in central europe, 2000.
- /THU 20/ Thunholm, R., Shipley, J., Holmes, R., Gregg, D. J., Bigrigg, B., Fleming, P.: Technology Maturation of Hot Isostatic Pressing for Nuclear Waste Treatment. 2020.
- /TIE 16/ Tietze, J.: Asse: Herausforderungen und Einflussfaktoren. Hrsg.: TÜV-Symposium, BfS, 2016.
- /TÜV 06/ TÜV NORD SysTec GmbH & Co. KG: Planfeststellungsverfahren zur Stilllegung des Endlagers für radioaktive Abfälle Morsleben, Bewertung der Rückholbarkeit der im ERAM eingelagerten radioaktiven Abfälle. Hrsg.: Bundesamt für Strahlenschutz (BfS), 2006.
- /TÜV 14/ Filss, M.: Präsentation, TÜV SÜD, IBC London, 1. Dezember 2014.
- /VAL 14/ Valdovinos, V., Monroy-Guzman, F., Bustos, E.: Treatment Methods for Radioactive Wastes and Its Electrochemical Applications. Environmental Risk Assessment of Soil Contamination, DOI 10.5772/57445, 2014.

- /VAT 16/ Dahl, B.: Räumung der Kavernen KKB – Nachqualifizierung von Abfällen, TÜV-Symposium. Vattenfall Europe Nuclear Energy GmbH, 2016.
- /VGB 11/ „Arbeitskreis Abfallmanagement“ des VGB PowerTech e.V.: Entsorgung von Kernkraftwerken. 2011.
- /WER 17/ Werner, C. J.: MCNP6 User's Manual, Version 6.2, Manual Rev.0. Los Alamos National Laboratory, LA-UR-17-29981, Oktober 2017.
- /WER 18/ Werner, C. J.: MCNP Version 6.2, Release Notes, LA-UR-18-20808. Hrsg.: Los Alamos National Laboratory (LANL), LANL, 41 S.: Los Alamos, NM, USA, 2018.
- /WES 15/ Westinghouse Electric Company: Hot Resin Super Compaction, DDR-0106. Erreichbar unter <https://www.westinghousenuclear.com/Portals/0/D&D/Waste-Management/DDR-0106%20Hot%20Resin%20Supercompaction.pdf>, abgerufen am 22. März 2021.
- /WNA 16/ World Nuclear Association (WNA): Treatment and Conditioning of Nuclear Wastes. Stand vom 30. September 2016, erreichbar unter <http://www.world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/nuclear-wastes/treatment-and-conditioning-of-nuclear-wastes.aspx>, 2016.

## Abbildungsverzeichnis

Abb. 2.1	Schritte und Bestandteile des Abfallmanagements vor der Endlagerung /GRS 15/.....	3
Abb. 2.2	Ausschnitt aus Tabelle 3 im Anhang II der EBK zu den Aktivitätsgrenzwerten für Leitnuklide aus der Störfallanalyse (in Bq pro Abfallgebinde) /BFS 15/.....	5
Abb. 2.3	Ausschnitte aus Tabelle 5 im Anhang II der EBK zu den Aktivitätswerten für Leitnuklide die aus der Analyse zur thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins resultieren (in Bq pro Abfallgebinde) /BFS 15/.....	5
Abb. 2.4	Verfahrensschema der KTE /KTE 18/.....	7
Abb. 2.5	Schematische Darstellung des Primärkreislaufs von DWR, in überarbeiteter Form aus /LAN 19/ übernommen.....	9
Abb. 2.6	Schematische Darstellung des Kühlkreislaufs von SWR, in überarbeiteter Form aus /LAN 19/ übernommen.....	9
Abb. 2.7	Typische Betriebsabfälle aus einem 1300 MW DWR /VGB 11/.....	11
Abb. 2.8	Angaben zu Dekontaminationsfaktoren von downstream CVCS Mischbettfiltern eines Herstellers (LANXESS) von Ionenaustauscherharzen, die für die Kühlkreisläufe in Kernkraftwerken eingesetzt werden /LAN 19/ .....	12
Abb. 2.9	Anlage zur Trocknung von Ionenaustauscherharzen der Firma Westinghouse /WES 15/.....	14
Abb. 2.10	Vereinfachte Darstellung des Prozessablaufs des HRSC-Prozesses der Firma Westinghouse /FEH 14/.....	15
Abb. 2.11	Durch Rückfedern kompaktierter Kugelharze hervorgerufener Integritätsverlust eines HRSC-Presslings /ROT 07/ .....	15
Abb. 2.12	Behandlung des Abwasser durch Verdampfung der flüchtigen Bestandteile /IAE 89/ .....	18
Abb. 2.13	Konditionierungsvorgang von Verdampferkonzentraten in der Zementierung II bei der KTE /HOG 21/.....	20
Abb. 2.14	Prozessschema der ROBE-Anlage aus /NUK 07/ .....	21
Abb. 2.15	Anlage zur Trocknung von VDK /TÜV 14/.....	21
Abb. 2.16	Schematische Darstellung der VBA Typ I, II und III /KTE 15/.....	22

Abb. 2.17	Armierungskorb und vergossene VBA /KTE 15/ .....	22
Abb. 2.18	Verwendung von Positionierhilfen (links), Beladung mit 26 x 200-I-Fässern (mittig), Beladung mit Fässern, Presslingen und PU-Blöcken (rechts) ohne Resthohlraumverfüllung (ABK I, nsf) /EWB 20/ .....	27
Abb. 2.19	Beladung in der ABK I sf und ABK II sf (verschiedene Beispiele in /EWB 20/) .....	28
Abb. 2.20	Einmessen der Aufstellflächen (links), Keilschuhe als einstellbare Aufstellflächen /GNS 20/ .....	29
Abb. 2.21	Niederhaltung der Fässer (links), Vergussbeton mit Abziehlehre (mittig) und Einbringen Abschlussbeton (rechts) /GNS 20/ .....	29
Abb. 2.22	Betonierung KC III mit 5 x 400-I-Fässer /GNS 20/ .....	30
Abb. 2.23	Schematischer Aufbau der Container (links) und Bilder der Arbeiten (rechts) /GNS 20/ .....	30
Abb. 2.24	Schaltbrett für die Verbindung (links), Knochenmarkskanüle zum Durchstechen der Deckeldichtung (rechts) /JEN 19/ .....	31
Abb. 2.25	Prototypen zur Gasentnahme über den Sintermetallfilter: Probennahme mittig (links), Probennahme über großen Druckentlastungsfilter (mittig) und Probennahme unter Winkelring /JEN 19/ .....	31
Abb. 3.1	Programmabfolge zur Bestimmung der ODL ausgehend von der Materialzusammensetzung, Geometrie und Quelltermberechnung bis zum Teilchentransport mit MCNP .....	33
Abb. 3.2	Aufbau eines MOSAIK®-Behälters /GNS 19/ .....	36
Abb. 3.3	Schematische Darstellung des Behältermodells (MCNP 6.2) .....	37
Abb. 3.4	(A) ODL der verschieden konditionierten Ionenaustauscherharze nach einem Jahr Abklinglagerung in radialer Richtung zur Behälteroberfläche, (B) Vergleich der ODL in radialer und axialer Richtung .....	39
Abb. 3.5	ODL für einen MOSAIK®-Behälter beladen mit entwässerten (A), getrockneten (B) und hochdruckverpressten (c) Ionenaustauscherharzen für verschiedene Abklingzeiten und Abstände zur Behälteroberfläche in radialer Richtung .....	41
Abb. 3.6	Schematische Darstellung der Behälter- und Messanordnung mit Blickrichtung entlang der z-Achse .....	42

Abb. 3.7	MCNP-Modell einer VBA in die ein 200-l-Fass, befüllt mit VDK, eingebracht ist .....	48
Abb. 3.8	Vergleich ODL getrockneter VDK in axialer und radialer Richtung (nach einem Jahr Abklinglagerung).....	49
Abb. 3.9	ODL (radial) getrockneter und zementierter VDK in verschiedenen Behältern (nach einem Jahr Abklinglagerung) .....	49
Abb. 3.10	ODL (radial) für getrocknete VDK im Fass, in einer NBA und SBA für verschiedene Abklingzeiten (1, 10, 50 Jahre) und der ODL-Grenzwert in 100 cm Abstand.....	50
Abb. 3.11	Schematische Darstellung der Fälle 1, 2 sowie des Referenzfalles mit Blickrichtung in z-Achse .....	54
Abb. 3.12	ODL um die VBA-Behälter für Fall 1 mit Blickrichtung entlang z-Achse .....	55
Abb. 3.13	ODL um die VBA-Behälter für Fall 2 mit Blickrichtung entlang z-Achse .....	56
Abb. 3.14	ODL um den VBA-Behälter für den Referenzfall mit Blickrichtung entlang z-Achse .....	56
Abb. 3.15	Heatmap der relativen Dosis abhängig von der Anfangsintensität .....	58
Abb. 4.1	Zeitlicher Überblick zu Anfall von radioaktiven Abfällen durch Betrieb und Rückbau der nuklearen Anlagen in Karlsruhe /KTE 22/ .....	61
Abb. 4.2	Herstellungsjahr des Zwischenlagerbestandes bei der KTE /KTE 18/ (links) und Anteile der verschiedenen Stoffströme der KTE-Abfälle /KTE 21b/ (rechts).....	61
Abb. 4.3	Bei der KTE neu konzipierte Schutzfässer /KTE 21c/ .....	63
Abb. 4.4	Schadenskategorien und die Verteilung von den in Kaverne 1 bis 4 inspizierten Fässer /VAT 16/.....	65
Abb. 4.5	Nachkonditionierung von Fässern mit Filterharzen /VAT 16/.....	66
Abb. 4.6	Schematische Darstellung PUSA /VAT 16/.....	66
Abb. 4.7	Nachkonditionierung von Fässern mit VDK /VAT 16/ .....	67
Abb. 4.8	Fass mit VDK in Überfass und Abschirmtopf und Konrad-Container mit acht nachkonditionierten Fässern /VAT 16/.....	68

Abb. 4.9	Zerlegtes Fass mit Papier und Zellstoff (links) und geöffnetes Fass mit Aufbruch der Betondecke gefüllt mit Mischabfall und Thoriumsulfat (rechts) /HAT 20/ .....	69
Abb. 5.1	Schematische Darstellung des Rückholprozesses /BGE 20b/.....	74

## Tabellenverzeichnis

Tab. 2.1	Jährlich anfallende Menge an ausgedienten Ionenaustauscherharzen in Kernkraftwerken /TÜV 14/ .....	11
Tab. 2.2	Übersicht zu den Nukliden in Ionenaustauscherharzen (Siemens-KWU-DWR) /NEE 97/ und den berechneten Gamma-Beiträgen .....	17
Tab. 2.3	Zusammensetzung der Verdampferkonzentrate in g/l aus /SZA 00/ .....	18
Tab. 2.4	Jährlich anfallende Menge an Verdampferkonzentraten in Kernkraftwerken /TÜV 14/.....	19
Tab. 2.5	Aktivität der Verdampferkonzentrate in Bq/m <sup>3</sup> aus /SZA 00/ .....	19
Tab. 2.6	Eigenschaften der Betonsorten.....	28
Tab. 3.1	Aktivitätskonzentrationen für Ionenaustauscherharze /IAE 85/.....	35
Tab. 3.2	Berücksichtigte Szenarien für konditionierte Ionenaustauscherharze.....	36
Tab. 3.3	Abmessungen für einen MOSAIK <sup>®</sup> -Behälter vom Typ M II-15 EI /BFS 15/, /GNS 19/ .....	36
Tab. 3.4	ODL in radialer und axialer Richtung eines MOSAIK <sup>®</sup> -Behälters beladen mit entwässerten, getrockneten und kompaktierten Ionenaustauscherharzen für verschiedene Abklingzeiten und Abstände (Werte in $\mu\text{Sv/h}$ ).....	40
Tab. 3.5	Vergleich der Ergebnisse der Ortsdosisleistung in $\mu\text{Sv/h}$ für getrocknete und kompaktierte Ionenaustauscherharze im MOSAIK <sup>®</sup> -Behälter .....	43
Tab. 3.6	Berücksichtigte Verarbeitungs- und Verpackungsszenarien .....	45
Tab. 3.7	Aktivität und Dichte für getrocknete und zementierte VDK .....	45
Tab. 3.8	Zusammensetzung der Betonmatrix für betonierete Abfälle in Massen-% /HAV 14/ .....	46
Tab. 3.9	Mit SCALE berechnete Gamma-Intensität in Photonen/s.....	46
Tab. 3.10	Daten zur VBA und zum 200-l-Fass /KTE 15/ .....	47
Tab. 3.11	ODL in radialer und axialer Richtung von getrockneten Verdampferkonzentraten mit und ohne VBA als Abschirmung für verschiedene Abklingzeiten und Abstände (Werte in $\mu\text{Sv/h}$ ) .....	51

Tab. 3.12	ODL-Berechnung in radialer und axialer Richtung von zementierten Verdampferkonzentraten mit und ohne VBA als Abschirmung für verschiedene Abklingzeiten und Abstände (Werte in $\mu\text{Sv/h}$ ) .....	52
Tab. 3.13	Szenarien für die 2er-VBA-Anordnung.....	53
Tab. 3.14	ODL für die Punkte A, B und C in $\mu\text{Sv/h}$ .....	55
Tab. 3.15	Vergleich der Ergebnisse der ODL in $\mu\text{Sv/h}$ für getrocknete Verdampferkonzentraten im Fass ohne Abschirmung mit den Grenzwerten .....	57
Tab. 4.1	Altabfall im Zwischenlagerbestand der KTE /KTE 18/ .....	62

## **Abkürzungsverzeichnis**

A2B	Asse-2-Begleitgruppe
ABK	Abfallbehälterklasse
AGO	Arbeitsgruppe – Optionen Rückholung
ANDRA	Agence Nationale pour la Gestion des Déchets Radioactifs
APG	Abfallproduktgruppe
AVEC	Anlage zur Verfüllung von Endlager-Containern
AVR	Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor GmbH Jülich
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
BGE	Bundesgesellschaft für Endlagerung
DWR	Druckwasserreaktor
EBK	Endlagerungsbedingungen Konrad
ELK	Einlagerungskammer
ENDF	Evaluated Nuclear Data File
ERAM	Endlager für radioaktive Abfälle Morsleben
ESK	Entsorgungskommission
EWB	Eisenwerk Bassum m. b. H.
EZN	Firma Eckert & Ziegler Nuclitec GmbH
GC	Gaschromatograph
GNS	Gesellschaft für Nuklearservice mbH
HRSC	Hot Resin Super Compaction
HWD	Halbwertsdicke
IAEO	Internationale Atomenergie-Organisation
ITU	Europäisches Institut für Transurane
JEF	Joint Evaluated Fission
JEN mbH	Jülicher Entsorgungsgesellschaft für Nuklearanlagen mbH
KC	Konrad-Container
KFA	Kernforschungsanlage Jülich

KfK	Kernforschungszentrum Karlsruhe
KIT	Karlsruher Institut für Technologie
KTE	Kerntechnischen Entsorgung Karlsruhe GmbH
LNI	Landessammelstelle Niedersachsen
LSSt	Landessammelstelle
MOWA	Mobile Waste-Konditionierungsanlage
NBA	Betonabschirmungen aus Normalbeton
nsf	nicht störfallfest
ODL	Ortsdosisleistung
PMF	Plasma Melting Facility
PU	Polyurethan
PUSA	Pulverharzumsauganlage
SBA	Betonabschirmungen aus Schwerbeton (SBA)
sf	störfallfest
SWR	Siedewasserreaktor
THTR	Thorium-Hoch-Temperatur-Reaktor
VBA	Verlorene Betonabschirmungen
VDK	Verdampferkonzentrate
VRF	Volumenreduktionsfaktor
WAK	Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe

**A      Verbesserung der Abschätzung der Aktivität von C-14 in  
Abfällen für das Endlager Konrad**



# **Verbesserung der Abschätzung der Aktivität von C-14 in Abfällen für das Endlager Konrad**

BS-Projekt-Nr. 1808-08

Vorhaben Nr. 4720E03366 – 855366 – UA 3561

erstellt im Auftrag der  
Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit gGmbH (GRS)  
Schwertnergasse 1, Köln

durch die

Brenk Systemplanung GmbH (BS)  
Heider-Hof-Weg 23  
52080 Aachen

06. Dezember 2021

## **Anmerkung:**

Dieser Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers (BS) wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers (GRS) übereinstimmen.



Dieser Bericht wurde von folgenden Bearbeitern erstellt:

- *Dr. Yevgeniy Shapiro*
- *Dr. Stefan Thierfeldt*
- *Dr. Olaf Nitzsche*
- *Dr. Ralf Kunz*

Es wird versichert, dass dieser Bericht nach bestem Wissen und Gewissen, unparteiisch und ohne Ergebnisweisung angefertigt worden ist.

### **ERSTELLUNG, PRÜFUNG UND FREIGABE**

erstellt	geprüft	freigegeben
Unterschrift Projektleiter	Unterschrift Geschäftsbereichsleiter	Unterschrift Geschäftsführung



**Inhaltsverzeichnis:**

Seite:

<b>1.</b>	<b>Einleitung .....</b>	<b>1</b>
1.1	Hintergrund.....	1
1.2	Zielstellung .....	1
1.3	Gliederung des Berichts.....	2
<b>2.</b>	<b>Verwendung von Stickstoff bei der Stahlherstellung und Bildungsmechanismus für C-14.....</b>	<b>2</b>
2.1	Stickstoffeintrag bei Verfahren zur Stahlherstellung.....	2
2.2	Die Rolle des Stickstoffs bei der Stahlherstellung.....	3
2.3	Anforderungen an Stahl für RDB und RDB-Einbauten.....	4
2.4	Bildungsreaktion für C-14 im Stahl durch Aktivierung.....	5
2.5	Grenzwert für C-14 für das Endlager Konrad.....	6
<b>3.</b>	<b>Zusammenfassung der Ergebnisse des Vorgängerberichts [BS 18] .....</b>	<b>6</b>
3.1	Ältere Abschätzungen der Gesamtaktivität von C-14.....	6
3.2	Verbesserte Abschätzung in [ATW 15].....	7
3.3	Ergebnis aus [BS 18] .....	7
<b>4.</b>	<b>Übersicht der vollständigen Aktivierungsberechnungen für deutsche Kernkraftwerke.....</b>	<b>9</b>
4.1	Aufbau von RDB und RDB-Einbauten.....	9
4.1.1	Druckwasserreaktor .....	9
4.1.2	Siedewasserreaktor .....	11
4.2	Beschreibung der Aktivierungsrechnungen .....	13
4.2.1	Übersicht.....	13
4.2.2	Neutronentransport .....	14
4.2.3	Modellierung der Geometrie.....	15
4.2.4	Materialdaten .....	15
4.2.5	Leistungshistorie .....	15
4.2.6	Berechnung der Neutronenflussdichte mit MCNP .....	16
4.2.7	Berechnung der Aktivierung.....	17
4.3	Gesamtergebnis für die C-14-Aktivitäten .....	17
<b>5.</b>	<b>Extrapolation der Ergebnisse auf die aktivierten Strukturen in allen deutschen Kernkraftwerken .....</b>	<b>18</b>
5.1	Vergleich der Aktivierungsrechnungen mit den berechneten Aktivitäten aus 2018 .....	18
5.2	Extrapolation auf die Gesamtaktivität von C-14 in aktivierten Strukturen im Endlager Konrad .....	19
5.3	Diskussion der Unsicherheiten .....	20
<b>6.</b>	<b>Literaturverzeichnis .....</b>	<b>21</b>



<b><u>Abbildungsverzeichnis:</u></b>		Seite:
Abbildung 2.1:	Verlauf des Wirkungsquerschnitts als Funktion der Neutronenenergie [JAN 17] .....	5
Abbildung 4.1:	Darstellung typischer RDB-Einbauten (DWR) [KTA 15] .....	10
Abbildung 4.2:	Darstellung typischer RDB-E (SWR) [KTA 15] .....	12

<b><u>Tabellenverzeichnis:</u></b>		Seite:
Tabelle 3.1:	Berechnete C-14 Aktivität in RDB und RDB-E der Leistungs- und Prototypreaktoren in Deutschland (aus [BS 18]) .....	8
Tabelle 4.1:	Funktionen der RDB-E beim DWR [KTA 15] .....	11
Tabelle 4.2:	Funktionen der RDB-E beim SWR [KTA 15] .....	13
Tabelle 4.3:	Übersicht der Ergebnisse der Aktivierungsrechnungen [BS 21] .....	18
Tabelle 5.1:	Vergleich der C-14-Gesamtaktivitäten für RDB und RDB-E .....	19

## **1. EINLEITUNG**

### **1.1 Hintergrund**

Für das Endlager Konrad existieren verschiedene Aktivitätsgrenzwerte für einzelne Radionuklide, die in den Endlagerungsbedingungen [BFS 14] niedergelegt sind. Sie basieren auf verschiedenen Analysen der Auswirkung der ins Endlager verbrachten radioaktiv Abfälle auf das Wirtsgestein, auf Analysen möglicher Störfälle während der Betriebsphase sowie auf Analysen der langfristigen Sicherheit der im Endlager gelagerten Radionuklide.

Von besonderer Bedeutung sind dabei solche Aktivitätsgrenzwerte, die durch reale oder scheinbare Aktivität im Zuge der Einlagerung von radioaktiven Abfällen tangiert werden könnten. Das Adjektiv „scheinbar“ kennzeichnet hierbei Aktivität, die nicht real vorliegt, sondern die sich nur rechnerisch aufgrund von nicht ausreichend genauen Analyse- bzw. Berechnungsverfahren ergibt. Wird die scheinbare Aktivität in gleicher Weise wie die real vorhandene Aktivität bei der Einlagerung von Abfällen in das Endlager Konrad bilanziert, so besteht die Gefahr, dass die zugehörigen Aktivitätsgrenzwerte vorzeitig erreicht werden, so dass weitere noch vorhandene Abfälle nicht mehr in das Endlager verbracht werden können, obwohl die real vorhandene Aktivitätsmenge die Grenzwerte bei weitem noch nicht ausschöpft. Diese Gefahr besteht aus gegenwärtiger Sicht unter anderem für das Radionuklid C-14.

### **1.2 Zielstellung**

Eine wesentliche Quelle für C-14 im Endlager stellt aktivierter Stahl dar, wie er insbesondere aus dem RDB und den RDB-E anfällt. C-14 wird hierbei im Wesentlichen durch eine (n,p)-Reaktion aus N-14 und im geringeren Umfang durch eine (n, $\gamma$ )-Reaktion aus C-13 gebildet. Angesichts der Tatsache, dass erhebliche Unterschiede zwischen dem maximal zulässigen Stickstoffgehalt gemäß Spezifikationen für Stähle und dem tatsächlichen Stickstoffgehalt bestehen, ist die Abschätzung der gesamten Aktivität von C-14 mit Unsicherheiten behaftet. Aufgrund seiner radioaktiven Eigenschaften ist die direkte Bestimmung der C-14-Aktivität im Stahl außer durch Probenentnahme und aufwendige Analysen nicht möglich.

Der vorliegende Bericht baut auf dem Bericht „Abschätzung der Aktivität von C-14 aus der Aktivierung von Stählen der Reaktordruckbehälter (RDB) und RDB-Einbauten (RDB-E) deutscher Leistungs- und Prototypreaktoren“ [BS 18] auf, in welchem untersucht wurde, ob der Grenzwert der Endlagerungsbedingungen [BFS 14] für C-14 durch aktivierte Stähle aus dem Rückbau der Kernkraftwerke in Deutschland, die als radioaktive Abfälle entsorgt werden müssen, tangiert bzw. überschritten werden könnte. Hierzu erfolgte eine detaillierte Analyse der Aktivierung verschiedener Stahlsorten, die im RDB und den RDB-E verwendet werden, wobei der Neutronenfluss an verschiedenen Stellen innerhalb des RDB zugrunde gelegt wurde. Im Bericht [BS 18] musste notwendigerweise der seinerzeit verfügbare Stand der Aktivierungsrechnungen angewendet werden.

Mittlerweile liegen hochauflösende dreidimensionale Aktivierungsrechnungen für erheblich mehr deutsche Kernkraftwerke vor, die zum Zeitpunkt des Berichts [BS 18] noch nicht verfügbar waren. Diese Rechnungen verfügen darüber hinaus über eine deutlich bessere räumliche Auflösung des Neutronenflusses und erlauben somit eine wesentlich genauere Vorhersage der tatsächlichen Aktivi-

tät in den genannten metallischen Strukturen. Außerdem schließen sie die umliegenden Betonstrukturen mit ein. Hierdurch ergeben sich für diejenigen Kernkraftwerke, für die diese Aktivierungsrechnungen durchgeführt wurden, unmittelbar anwendbare Daten und für die übrigen Kernkraftwerke, während diese Daten auf die übrigen Kernkraftwerke vergleichbaren Typs übertragen werden können. Einige der durchgeführten hochauflösenden Aktivierungsrechnungen sind mittlerweile auch durch Entnahme und Analyse von Proben aus dem RDB und den Einbauten verifiziert worden. Hierdurch erfolgt eine deutlich realistischere Abschätzung der tatsächlich zu erwartenden Aktivitätsmenge an C-14 aus dem Abbau aktivierter Teile (Stahl) der Kernkraftwerke in Deutschland, was Steigerung der Genauigkeit der Prognose über die Ausschöpfung des Grenzwerts für die Gesamaktivität von C-14 im Endlager Konrad beiträgt.

### **1.3 Gliederung des Berichts**

In Abschnitt 2 wird einleitend auf die Bedeutung von Stickstoff bei der Stahlherstellung und auf die hieraus resultierenden Bildungsmechanismen für C 14 bei Neutronenbestrahlung eingegangen. Abschnitt 3 fasst die wesentlichen Ergebnisse des Vorgängervorhabens [BS 18] zusammen, insbesondere hinsichtlich der ersten, vor ca. 10 Jahren vorgelegten Abschätzungen der im Endlager Konrad einzulagernden Gesamaktivität von C-14 und der in den Folgejahren durchgeführten Verfeinerungen dieser Abschätzungen. In Abschnitt 4 wird eine Übersicht der mittlerweile vorliegenden vollständigen Aktivierungsberechnungen für deutsche Kernkraftwerke gegeben. Abschnitt 5 führt auf dieser Basis einen Vergleich der Ergebnisse mit vorherigen Abschätzungen durch und extrapoliert hieraus ein Aktivitätswert von C-14 für alle aktivierten Strukturen in Kernkraftwerken, die als radioaktive Abfälle entsorgt werden müssen. Abschnitt 6 fasst die verwendete Literatur zusammen.

## **2. VERWENDUNG VON STICKSTOFF BEI DER STAHLHERSTELLUNG UND BILDUNGSMECHANISMUS FÜR C-14**

### **2.1 Stickstoffeintrag bei Verfahren zur Stahlherstellung**

Bei der Stahlherstellung tritt Stickstoff aus der Luft in den Stahl in unterschiedlicher Weise ein. Die folgenden Abschnitte aus [WIK 18] geben eine kurze Übersicht hierzu:

„Henry Bessemer kam in den 1850er Jahren auf die Idee, das flüssige Roheisen in einen Konverter zu geben und durch Düsen im Boden Luft zu blasen. Der in der Luft enthaltene Sauerstoff verbrannte den Kohlenstoff und andere unerwünschte Begleitelemente in nur 20 Minuten und erhitzte gleichzeitig auch das Roheisen, sodass der gefrischte Stahl nun erstmals flüssig entstand und gegossen werden konnte. ... Das Verfahren hatte allerdings zwei Nachteile. Es eignete sich nur für phosphorarme Erze, die vor allem in Deutschland selten waren, und der chemisch neutrale **Stickstoff** in der Luft löste sich im Gefüge des Stahls und führte dazu, dass er hart, aber auch spröde war. Außerdem verbrannte beim Frischen fast der gesamte Kohlenstoff, sodass Bessemer-Stahl nicht besonders fest war. ...

Das Thomas-Verfahren von Sidney Thomas und Percy Gilchrist war seit 1878 eine Variante des Bessemer-Verfahrens, die sich für phosphorreiche Erze eignete und daher vor allem in Regionen an Rhein und Ruhr, in Belgien, Luxemburg und Lothringen bevorzugt genutzt wurde. Es benötigte allerdings auch einen gewissen Mindestgehalt an Phosphor, sodass man

in England und Amerika wenig Interesse daran zeigte, da hier entsprechende Erze nicht vorkamen. Thomas-Stahl war sogar noch etwas härter und spröder als Bessemer-Stahl und eignete sich eher für wenig belastete Fälle wie Draht oder Rohre und weniger für den Brücken- oder Schiffsbau. ...

Eine Alternative zu den beiden bodenblasenden oder windfrischenden Verfahren war das Siemens-Martin-Verfahren, das zum Herdfrischen gezählt wird und nach den drei Brüdern des berühmten Werner von Siemens, Friedrich, Otto und Wilhelm sowie dem französischen Eisenhüttenmann Pierre Martin benannt ist. Das Verfahren beruhte auf einem speziellen Ofen, bei dem die zugeführte Luft stark erhitzt wurde, bevor sie entzündet wurde. Anstatt mit dieser heißen Luft nun den Herd zu heizen, erhitze man damit einen weiteren Luftstrom, der nun noch heißer wurde als der Erste. Damit konnten nun dauerhaft Temperaturen gehalten werden, die über der Schmelztemperatur von Stahl lagen. Nach mehreren Stunden war der Stahl dann von den Begleitelementen befreit. Durch den langsameren Prozess konnte der gewünschte Kohlenstoffgehalt sehr genau eingestellt werden. Außerdem löste sich **kein Stickstoff** im Stahl, sodass das Siemens-Martin-Verfahren einen qualitativ höherwertigen Stahl ergab, der jedoch wegen des aufwendigeren Prozesses etwas teurer war.“

Stickstoff war somit bei den frühen Verfahren zur Stahlherstellung ein **unerwünschtes** Element. Seine Rolle als Legierungselement zur Einstellung des Härtegrades und anderer Eigenschaften des Stahls wurde erst später detaillierter untersucht und gezielt eingesetzt. Hierauf wird im folgenden Abschnitt 2.2 eingegangen.

## **2.2 Die Rolle des Stickstoffs bei der Stahlherstellung**

Die Rolle des Stickstoffs bei der Stahlherstellung ist in [NIE 02] wie folgt dargestellt:

„Die Eigenschaften von Stählen werden sowohl durch Legierungs- als auch durch Begleitelemente beeinflusst. Legierungselemente bezeichnen hierbei die Elemente, die der Schmelze zugegeben werden, um bestimmte Werkstoffeigenschaften zu erzielen. Begleitelemente dagegen sind unerwünscht und gelangen aufgrund des Herstellungsprozesses (z. B. durch Einsatzstoffe oder die Umgebungsluft) in die Schmelze. Ihre Konzentration soll im allgemeinen so gering wie möglich sein, was eine optimale Prozessführung voraussetzt. Typische Vertreter für Begleitelemente sind in vielen Stahlsorten Phosphor, Schwefel, Kohlenstoff und **Stickstoff**. Alle angesprochenen Elemente können jedoch in speziellen Applikationen auch als wertvolle Legierungselemente dienen. Eine Zuordnung in eine der beiden Kategorien hängt also stark vom Anforderungsprofil und von der Zusammensetzung des jeweiligen Stahls ab.

Gerade in un- und niedriglegierten Stählen ist **Stickstoff** oft in die Kategorie der störenden Begleitelemente einzuordnen. In nicht abgebundener Form (interstitiell gelöst) kann er sich an den Korngrenzen anlagern und im Laufe des Alterungsprozesses die Zähigkeit negativ beeinflussen. Verbunden ist diese Erscheinung mit einer zunehmenden Anfälligkeit gegenüber interkristalliner Spannungsrißkorrosion. Hierbei handelt es sich um eine Herabsetzung des Widerstandes gegen Rißausbreitung durch spezifische Angriffsmittel. Eine kontrollierte Gefüge- und Texturausbildung bei Sondertiefziehgütern ist ebenfalls gebunden an niedrige Gehalte gelösten **Stickstoffs**. Bei hochwertigen, nicht kornorientierten Elektroblechen muß die Konzentration an freiem **Stickstoff** unter 30 µg/g gesenkt werden, um den Ummagnetisierungsverlust möglichst klein zu halten. Der verbleibende Reststickstoff wird mit Hilfe

von Aluminium abgebunden. Das Verfahren des Abbindens mit nitridbildenden Elementen wie Aluminium, Titan, Zirconium, Vanadium oder Niob wird ebenfalls bei nahezu alterungsfreien IF-(Interstitial Free-)Stählen angewandt, um u. a. das Umformverhalten zu verbessern. Gerade zur Optimierung der mechanisch-technologischen Eigenschaften von Röhrenstählen ist die kohärente Ausbildung von Niobcarbonitriden bei tiefen Temperaturen im Ferritgebiet angestrebt. Um das inkohärente Ausfällen von Niobnitrid schon bei hohen Temperaturen zu vermeiden, ist auch hier ein niedriger N-Gehalt einzuhalten.

Wie schon angedeutet, lassen sich durch das Ausfällen bestimmter Nitride nicht nur störende Anteile an gelöstem **Stickstoff** entfernen, sondern auch gezielt Gefüge- und Werkstoffeigenschaften einstellen. Hier nimmt **Stickstoff** nicht mehr die Rolle eines Begleit-, sondern eines Legierungselementes ein. ... Einige Applikationen von **Stickstoff** als Legierungselement sollen an dieser Stelle exemplarisch behandelt werden. Zum einen ist dies die Verwendung in nichtrostenden austenitischen Stählen. **Ebenso wie Nickel stabilisiert Stickstoff den Austenit und kann so das teure Nickel zu einem bedeutenden Anteil ersetzen.** Durch Verwendung von modernen Herstellungsverfahren, wie des Druck-Elektro-Schlacke-Umschmelz-Verfahrens (DESU), wurde es möglich, hochaufgestickte Chromstähle mit N-Gehalten über 1 % zu produzieren.

Für Austenite lassen sich so Festigkeit, Zähigkeit, Korrosionsbeständigkeit sowie der Widerstand gegen Nichtmagnetisierbarkeit erhöhen. Anwendungen finden sich z. B. als Werkzeugstahl für chirurgische Instrumente, Wälzlager oder Druckgußwerkzeuge. Ein weiteres großes Anwendungsgebiet der **Stickstofflegierung** ist das Oberflächenhärten durch die Bildung von Nitriden. Der Vorgang wird als Nitrieren oder, bei gleichzeitigem Einbringen von Kohlenstoff, als Carbonitrieren bezeichnet. Das Hauptnitrierverfahren ist die Dissoziation von gasförmigem Ammoniak bei erhöhter Temperatur (> 500 °C). Atomarer **Stickstoff** dringt in die Metalloberfläche ein und bildet dort, bei Vorhandensein entsprechender Metalle, Nitride der Form VN, AlN usw.“

### **2.3 Anforderungen an Stahl für RDB und RDB-Einbauten**

Spezielle Anforderungen sind an Stähle zu stellen, aus denen der RDB und seine Einbauten gefertigt werden. Dies ist in der bereits 1982 erstellten Übersicht [SUZ 82] wie folgt dargestellt:

“The demands placed on reactor pressure vessel (RPV) steels are severe. They must be manufactured in required sizes and thicknesses, be of sufficient strength and toughness, show little deterioration under irradiation, allow the production of high quality welds and be compatible with the cladding. This Chapter refers to non-WER pressure vessels, but many of the guiding principles described here apply to that particular case.

Starting with carbon steel plates and forgings for conventional boiler drums in the dawn of commercial light water reactors (LWRs) followed by a few changes thereafter, SA533 and SA508 and similar grade steels have become well established. Both grades are of the vacuum treated, quenched and tempered type of 600 N/mm<sup>2</sup> strength class, which is not the highest level in weldable structural steels.

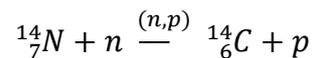
The specific requirements for RPV steels are to give, even to large-size component materials of RPVs, higher values of the following properties:

- uniformity and isotropy of mechanical properties, including less mass effect in the mid-section
- fracture toughness
- internal defects
- weldability
- resistivity to neutron irradiation embrittlement.”

Als ein wichtiges Legierungselement wurde zur Erreichung dieser Eigenschaften auch Stickstoff eingesetzt. Auf dessen Umwandlung in C-14 durch Neutronenbestrahlung wird im folgenden Abschnitt 2.4 eingegangen.

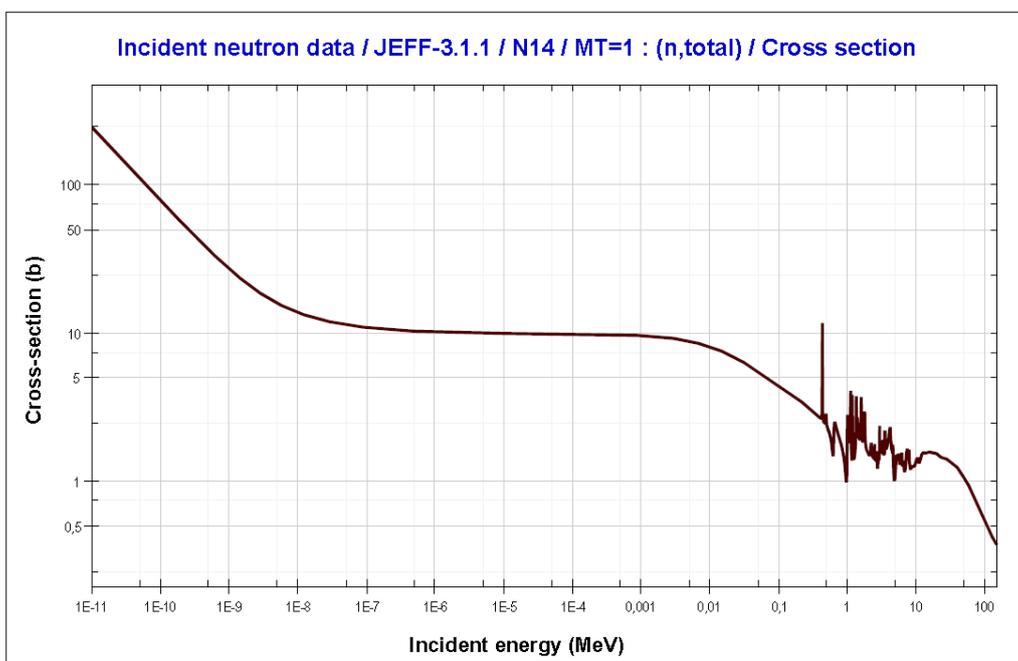
## 2.4 Bildungsreaktion für C-14 im Stahl durch Aktivierung

C-14 wird aus dem stabilen N-14 gebildet, das im natürlichen Stickstoff einen Massenanteil von 99,63 % aufweist. Den Verlauf des Wirkungsquerschnitts als Funktion der Neutronenenergie zeigt Abbildung 2.1. Im thermischen Bereich weist N-14 einen recht hohen Wirkungsquerschnitt auf, so dass die Bildungsreaktion



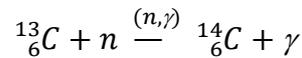
mit hoher Wahrscheinlichkeit abläuft.

Abbildung 2.1: Verlauf des Wirkungsquerschnitts als Funktion der Neutronenenergie [JAN 17]



Die Halbwertszeit des hierbei gebildeten C-14 beträgt 5730 a. Es zerfällt als Betastrahler in N-14. Aufgrund der langen Halbwertszeit tritt während der Betriebszeit des Endlagers Konrad von einigen Jahrzehnten praktisch keine Reduktion der Aktivität von C-14 auf.

Die Bildungsreaktion aus C-13, die in den vorliegenden Berechnungen mit berücksichtigt wurde, jedoch nur einen nicht signifikanten Anteil liefert, lautet:



## 2.5 Grenzwert für C-14 für das Endlager Konrad

Die maximal einlagerbare Aktivität von C-14 am Ende der Betriebsphase des Endlagers Konrad ist in Tabelle 8 der Endlagerungsbedingungen [BFS 14] mit **4,0·10<sup>14</sup> Bq** angegeben. Dieser Wert ist aus der Sicherheitsanalyse für die Nachbetriebsphase (Langzeitsicherheitsanalyse) abgeleitet worden.

Die Aktivitätsbegrenzungen für C-14 in einzelnen Gebinden sind demgegenüber relativ hoch:

- Die aus der Störfallanalyse resultierenden Aktivitätsgrenzwerte für C-14 je Gebinde liegen gemäß Tabelle 4 aus [BFS 14] zwischen  $1,0 \cdot 10^{12}$  Bq und  $2,1 \cdot 10^{15}$  Bq. Der für einen Behälter der Abfallbehälterklasse (ABK) II abgeleitete Aktivitätsgrenzwert für C-14 pro Behälter liegt damit bei ca. 30 % des Grenzwerts für die Gesamtaktivität, für einen Behälter der ABK I und der Abfallproduktgruppe (APG) 05 und 06 sogar beim Fünffachen des Grenzwerts für die Gesamtaktivität. Insbesondere liegt bei diesen Annahmebedingungen eine Inkonsistenz hinsichtlich der Zuordnung zu ABK I und ABK II vor.
- Die aus der Analyse zur thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins resultierenden Aktivitätsgrenzwerte für C-14 je Gebinde liegen gemäß Tabelle 6 aus [BFS 14] zwischen  $7,2 \cdot 10^{12}$  Bq und  $1,2 \cdot 10^{13}$  Bq. Der für verschiedene Behältertypen abgeleitete Aktivitätsgrenzwert für C-14 pro Behälter liegt bei Betonbehältern damit bei 3 % des Grenzwerts für die Gesamtaktivität.

## 3. ZUSAMMENFASSUNG DER ERGEBNISSE DES VORGÄNGERBERICHTS [BS 18]

### 3.1 Ältere Abschätzungen der Gesamtaktivität von C-14

Im Bericht [BS 18] wurden ältere Abschätzungen der Gesamtaktivität von C-14 in den radioaktiven Abfällen, die für das Endlager Konrad vorgesehen sind, zusammengestellt und bzgl. der jeweiligen Unsicherheiten der Aktivitätsabschätzung diskutiert. Den dort vorgestellten Ansätzen war folgende Vorgehensweise gemeinsam:

- Geht man jeweils vom höchsten zulässigen Stickstoffanteil in Stählen des RDB und seinen Einbauten im Bereich von 0,5 % und dem maximalen Neutronenfluss aus, so ergibt eine einfache Aktivierungsrechnung spezifische Aktivitäten für C-14 im Bereich von  $2 \cdot 10^7$  Bq/g am Ort des höchsten Flusses (etwa an den Gitterplatten), bezogen auf reinen Stickstoff.
- Überträgt man diese hohe spezifische Aktivität auf die gesamte Masse des Reaktors (RDB und RDB-E) von insgesamt ca. 700 Mg ( $7 \cdot 10^8$  g) und berücksichtigt den Massenanteil von Stickstoff am Stahl von 0,5 % ( $5 \cdot 10^{-3}$ ), so erhält man eine C-14-Gesamtaktivität für einen RDB zzgl. RDB-E im Bereich von knapp  $10^{14}$  Bq.
- Unter diesen extrem überschätzenden Annahmen würde der Grenzwert für die C-14-Gesamtaktivität für das Endlager Konrad bereits mit 5 RDB zzgl. RDB-E überschritten werden.

- Da neben dem aktivierten Stahl auch Aktivitätsmengen von C-14 von anderen Verursachern (z. B. aus Laboren in Medizin und Forschung, wo C-14 in größerem Umfang u. a. als Tracer verwendet wird) in das Endlager Konrad verbracht werden müssen, wäre auf Basis dieser einfachen Abschätzung von einer erheblichen Überschreitung der für das Endlager Konrad maximal zulässige C-14 Aktivität in den anfallenden Abfällen auszugehen.

Diese sehr konservative Methode der Abschätzung der Gesamtaktivität von C-14 in den älteren Untersuchungen ist als unbrauchbar anzusehen, da sie den Beitrag durch Aktivierung in Stählen um Größenordnungen überschätzt und hierdurch zu falschen Schlüssen führen kann.

### **3.2 Verbesserte Abschätzung in [ATW 15]**

Bei einer gegenüber den in Abschnitt 3.1 genannten Untersuchungen verbesserten Vorgehensweise, die in [ATW 15] beschrieben wird, wurden zunächst solche Reaktorkomponenten identifiziert, die entweder einem hohen Neutronenfluss ausgesetzt sind oder eine hohe Masse aufweisen (auch wenn sie etwas weiter vom Kern entfernt sind) und die somit einen hohen Beitrag zur Gesamtaktivität von C-14 liefern. Diese Betrachtung zeigte, dass die relevanten Komponenten überwiegend aus einer der folgenden Stahlsorten bestanden:

- RDB-E: austenitischer Stahl 1.4550, 1.4541 und 1.4571,
- RDB: ferritischer Stahl 1.6751.

Ergebnis dieser Untersuchung war, dass in vielen Fällen für die genannten Stähle wesentlich niedrigere Werte ermittelt wurden als die für die Materialien zulässige Stickstoffkonzentration von maximal 0,11% (z.B. nach DIN EN 10088). Eine überschlägige Abschätzung mit diesen deutlich geringeren Stickstoffkonzentrationen ergab die Prognose, dass die aktivierten metallischen Komponenten aus deutschen Kernkraftwerken den C-14-Grenzwert des Endlagers Konrad mutmaßlich nicht überschreiten würden.

### **3.3 Ergebnis aus [BS 18]**

Da auch der in Abschnitt 3.2 skizzierte verfeinerte Ansatz bzgl. der Abschätzung des N-Gehalts im Stahl keine eindeutige Aussage über die Gesamtaktivität von C-14 im aktivierten Stahl von RDB und RDB-Einbauten zulässt, erfolgte in [BS 18] eine verfeinerte Modellierung.

Hierfür wurden zunächst gut begründete Aussagen zum Aktivitätsgehalt von C-14 in allen RDB und RDB-E deutscher Leistungs- und Prototypreaktoren getroffen. Zur Durchführung der Aktivierungsberechnung erfolgte ein Mittelungsansatz bzgl. der chemischen Zusammensetzung und des Neutronenflusses für die einzelnen Komponenten (Einbauten) des RDB und für die einzelnen Sektionen des RDB (Mantel), wobei die verschiedenen Stahlsorten je nach Reaktortyp zugeordnet wurden. Die Aktivierungsrechnungen erfolgten auf dieser Basis mit einem vereinfachten MCNP-Modell. Dessen Ergebnisse wurden für die einzelnen Kernkraftwerke dann skaliert entsprechend Reaktorleistung und Betriebszeit. Diese gegenüber dem in Abschnitt 3.2 vorgestellten Ansatz deutlich verfeinerte, aber immer noch unvollkommene Vorgehensweise wurde anhand von Vergleichsdaten aus zwei Kernkraftwerken validiert.

Die Berechnung der C-14-Aktivitäten erfolgte dann entsprechend der dargestellten Vorgehensweise für alle in die Betrachtung einbezogenen Kernkraftwerke. Die sich ergebenden Aktivitäten von C-14 für die RDB und die RDB-E sind in Tabelle 3.1 aufgeführt.

Tabelle 3.1: Berechnete C-14 Aktivität in RDB und RDB-E der Leistungs- und Prototypreaktoren in Deutschland (aus [BS 18])

Nr.	Reaktor <i>R</i>	Aktivität RDB $A_{R,RDB}^{C-14}$ [Bq]	Aktivität RDB-E $A_{R,RDBE}^{C-14}$ [Bq]
1	Biblis A (DWR)	$4,58 \cdot 10^{10}$	$1,87 \cdot 10^{13}$
2	Biblis B (DWR)	$4,99 \cdot 10^{10}$	$1,96 \cdot 10^{13}$
3	Brokdorf (DWR)	$6,22 \cdot 10^{10}$	$2,72 \cdot 10^{13}$
4	Brunsbüttel (SWR)	$2,23 \cdot 10^{10}$	$1,14 \cdot 10^{13}$
5	Emsland (DWR)	$6,42 \cdot 10^{10}$	$2,82 \cdot 10^{13}$
6	Grafenrheinfeld (DWR)	$5,86 \cdot 10^{10}$	$2,28 \cdot 10^{13}$
7	Greifswald 1 (DWR, WWER)	$4,15 \cdot 10^9$	$2,26 \cdot 10^{12}$
8	Greifswald 2 (DWR, WWER)	$4,28 \cdot 10^9$	$2,33 \cdot 10^{12}$
9	Greifswald 3 (DWR, WWER)	$3,89 \cdot 10^9$	$2,12 \cdot 10^{12}$
10	Greifswald 4 (DWR, WWER)	$3,38 \cdot 10^9$	$1,84 \cdot 10^{12}$
11	Greifswald 5 (DWR, WWER)	$2,44 \cdot 10^8$	$1,33 \cdot 10^{11}$
12	Grohnde (DWR)	$7,12 \cdot 10^{10}$	$3,09 \cdot 10^{13}$
13	Großwelzheim (HDR)	$5,94 \cdot 10^5$	$4,13 \cdot 10^8$
14	Gundremmingen A (SWR)	$1,66 \cdot 10^9$	$5,17 \cdot 10^{11}$
15	Gundremmingen B (SWR)	$8,76 \cdot 10^{10}$	$5,00 \cdot 10^{13}$
16	Gundremmingen C (SWR)	$9,51 \cdot 10^{10}$	$5,43 \cdot 10^{13}$
17	Isar 1 (SWR)	$4,28 \cdot 10^{10}$	$2,07 \cdot 10^{13}$
18	Isar 2 (DWR)	$6,33 \cdot 10^{10}$	$2,78 \cdot 10^{13}$
19	Kahl (VAK) (SWR)	$1,39 \cdot 10^8$	$6,89 \cdot 10^9$
20	Karlsruhe MZFR (DWR)	$3,76 \cdot 10^8$	$7,63 \cdot 10^{11}$
21	Karlsruhe KNK II (SNR)	$8,63 \cdot 10^6$	$6,30 \cdot 10^9$
22	Krümmel (SWR)	$5,18 \cdot 10^{10}$	$3,13 \cdot 10^{13}$
23	Lingen (SWR)	$6,80 \cdot 10^8$	$1,87 \cdot 10^{11}$
24	Mülheim-Kärlich (DWR)	$1,76 \cdot 10^9$	$1,09 \cdot 10^{12}$
25	Neckarwestheim 1 (DWR)	$2,26 \cdot 10^{10}$	$1,44 \cdot 10^{13}$
26	Neckarwestheim 2 (DWR)	$6,18 \cdot 10^{10}$	$2,72 \cdot 10^{13}$
27	Niederaichbach (HWCR)	$1,13 \cdot 10^6$	$7,28 \cdot 10^8$
28	Obrigheim (DWR)	$5,90 \cdot 10^9$	$2,67 \cdot 10^{12}$
29	Philippsburg 1 (SWR)	$3,54 \cdot 10^{10}$	$1,50 \cdot 10^{13}$
30	Philippsburg 2 (DWR)	$6,51 \cdot 10^{10}$	$3,22 \cdot 10^{13}$
31	Rheinsberg (DWR, WWER)	$5,77 \cdot 10^8$	$2,48 \cdot 10^{11}$
32	Stade (DWR)	$1,30 \cdot 10^{10}$	$6,38 \cdot 10^{12}$
33	Unterweser (DWR)	$5,63 \cdot 10^{10}$	$2,26 \cdot 10^{13}$
34	Würgassen (SWR)	$9,76 \cdot 10^9$	$5,51 \cdot 10^{12}$
	Summe	$1,01 \cdot 10^{12}$	$4,80 \cdot 10^{14}$
	<b>Gesamt</b>		<b><math>4,81 \cdot 10^{14}</math></b>

Die berechnete C-14 Gesamtaktivität ist nahezu vollständig (99,8 %) in den RDB E zu finden. Der Anteil in den RDB-E der Reaktoren mit einer thermischen Leistung von 1900 MW (z. B. KKW Stade) und mehr beträgt dabei 97,1 %.

In der Diskussion dieser Ergebnisse in [BS 18] erfolgte die Einschätzung, dass die Gesamtaktivität von C-14 in den RDB und RDB-E aller in Deutschland vorhandenen Kernkraftwerke mit ca.  $5 \cdot 10^{14}$  Bq abgeschätzt werden kann und dass diese Abschätzung im Unterschied zu früheren Angaben keine grobe Überschätzung der Aktivität darstelle. Dieser berechnete Wert für die C-14-Gesamtaktivität überschreitet den Aktivitätsgrenzwert für das Endlager Konrad von  $4 \cdot 10^{14}$  Bq um ca. 20 %.

Es wurde dann in [BS 18] der Schluss gezogen, dass davon auszugehen sei, dass der Gesamtaktivitätswert für C-14 gemäß der Annahmebedingungen für das Endlager Konrad durch die radioaktiven Abfälle, die für eine Beseitigung im Endlager Konrad vorgesehen sind, überschritten werden wird, zumal die C-14-Gesamtaktivität im Endlager Konrad nicht allein durch den Gehalt an C-14 in Stählen der RDB und der RDB-E der Kernkraftwerke gebildet wird, sondern dass in ganz erheblichem Maße weitere Abfälle insbesondere aus der Betriebsphase der Kernkraftwerke sowie aus dem nach § 12 StrlSchG genehmigten Umgang hierzu beitragen. Es wurde in [BS 18] ferner darauf hingewiesen, dass sich auf Grund der Reduzierung des Freigabewerts für C-14 für die uneingeschränkte Freigabe zwischen Anl. III Tab. 1 Sp. 5 StrlSchV in der vor dem 31.12.2018 gültigen Fassung und Anl. 4 Tab. 1 Sp. 3 StrlSchV und der damit zwangsläufig stärkeren Berücksichtigung des nur über Sondernuklidanalysen bestimmbarer C-14 bei den Freimessungen die Scheinaktivität bei den Deklarationen erhöhen kann.

#### **4. ÜBERSICHT DER VOLLSTÄNDIGEN AKTIVIERUNGSBERECHNUNGEN FÜR DEUTSCHE KERNKRAFTWERKE**

##### **4.1 Aufbau von RDB und RDB-Einbauten**

Der RDB eines Leichtwasserreaktors ist ein zylindrischer Stahlbehälter mit kalottenförmigem Boden und Deckel. Er enthält verschiedene Einbauten, die u. a. zur Fixierung der Brennelemente, zur Zu- und Ableitung des Wassers, beim Siedewasserreaktor der Abscheidung des restlichen Wassers vom Dampf, der Führung der Steuerstäbe usw. dienen. Aufgrund des Neutronenflusses beim Reaktorbetrieb werden praktisch alle Strukturen des RDB und seiner Einbauten aktiviert. Die Höhe der Aktivierung überstreicht allerdings mehrere Größenordnungen und ist im kernnahen Bereich (Bereich der höchsten Neutronenflussdichte) am größten. Daher sind trotz ihrer im Vergleich zum RDB weitaus geringeren Masse die RDB-E für das gesamte Aktivitätsinventar entscheidend.

##### **4.1.1 Druckwasserreaktor**

Den Aufbau des RDB und seiner Einbauten bei einem Druckwasserreaktor (DWR) zeigt Abbildung 4.1. Die einzelnen Einbauten erfüllen die in Tabelle 4.1 dargestellten Funktionen.

Abbildung 4.1: Darstellung typischer RDB-Einbauten (DWR) [KTA 15]

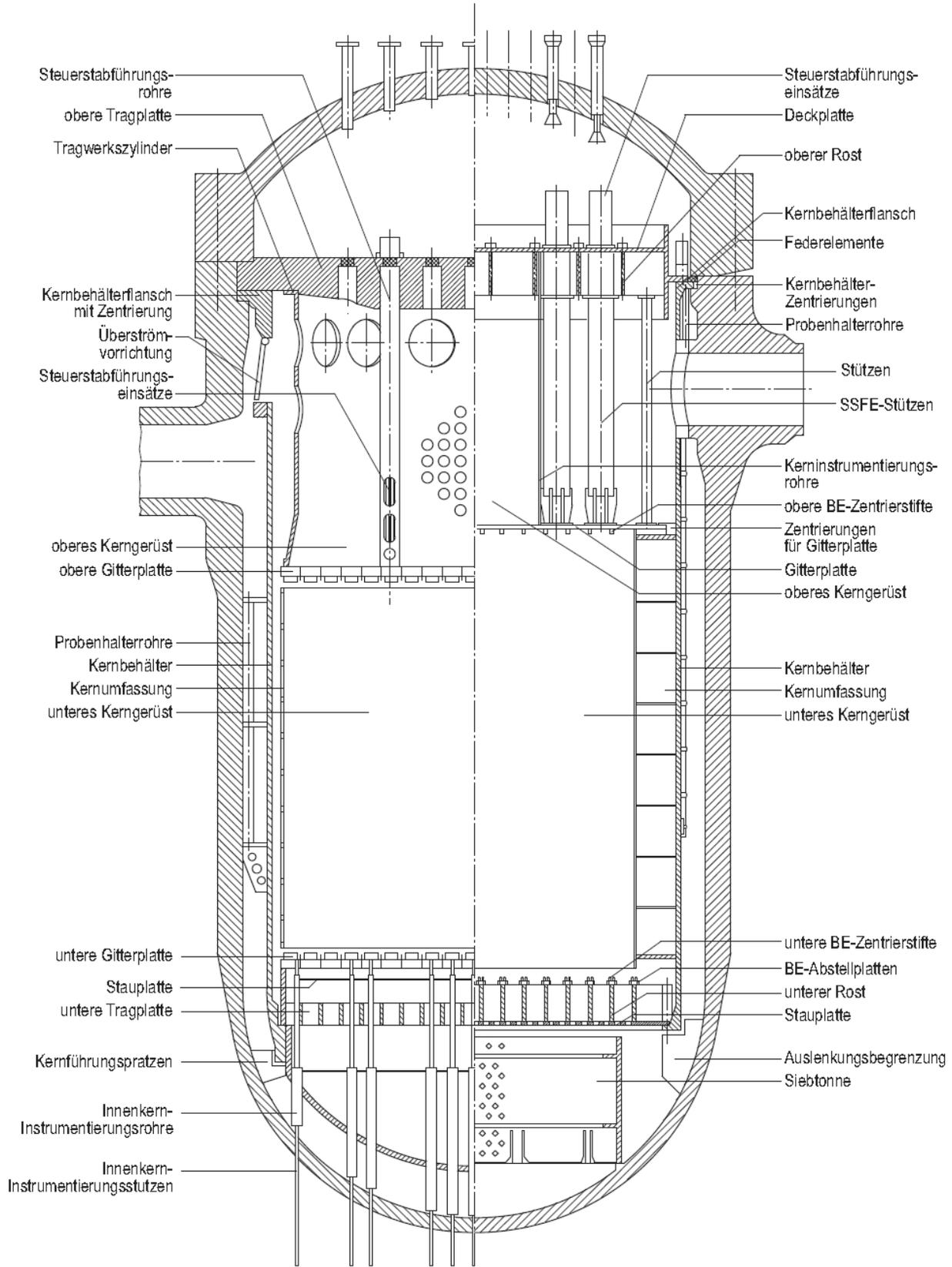


Tabelle 4.1: Funktionen der RDB-E beim DWR [KTA 15]

Anforderungsstufe	Aufgaben und Funktionen	Komponenten, Baugruppen und Bauteile
AS-RE 1	Tragen des Reaktorkerns Zentrierung der RDB-Einbauten Führung der Steuerelemente Zuführung von Kühlwasser	Unterer und oberer Rost Untere und obere Tragplatte Stutzen und Schutzrohre für Steuerstabführungseinsätze Tragwerkszylinder Steuerstabführungseinsätze und Stifte Untere und obere Gitterplatte Kernbehälter (KB) Überstromvorrichtung Zentrierungs- und Fixierungselemente am RDB
AS-RE 2	Führung und Verteilung des Kühlmittels Halterung und Schutz der Instrumentierung Trennung des Dampf-Wasser-Gemisches Halterung und Schutz von Bauteilen der RDB-Einbauten und von Brennelementen Aufnahme der Last des Bauteils	Deck- und Stauplatte Führung und Trageplatte für Kerninstrumentierung Strömungsverteiler Kernumfassung (KU) Stutzen Niederhaltung der RDB-Einbauten Brennelement-Zentrierstifte Lastanschlagpunkte
AS-RE 3	Halterung von Proben Wegbegrenzung der RDB-Einbauten Ein- und Ausbringung sowie Abstellung der RDB-Einbauten Führung der RDB-Einbauten	Probenhalter Abstellvorrichtungen Ein- und Ausbauvorrichtungen Hilfseinrichtungen Führungs-, Zentrierungs-, Wegbegrenzungselemente

#### 4.1.2 Siedewasserreaktor

Den Aufbau des RDB und seiner Einbauten bei einem Siedewasserreaktor (SWR) zeigt Abbildung 4.2. Die einzelnen Einbauten erfüllen die in Tabelle 4.2 dargestellten Funktionen.

Abbildung 4.2: Darstellung typischer RDB-E (SWR) [KTA 15]

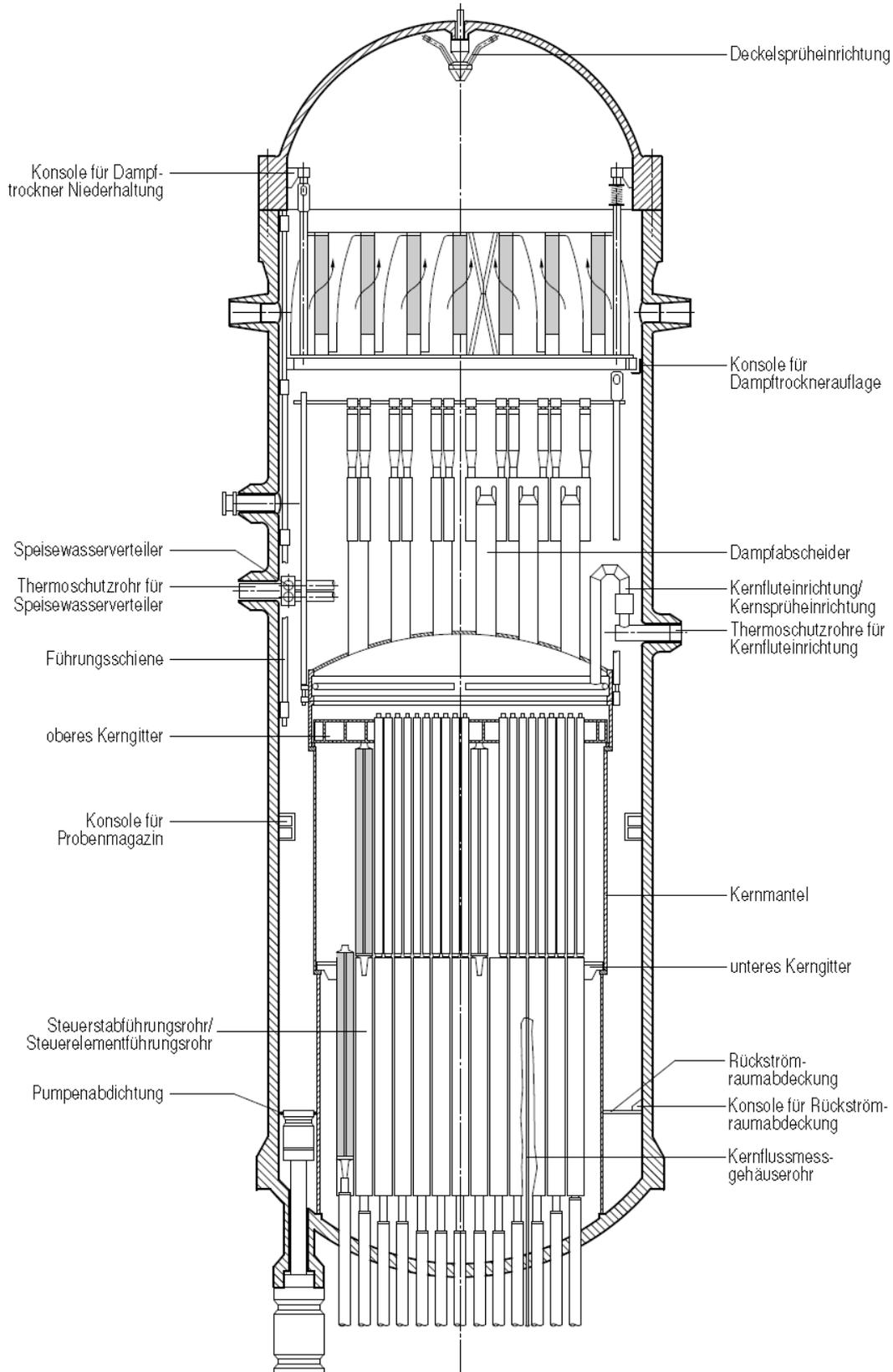


Tabelle 4.2: Funktionen der RDB-E beim SWR [KTA 15]

Anforderungsstufe	Aufgaben und Funktionen	Komponenten, Baugruppen und Bauteile
AS-RE 1	Tragen des Reaktorkerns Zentrierung der RDB-Einbauten Führung der Steuerelemente	Kernmantel Rückströmraumabdeckung Oberes Kerngitter Unteres Kerngitter Steuerstabführungsrohre/ Steuerelementführungsrohre Thermoschutzrohre
AS-RE 2	Führung und Verteilung des Kühlmittels Halterung und Schutz der Instrumentierung Halterung und Schutz von Bauteilen der RDB-Einbauten und von Brennelementen Aufnahme der Last des Bauteils	Dampfabscheider Schutzrohre für Instrumentierung (Kernflussmessgehäuserohr) Speisewasserverteiler Kernfluteinrichtung Dampftrockner Lastanschlagpunkte
AS-RE 3	Halterung von Proben Wegbegrenzung der RDB-Einbauten Ein- und Ausbringung sowie Abstellung der RDB-Einbauten Führung der RDB-Einbauten	Deckelsprüheinrichtung Führungsschienen Probenhalterung Abstellvorrichtungen Ein- und Ausbautvorrichtungen Hilfseinrichtungen

## 4.2 Beschreibung der Aktivierungsrechnungen

Die verbesserte Abschätzung des C-14-Inventars, welches im vorliegenden Bericht dargestellt wird, basiert auf den gegenüber dem vorherigen Stand [BS 18] mittlerweile vorliegenden Ergebnissen detaillierter und hochauflösender Aktivierungsrechnungen. Zum Stand dieser Berechnungen wird im Folgenden eine kurze Übersicht gegeben, aus welcher der gegenüber [BS 18] mittlerweile deutlich verbesserte Ansatz hervorgeht.

### 4.2.1 Übersicht

Im Rahmen von Aktivierungsrechnungen wird das aufgrund des Neutronenflusses während der Betriebszeit durch Aktivierung entstandene Aktivitätsinventar im RDB und seinen Einbauten sowie im biologischen Schild und peripheren Strukturen berechnet. Zur Bestimmung des Aktivitätsinventars der Anlage sowie der Auswahl von Zerlegetechniken und Verpackungskonzepten stellt die Berechnung der Aktivierung des RDB, der RDB-E und des biologischen Schilds eine wichtige Eingangsgröße dar. Eingangsdaten für die Aktivierungsrechnungen, insbesondere Geometrien und Materialdaten der betrachteten Komponenten, wurden aus den Unterlagen des jeweiligen Kernkraftwerks übernommen.

Die Berechnung der Aktivierung erfolgte in folgenden Schritten:

- Eingangsdaten für die Aktivierungsrechnungen, insbesondere Geometrien und Materialdaten der betrachteten Komponenten, wurden aus den Unterlagen des Kernkraftwerks übernommen.

- Aufbauend auf der Betriebshistorie des Kernkraftwerks, den Leistungszyklen und den verwendeten Brennelementen wurde ein leistungsabhängiger Quellterm für den Neutronenfluss berechnet. Die Neutronenflussverteilung in den Komponenten und am biologischen Schild wurde berechnet.
- Sofern es sich um eine (zum Zeitpunkt der Aktivierungsrechnung) noch in Betrieb befindliche Anlage handelt, wird für die Restlaufzeit von einem möglichst hohen Lastfaktor ausgegangen, um den Neutronenfluss bis Abschaltung nicht zu unterschätzen.
- Abschließend wurde aus der ortsabhängigen spektralen Verteilung der Neutronen und der Wechselwirkung der Neutronen mit den Elementen der betrachteten Komponenten die Aktivierung berechnet.
- Die so berechneten Ergebnisse wurden zunächst mit Messungen der Dosisleistung am RDB, RDB-E und Kernbehälter verglichen. Sofern deutliche Abweichungen erkennbar waren, wurden auf dieser Basis erste Anpassungen an der Neutronenflussverteilung vorgenommen, oder es wurden chemische Zusammensetzungen der Ausgangsmaterialien überprüft.
- In einem späteren Schritt (nach Zugänglichkeit) erfolgten Probenentnahmen von ausgewählten Stellen an den RDB-E und verschiedenen Teilen des RDB mit anschließender Auswertung bzgl. gammaspektrometrisch messbarer Radionuklide und Sondernuklidanalysen. Auf dieser Basis wurde die Neutronenflussverteilung noch gezielter angepasst, und aus der nuklidspezifischen Auswertung konnten Hinweise auf noch nicht vollständig korrekte Massenanteile bestimmter chemischer Elemente entnommen werden, woraus sich eine weitere Verbesserung der Datenlage ergab.

Die durchgeführten Vergleiche für 5 Kernkraftwerke der PreussenElektra GmbH (PEL) haben gezeigt, dass auf diese Weise insgesamt eine bereits sehr gute Übereinstimmung zwischen Modellierung und Messwerten erzielt werden konnte. Der Zielstellung der Aktivierungsrechnungen folgend, welche vor allem in der Zerlege- und Verpackungsplanung besteht, wurden hierbei die ermittelten Aktivitätsdaten stets leicht überschätzend gehalten.

In den folgenden Abschnitten wird auf die einzelnen Schritte der Berechnungen eingegangen.

#### **4.2.2 Neutronentransport**

Um eine möglichst realistische Berechnung der Ausbreitung der Neutronen zu erhalten, wird ein dreidimensionales geometrisches Modell verwendet. Die Berechnung erfolgt unter Anwendung des Monte-Carlo-Programms MCNP 6 (A General Monte Carlo N-Particle Transport Code). In MCNP 6 wird der Transport von Teilchen (im vorliegenden Fall Neutronen) dadurch modelliert, dass ein Quellbereich für den Reaktorkern definiert wird und aus diesem Neutronen emittiert werden. Dabei werden sowohl die Energie- wie auch Ortsverteilung der Neutronen berücksichtigt. Jedes einzelne Neutron wird zufällig in eine Richtung emittiert. Dann wird der Weg des Neutrons nachverfolgt und auf dem Weg des Neutrons in Abhängigkeit von der Teilchenenergie und dem am jeweiligen Ort vorliegenden Material aus den in einer Datenbank (ENDF/B-VII.1) hinterlegten Wirkungsquerschnitten die Wahrscheinlichkeit einer Streuung bzw. einer Kernreaktion berechnet. Durch einen Zufallsprozess (daher Monte-Carlo) wird dann bestimmt, wie sich das Neutron verhält (d. h. welche Art von Wechselwirkung als nächstes stattfindet) und der Weg des Teilchens weiterverfolgt. Dies geschieht so lange, bis das Neutron den Modellbereich verlässt oder über eine entsprechende Reaktion vernichtet wird.

Da die gesamte Berechnung auf physikalischen Parametern wie Energien, Impulsen, Wirkungsquerschnitten und vorhandenen Materialien beruht, ergibt sich nach Emission einer großen Anzahl von Teilchen ein Abbild des Verhaltens der Neutronen. Da sämtliche Streuprozesse berücksichtigt werden, ergibt sich somit eine Beschreibung, in der auch Reflexionen der Neutronen an Wänden vorhanden sind. Weiterhin sind damit auch sogenannte Streaming-Effekte berücksichtigt, d. h. die Neutronen können durch Durchführungen in Wänden gelangen, dabei an den umliegenden Materialien reflektiert werden und über „Umwege“ an Orte gelangen, die aufgrund von Abschirmungen eigentlich nicht direkt zugänglich sind.

#### **4.2.3 Modellierung der Geometrie**

Das in MCNP implementierte Modell umfasst (von innen nach außen)

- den Reaktorkern,
- die RDB-E,
- den RDB,
- den biologischen Schild,
- angrenzende Betonstrukturen des Gebäudes sowie
- Loop-Leitungen mit Hauptkühlmittelpumpen, Dampferzeugern und Druckhalter (abhängig vom Anlagentyp)

und ist vollständig dreidimensional realisiert. Der Kern wurde bis zur Ebene der Brennstäbe modelliert. Insgesamt werden in den Modellen jeweils einige 10.000 dreidimensionale Gitterzellen verwendet, die alle Strukturen (Stahl, Beton, Isoliermaterial) sowie die dazwischenliegenden Medien (Wasser, ggf. Dampf, Luft) umfassen und sich an der Geometrie der Strukturen orientieren. Jeder Gitterzelle ist das darin vorliegende Material mit bestmöglich bekannter Elementzusammensetzung sowie die zugehörige Masse zugeordnet. Innerhalb jeder Gitterzelle wird der Neutronenfluss spektral aufgelöst berechnet und es werden hieraus alle möglichen Aktivierungsreaktionen berechnet. Jeder Gitterzelle ist somit im Ergebnis eine Liste von Radionukliden mit zugehörigen Aktivitäten zugeordnet.

#### **4.2.4 Materialdaten**

Für die Durchführung der Aktivierungsrechnungen sind vor allem die Zusammensetzungen der Materialarten entscheidend, insbesondere im Hinblick auf diejenigen chemischen Elemente, aus denen sich die radiologisch relevanten Aktivierungsprodukte bilden können.

Soweit vorhanden, wurden zur Festlegung der Anteile der jeweiligen Elemente in den Stahlsorten chemische Materialanalysen herangezogen. Wenn mehrere Analysen für ein Bauteil vorhanden waren, wurde mit Ausnahme von Eisen (radiologisch nur wenig relevant) der jeweils maximale Anteil verwendet und der Anteil an Eisen entsprechend aufgefüllt. Zusätzlich wurden für weitere Spurenelemente (wie Uran oder Europium), die nicht in den Analysen berücksichtigt wurden, abdeckende Werte angesetzt. Diese stammen aus einer Datensammlung für diverse Reaktorwerkstoffe, die in [CRA 11] zusammengestellt wurde.

#### **4.2.5 Leistungshistorie**

Die Leistungshistorie des betreffenden Kernkraftwerks stellt eine wesentliche Eingangsinformation für die Aktivierungsberechnung dar. Zu den Leistungszyklen sind Informationen zur Dauer der ein-

zelenen Zyklen, deren Äquivalent in Volllasttagen sowie zur thermischen Arbeit verfügbar. Die Zeiten zwischen dem Ende eines Zyklus und dem Beginn des nächsten (Revisionen oder anderweitiger Stillstand) werden in der Betriebshistorie ebenfalls berücksichtigt.

Bei der Berechnung des Neutronenflusses wurde der Reaktorkern aufgrund des geringen Einflusses der verschiedenen Kernzusammensetzungen (U- oder MOX-Brennelemente) auf die Neutronenquellen stets einheitlich modelliert. Zur Berechnung der je Spaltung produzierten Anzahl an Neutronen wurden Kritikalitätsberechnungen mit MCNP durchgeführt, bei denen die Kernzusammensetzung in Abhängigkeit vom Zyklus berücksichtigt wurde. Dadurch sind unterschiedliche Brennelement-Typen berücksichtigt.

#### **4.2.6 Berechnung der Neutronenflussdichte mit MCNP**

Zur Bestimmung der Neutronenflussdichte wurde das Programm MCNP verwendet. Hierbei handelt es sich um eine partikelgestützte Monte-Carlo-Simulation der Neutronen-Ausbreitung. Energieabhängige Neutronenstreuung und Absorption der Neutronen durch verschiedene Umgebungsmaterialien werden berücksichtigt.

Zur Bestimmung des Neutronenflusses werden im geometrischen Modell definierten Gitterzellen sogenannte Tallies zugeordnet, für die je nach Typ des Tallies unterschiedliche Kenngrößen berechnet werden. In der Regel werden für Aktivierungsrechnungen Typ-4-Tallies eingesetzt, über die der mittlere Fluss in einer Zelle bestimmt wird. Dieser wird in der Einheit Neutronen pro Fläche und emittiertem Neutron ausgegeben, also normiert auf die Quellstärke. Die Berechnung erfolgt energieaufgelöst für 44 Neutronengruppen. Um in diesem Ansatz eine Ortsabhängigkeit des Neutronenflusses in einem Körper (beispielsweise radiale Abhängigkeit in der Wand des RDB oder des biologischen Schildes) zu erhalten, muss der entsprechende Körper entsprechend in Zellen unterteilt werden. Für jede der Zellen wird dann ein Tally definiert.

Zusätzlich werden unabhängig von der tatsächlichen Geometrie Gitter als sogenannten Mesh-Tallies definiert. Dies kann unabhängig von der tatsächlichen Geometrie geschehen, so dass man auch beispielsweise innerhalb einer Zelle mehrere Bereiche erhält, in denen der Neutronenfluss berechnet wird. Für dieses Gitter werden immer Typ-4-Tallies eingesetzt. Auch hier erfolgt die Berechnung energieaufgelöst für 44 Energiegruppen. Das Gitter selbst kann in verschiedenen geometrischen Konfigurationen definiert werden. Da RDB und biologisches Schild näherungsweise rotations-symmetrisch sind, wurde in diesem Bereich ein zylindrisches Gitter eingesetzt. Die Schrittweite zwischen den Gitterzellen wurde in Anlehnung an den geometrischen Aufbau gewählt, so dass in den Wänden von RDB und biologischem Schild eine radiale Abhängigkeit bestimmt werden kann. Auch Durchbrüche und Flansche werden immer von mehreren Gitterzellen abgedeckt. Weiterhin wurde der azimutale Bereich in  $10^\circ$ -Schritten unterteilt. Dieses fein aufgliederte zylindrische Gitter wurde in der Umgebung von RDB und biologischem Schild definiert. Ein weiteres zylindrisches Gitter mit größerer Auflösung wurde verwendet, um größere radiale Entfernungen und eine weitere Erstreckung über die Höhe abzudecken (bis über den Beckenflur).

Für spezielle RDB-E wie die Kernumfassung wurden ferner zusätzliche kartesische Gitter definiert, die den jeweiligen Geometrien folgen.

Über einen größeren Bereich wurde ein weiteres kartesisches Gitter definiert, welches in würfelförmige Zellen mit einer konstanten Kantenlänge von 60 cm unterteilt. Bei großen Abständen zum Quellbereich ergibt sich durch eine Verkleinerung der Gitterzellen keine Erhöhung der Genauigkeit, da die Anzahl der Neutronen, die sich durch die Zellen bewegen und zur Berechnung des Flusses

verwendet werden, mit wachsendem Abstand und Verkleinerung der Zellen abnimmt. Bei großen Abständen ergibt sich daher durch Verkleinerung der Zellen eine höhere Ortsauflösung, aber ebenfalls eine deutliche Verringerung der Statistik.

Aus dem von MCNP bestimmten normierten Neutronenfluss wird der zur Berechnung der Aktivierung benötigte Neutronenfluss unter Berücksichtigung der Leistungsgeschichte bestimmt. Die mit MCNP gewonnenen Neutronenflüsse (energieaufgelöst in 44 Neutronengruppen) werden im Weiteren benutzt, um eine Aktivierungsrechnung durchzuführen.

#### **4.2.7 Berechnung der Aktivierung**

Da eine Berechnung der Aktivierung der Materialien nicht direkt in MCNP möglich ist, wurde die Berechnung des Nuklidenaufbaus und -zerfalls während der gesamten Laufzeit in den interessierenden Komponenten mit dem Programm ORIGEN-S des Programmpakets SCALE 6.2 durchgeführt. Dabei wurde der mittels MCNP bestimmte energieabhängige Neutronenfluss für den jeweiligen betrachteten Bereich unter Berücksichtigung der Materialzusammensetzung mittels des SCALE-Moduls COUPLE in effektive Aktivierungsquerschnitte für ORIGEN-S umgerechnet. Mit ORIGEN-S wurde dann unter Berücksichtigung der Leistungsgeschichte der Verlauf der Aktivität in der jeweiligen Zelle berechnet. Dabei erfolgt während des Betriebs des Reaktors Aktivierung durch den Neutronenfluss mit Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalls. In den Stillstandphasen zwischen den Zyklen wird nur der radioaktive Zerfall berücksichtigt. Die Ergebnisse der Berechnungen mit ORIGEN-S liegen in der Dimension Aktivität pro Masse vor. Diese Daten wurden dann mit der tatsächlich in der Zelle vorhandenen Masse multipliziert, um die Gesamtaktivität zunächst pro Zelle und hieraus für die gesamte Komponente zu erhalten.

#### **4.3 Gesamtergebnis für die C-14-Aktivitäten**

Die in Abschnitt 4.2 beschriebenen Aktivierungsrechnungen wurden für alle relevanten Radionuklide durchgeführt, darunter insbesondere auch Co-60, Fe-55, Ni-63 und C-14. Von diesen Daten werden an dieser Stelle nur die C-14-Aktivitäten ausgewertet. Der hohe Detaillierungsgrad der Modelle erlaubt eine genaue Abgrenzung der einzelnen Komponenten. Tabelle 4.3 zeigt eine Übersicht der C-14-Aktivitäten je Teil des RDB und je Komponente der RDB-E sowie die Summenaktivität für alle aufgeführten Anteile. Das Bezugsdatum spielt angesichts der langen Halbwertszeit von C-14 (5.730 a) keine Rolle.

Da bei der vorliegenden Fragestellung bzgl. der Kriterien für das Endlager Konrad (anders als bei Zerlege- und Verpackungsplanungen) nur die C-14-Gesamtaktivität und nicht die Masse und die massenbezogene Aktivität der einzelnen Komponenten relevant ist, sind ohnehin jeweils nur die höchstaktivierten RDB-E aktivitätsbestimmend. Die Strukturen des RDB haben an der Gesamtaktivität einen Anteil von ca.  $3,5 \cdot 10^{-4}$ , die Strukturen des biologischen Schilfs einen Anteil von  $3,8 \cdot 10^{-5}$ .

Tabelle 4.3: Übersicht der Ergebnisse der Aktivierungsrechnungen [BS 21]

	KKU	KKG	KBR	KWG	KKI-2	GKN1	
RDB Deckel	2,83E+05	7,10E+05	8,33E+05	9,74E+05	8,83E+05		RDB
RDB Zylinder	3,76E+08	6,16E+08	7,37E+08	8,20E+08	7,02E+08		
Plattierung RDB-Zylinder	4,45E+08	3,68E+08	1,66E+09	8,84E+08	3,16E+09		
RDB Kalotte	2,70E+06	6,60E+06	7,78E+06	8,33E+06	9,22E+06		
Plattierung Kalotte	1,74E+05	4,46E+05	1,03E+06	4,90E+05	3,04E+06		
RDB vollständig						5,44E+09	
Oberer Rost	2,36E+03	1,28E+04	1,89E+04	1,79E+04	2,92E+04		RDB-Einbauten
SSFE	3,53E+09	8,97E+09	6,87E+09	7,17E+09	4,25E+09		
Stützen	1,88E+08	4,75E+08	3,81E+08	3,98E+08	2,39E+08		
Gitterplatte	3,08E+10	2,75E+10	4,39E+10	6,05E+10	9,25E+10		
Kernumfassung	1,82E+12	4,09E+12	4,33E+12	4,79E+12	6,44E+12	7,82E+12	
Formrippen	4,95E+11	1,13E+12	8,38E+11	9,57E+11	1,58E+12	9,77E+11	
Kernbehälter	2,53E+11	2,58E+11	2,71E+11	3,01E+11	7,07E+11	1,54E+12	
Unterer Rost	1,24E+10	4,21E+09	3,59E+09	1,92E+09	1,18E+10	2,24E+10	
oberes Kerngerüst						1,12E+11	
Schemel	4,20E+06	2,97E+06	6,63E+06	4,16E+06	4,42E+06	2,36E+06	
RDB Schrauben					1,29E+05		
Stützrippen					2,79E+12		
Kernumfassung Schrauben						6,05E+10	
Ringträger						1,34E+07	
Bioschild innen	1,06E+08	1,46E+08	2,08E+08	2,07E+08	2,68E+08		Bio. Schild
Armierung innen	2,80E+07	5,08E+07	5,50E+07	5,46E+07	7,08E+07		
Bioschild außen	5,25E+06	1,22E+07	2,26E+07	2,51E+07	2,04E+07		
Armierung außen	1,76E+06	5,42E+06	7,53E+06	8,39E+06	7,21E+06		
<b>Gesamt</b>	<b>2,61E+12</b>	<b>5,52E+12</b>	<b>5,49E+12</b>	<b>6,12E+12</b>	<b>1,16E+13</b>	<b>1,05E+13</b>	

## 5. EXTRAPOLATION DER ERGEBNISSE AUF DIE AKTIVIERTEN STRUKTUREN IN ALLEN DEUTSCHEN KERNKRAFTWERKEN

### 5.1 Vergleich der Aktivierungsrechnungen mit den berechneten Aktivitäten aus 2018

Der erste Schritt zu einer Neubewertung der C-14-Aktivität in aktivierten Strukturen aller deutscher Kernkraftwerke ist ein Vergleich der Aktivierungsrechnungen, deren Ergebnisse in Abschnitt 4.2 zusammengefasst wurden, mit den jeweiligen Ergebnissen, die in der Aktivitätsabschätzung 2018 [BS 18] vorgelegt wurden. Tabelle 5.1 zeigt hier für den Vergleich der jeweiligen Werte für die Kernkraftwerke, für welche die Ergebnisse von vollständigen Aktivierungsrechnungen ausgewertet wurden. Am Ende der Tabelle ist ein mittleres Aktivitätsverhältnis angegeben, welches das Ver-

hältnis der Aktivitäten der Schätzung 2018 zu den dargestellten Aktivierungsrechnungen zeigt, unterteilt nach RDB und RDB-Einbauten.

Tabelle 5.1: Vergleich der C-14-Gesamtaktivitäten für RDB und RDB-E

Kernkraftwerk	RDB		RDB-E	
	2018	2021	2018	2021
KKU	5,63E+10	8,24E+08	2,26E+13	2,61E+12
KKG	5,86E+10	9,92E+08	2,28E+13	5,52E+12
KBR	6,22E+10	2,41E+09	2,72E+13	5,49E+12
KWG	7,12E+10	1,71E+09	3,09E+13	6,11E+12
KKI-2	6,33E+10	3,87E+09	1,44E+13	1,16E+13
GKN-1	2,26E+10	5,44E+09	1,44E+13	9,97E+12
mittl. Verhältnis Daten 2018 zu 2021	36		4,2	

Es wird deutlich, dass die C-14-Aktivität in allen Schätzungen 2018 deutlich überbewertet wurde, wobei für die Angabe der Gesamtaktivität von C-14 für das Endlager Konrad wiederum nur die RDB-E eine Rolle spielen. Das mittlere Aktivitätsverhältnis liegt bei 4,2.

## 5.2 Extrapolation auf die Gesamtaktivität von C-14 in aktivierten Strukturen im Endlager Konrad

Der Grund für die deutliche Überschätzung der Aktivität in den RDB-E (sowie auch in den Strukturen des RDB) liegt vorrangig im konservativen Ansatz des Stickstoff-Anteils in den betreffenden Stählen sowie teilweise in der Überschätzung des Neutronenflusses am jeweiligen Ort der RDB-E. Der in Abschnitt 5.1 gezogene Vergleich für die 6 Kernkraftwerke, für welche detaillierte Daten zugänglich sind, trifft somit zunächst nur auf diese Anlagen zu, da nur für diese der deutlich genauere N-Gehalt in den Stählen für die Aktivierungsrechnungen vorlag. Es kann nicht a priori entschieden werden, ob dasselbe mittlere Verhältnis der 2018 abgeschätzten C-14-Aktivität zur mit deutlich höherem Genauigkeitsgrad in vollständigen Aktivierungsrechnungen berechneten C-14-Aktivität auch für die übrigen, in Tabelle 3.1 aufgelisteten Kernkraftwerke zutreffen wird. Insbesondere für die Prototypreaktoren MZFR und KNK-II sowie für die Kernkraftwerke Greifswald und Rheinsberg wird von einer derartigen Skalierung abgesehen, da andere Materialien verwendet wurden und insbesondere für KGR detaillierte Aktivierungsberechnungen, die in [BS 18] bereits herangezogen wurden, vorliegen.

Da die detaillierten Aktivierungsberechnungen aus [BS 21] nur Kernkraftwerke mit Druckwasserreaktor betreffen, kann das in Abschnitt ermittelte Aktivitätsverhältnis unmittelbar nur auf andere Kernkraftwerke mit Druckwasserreaktor übertragen werden. Für Kernkraftwerke mit Siedewasserreaktor kann jedoch ebenfalls davon ausgegangen werden, dass die in [BS 18] durchgeführten Abschätzungen eine Überschätzung der realen C-14-Aktivität darstellen, da die nun vorliegenden genaueren Rechnungen sowohl auf einer genaueren Kenntnis der chemischen Zusammensetzung der Stähle als auch auf einer genaueren Modellierung des Neutronenflusses beruhen. Im Sinne einer realistisch-konservativen Skalierung wird daher für die SWR-Anlagen nur von einer halb so großen Überschätzung wie für DWR-Anlagen ausgegangen.

Es wird daher insgesamt der folgende Ansatz getroffen:

- Für Prototypreaktoren sowie für KGR und KKR erfolgt keine Skalierung.
- Für ältere Kernkraftwerke westlicher Bauart mit kleinerer Leistung erfolgt ebenfalls keine Skalierung.
- Die Angaben für alle anderen Kernkraftwerke mit Druckwasserreaktor werden mit einem Faktor 0,25 multipliziert.
- Die Angaben für Kernkraftwerke mit Siedewasserreaktor werden mit einem Faktor 0,5 multipliziert.

Auf dieser Basis erhält man als Abschätzung für die Gesamtaktivität von C-14, die als radioaktive Abfälle in aktivierten Strukturen für das Endlager Konrad bestimmt sind, einen Wert in der Größenordnung von  $1,8 \cdot 10^{14}$  Bq. Im Gegensatz zur Abschätzung in [BS 18] liegt dieser Wert nur noch bei etwas weniger als 50 % des Grenzwerts für die Gesamtaktivität von C-14 im Endlager Konrad, welcher bei  $4 \cdot 10^{14}$  Bq liegt.

Schon die gegenüber früher vorliegenden Berechnungen deutlich verbesserte Abschätzung in [BS 18] hatte zu der Einschätzung geführt, dass der Wert für die Gesamtaktivität von C-14 im Endlager Konrad nicht mehr um eine Größenordnung oder mehr, sondern nur noch um einige 10 % überschritten werden würde, sodass die Entsorgung der aktivierten Strukturen im Endlager Konrad kein prinzipielles Problem darstellen würde. Durch die im vorliegenden Bericht dargestellte, im Vergleich zu [BS 18] erneute Verbesserung der Abschätzung wird nun die Erkenntnis gewonnen, dass voraussichtlich alle aktivierten Strukturen aus Kernkraftwerken im Endlager Konrad im Einklang mit dem zugehörigen Grenzwert für die Gesamtaktivität von C-14 stehen. Im nächsten Schritt müsste eine Zusammenstellung der C-14-Aktivität aus anderen Quellen, insbesondere Forschung und Industrie sowie aus aktivierten Strukturen des AVR und THTR (sofern diese für die Endlagerung im Endlager Konrad vorgesehen bzw. zulässig sind) erfolgen, um die Einhaltung des Grenzwerts für die Gesamtaktivität von C-14 durch alle radioaktiven Abfälle einschätzen zu können.

### 5.3 Diskussion der Unsicherheiten

Die Unsicherheiten in der im vorliegenden Bericht dargestellten Herleitung der Gesamtaktivität von C-14 im Endlager Konrad, welche aus aktivierten Strukturen stammt, haben sich gegenüber der Abschätzung in [BS 18] deutlich verringert, sind aber dennoch nicht vernachlässigbar. Die wesentliche Verringerung der Unsicherheiten resultiert

- einerseits aus der Verwendung von genaueren, für die jeweilige Anlage vorliegenden chemischen Analysen der tatsächlich verwendeten Stähle, die nur aus den Angaben des jeweiligen Betreibers der Anlage zugänglich sind,
- andererseits aus der wesentlich genaueren Berechnung des Neutronenflusses und dessen Energiespektrums am jeweiligen Ort der Komponente (RDB-E), welche erst im Rahmen einer vollständigen Aktivierungsrechnung möglich ist.

Die Genauigkeit der Aktivierungsrechnungen wurde jeweils durch Benchmarks mit Dosisleistungsmessungen, insbesondere aber mit Materialproben bestätigt. Dennoch ist nicht für alle aktivierten Stähle aller Kernkraftwerke der Stickstoff-Anteil im Stahl genau genug bekannt. Daher ist davon auszugehen, dass auch die in den Aktivierungsrechnungen berechneten C-14-Aktivitätswerte jeweils zumindest geringfügige, wahrscheinlich aber nicht unerhebliche Überschätzungen der wahren C-14-Aktivitätswerte darstellen. Insofern ist nicht damit zu rechnen, dass der in Abschnitt 5.2

abgeleitete Wert für die Gesamtaktivität von knapp  $2 \cdot 10^{14}$  Bq eine deutliche Unterschätzung der tatsächlich in den aktivierten Strukturen vorliegenden C-14-Gesamtaktivität darstellt.

## **6. LITERATURVERZEICHNIS**

- [ATW 15] P. KRUSE, F. HÜTTNER, P.-W. PHILIPPEN  
Determination of Representative Nitrogen Contents for the Activity Calculation of Core Components with Respect to the C-14 Activity  
atw Vol. 60, Issue 10; 10.2015
- [BEN 07] W. BERNNAT, M. MATTES, G. PFISTER  
Bestimmung der Aktivierung von Komponenten im Kraftwerk Obrigheim  
KE Technologie GmbH, Stuttgart, Abschlussbericht, Juli 2007
- [BFS 14] BUNDESAMT FÜR STRAHLENSCHUTZ  
Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle (Endlagerungsbedingungen, Stand: Dezember 2014) - Endlager Konrad  
Bericht SE-IB-29/08-REV-2
- [BMU 14] BUNDESMINISTERIUM FÜR UMWELT, NATURSCHUTZ, BAU UND REAKTORSICHERHEIT  
Bericht zur Joint Convention on the Safety of Spent Fuel Management and on the Safety of Radioactive Waste Management, 2014
- [BS 18] BRENK SYSTEMPLANUNG GMBH  
Abschätzung der Aktivität von C-14 aus der Aktivierung von Stählen der RDB und RDB-Einbauten deutscher Leistungs- und Prototypreaktoren  
BS-Projekt-Nr. 1503-06, Aachen, 27. Juni 2018  
Bericht erstellt im Rahmen des Vorhabens Nr. 3615E03325/UA3323 der GRS Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit gGmbH
- [BS 21] BRENK SYSTEMPLANUNG GMBH  
Zusammenstellung der C-14-Aktivität aus Aktivierungsrechnungen für RDB, RDB-Einbauten und aktivierte Betonstrukturen in 6 deutschen Kernkraftwerken  
Brenk Systemplanung GmbH, Aachen, Oktober 2021
- [CRA 11] CRAMER, T.; THIERFELDT, S.  
„Bewertung der Abklinglagerung von Großkomponenten aus dem Rückbau kerntechnischer Anlagen in Deutschland“; Bericht zum Forschungsvorhaben SR 0803350 des BMU, Unterauftrag der GRS  
Brenk Systemplanung GmbH, Aachen, 2011

- [EUR 13] RAT DER EUROPÄISCHEN UNION  
Richtlinie 2013/59/EURATOM des Rates vom 5. Dezember 2013 zur Festlegung grundlegender Sicherheitsnormen für den Schutz vor den Gefahren einer Exposition gegenüber ionisierender Strahlung und zur Aufhebung der Richtlinien 89/618/Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 97/43/Euratom und 2003/122/Euratom
- [GRS 89] GRS GESELLSCHAFT FÜR ANLAGEN- UND REAKTORSICHERHEIT GGMBH  
Bestimmung des Aktivitätsinventars in KKW-Abfällen über Schlüsselnuclide  
Bericht GRS-A-1635, Dezember 1989
- [IAE 17] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY  
PRIS – Database on Nuclear Power Reactors  
<https://www.iaea.org/PRIS/home.aspx>, aufgerufen Mai 2017
- [JAN 17] JANIS  
Daten zu C-14  
Datenbank JEFF3.1, 2017
- [KTA 15] KERNTÉCHNISCHER AUSSCHUSS  
Regel KTA 3204: Reaktordruckbehälter-Einbauten  
Fassung 2015-11
- [KTA 03] KERNTÉCHNISCHER AUSSCHUSS  
Regel KTA 3201.1: Komponenten des Primärkreises von Leichtwasserreaktoren  
Teil 1: Werkstoffe und Erzeugnisformen  
Fassung 2003-11
- [NIE 02] NIEDERSTRABER, J.  
Funkenspektrometrische Stickstoffbestimmung in niedriglegierten Stählen unter Berücksichtigung der Einzelfunkenspektrometrie  
Dissertation an der Gerhard-Mercator-Universität – Gesamthochschule Duisburg, 2002  
<https://duepublico.uni-duisburg-essen.de/servlets/DerivateServlet/Derivate-5334/>
- [PEL 14] PREUSSENÉLEKTRA GMBH  
Auswertung von Werkstoffzeugnissen der Kerneinbauten mit Angaben zum Stickstoffgehalt  
Ergebnisse der Zeugnisrecherche in den Anlagen KKV, KKG, KKI, KWG, KKS  
Zusammenstellung vom November 2014; Hannover
- [SUZ 82] SUZUKI, K.  
Reactor Pressure Vessel Materials  
aus "Neutron Irradiation Effects in Reactor Pressure Vessel Steels and Weldments"  
IAEA, 1982, republished Okt. 1998



- [WAG 11] M. WAGNER, U. HESSE, K. HUMMELSHEIM, M. KIRSCH, M. WEHRFRITZ;  
„Bewertung der Abklinglagerung von Großkomponenten aus dem Rückbau kerntechnischer  
Anlagen in Deutschland“; Bericht zum Forschungsvorhaben SR 0803350 des BMU  
GRS, Köln, 2011
- [WIK 18] WIKIPEDIA  
Stichwort „Stahl“  
<https://de.wikipedia.org/wiki/Stahl>, aufgerufen Dez. 2017

**B Bewertung der in radioaktiven Abfällen in Deutschland  
tatsächlich vorliegenden Inventare von alpha-strahlenden  
Nukliden**



# **Bewertung der in radioak- tiven Abfällen in Deutsch- land tatsächlich vorliegen- den Inventare von alpha- strahlenden Radionukliden**

BS-Projekt-Nr. 1808-08

Vorhaben Nr. 4720E03366 – 855366 – UA 3561

erstellt im Auftrag der  
Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit gGmbH (GRS)  
Schwertnergasse 1, Köln

durch die

Brenk Systemplanung GmbH (BS)  
Heider-Hof-Weg 23  
52080 Aachen

04. Mai 2023

## **Anmerkung:**

Dieser Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers (BS) wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers (GRS) übereinstimmen.

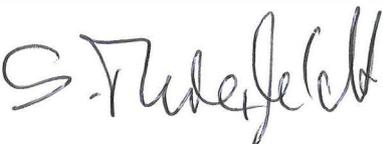


Dieser Bericht wurde von folgenden Bearbeitern erstellt:

- *Dr. Gunhild von Oertzen*
- *Dr. Stefan Thierfeldt*

Es wird versichert, dass dieser Bericht nach bestem Wissen und Gewissen, unparteiisch und ohne Ergebnisweisung angefertigt worden ist.

### ERSTELLUNG, PRÜFUNG UND FREIGABE

erstellt	geprüft	freigegeben
 Unterschrift Projektleiter	 Unterschrift Geschäftsbereichsleiter	 Unterschrift Geschäftsführung



## **ZUSAMMENFASSUNG**

Für das Endlager Konrad existieren verschiedene Aktivitätsgrenzwerte für einzelne Radionuklide, die in den Endlagerungsbedingungen niedergelegt sind. Sie basieren auf verschiedenen Analysen der Auswirkung der ins Endlager verbrachten radioaktiven Abfälle auf das Wirtsgestein, auf Analysen möglicher Störfälle während der Betriebsphase sowie auf Analysen der langfristigen Sicherheit der im Endlager gelagerten Radionuklide.

Im vorliegenden Bericht wird untersucht, welche Daten für die Abschätzung der Alpha-Aktivität der radioaktiven Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung in Deutschland verfügbar sind. Aufgrund der bereits vorhandenen Datenlage wird eine grobe Abschätzung der Alpha-Gesamtaktivität durchgeführt und mit den Konrad Endlagerungsbedingungen verglichen. Wir kommen zu dem Ergebnis, dass die Kapazität des Endlagers für Alpha-Aktivität um mehrere Größenordnungen unterschritten werden wird.



## INHALTSVERZEICHNIS

Seite:

<b>Zusammenfassung .....</b>	<b>i</b>
<b>Inhaltsverzeichnis .....</b>	<b>ii</b>
<b>1. Einleitung .....</b>	<b>1</b>
1.1 Hintergrund.....	1
1.2 Zielstellung .....	1
1.3 Gliederung des Berichts.....	2
<b>2. Radioaktive Abfälle, die Alpha-Aktivität aufweisen.....</b>	<b>2</b>
2.1 Aktivitätsbegrenzungen gem. Endlagerungsbedingungen Konrad .....	2
2.2 Relevante alphastrahlende Nuklide.....	3
2.3 Kernkraftwerke, Forschungsreaktoren und Anlagen des Brennstoffkreislaufs.....	4
2.4 Brennelementherstellung, Anreicherung .....	4
2.5 WAK und VEK.....	4
2.6 Industrie, Forschung .....	5
<b>3. Prognostiziertes Abfallinventar .....</b>	<b>5</b>
3.1 Inventare gemäß Joint Convention Bericht 2021 .....	5
3.1.1 Abgebrannte Brennelemente in Zwischenlagern und in Leistungsreaktoren.....	5
3.1.2 Schwach- bis mittelradioaktive Abfälle im Endlager ERAM.....	5
3.1.3 Schwach- bis mittelradioaktive Abfälle im Endlager Asse II.....	6
3.1.4 Radioaktive Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung.....	7
3.2 Abgebrannte Brennelemente.....	10
3.3 Radioaktive Abfälle .....	10
<b>4. Hochrechnungsfaktoren, Daten.....</b>	<b>11</b>
4.1 Konzept der Hochrechnungsfaktoren nach IAEA (NW-T-1.18) .....	11
4.2 ERAM.....	12
4.3 ASSEKAT .....	15
4.4 ENGIE – Hochrechnungsfaktoren für Betriebsabfälle aus Kernkraftwerken in Belgien.....	17
4.5 NAGRA – Hochrechnungsfaktoren für Stilllegungsabfälle von Kernkraftwerken in der Schweiz.....	18
4.6 MOPRO, ReVK.....	19
4.6.1 Abfallflussverfolgungs- und Produktkontroll-System (AVK):.....	19
4.6.2 Reststofffluss-Verfolgungs- und Kontrollsystem (ReVK):.....	20



<b>5.</b>	<b>Abschätzung der Alpha-Aktivitätsinventare.....</b>	<b>20</b>
5.1	Betrieb der KKW .....	20
5.2	Stilllegung der KKW .....	22
5.3	Beiträge der Forschungsreaktoren .....	23
5.4	Industrie, Medizin und Forschung .....	23
5.5	Landessammelstellen .....	23
5.6	Abfälle aus der Brennelementherstellung .....	24
5.7	WAK/VEK .....	25
5.8	Schätzung der Gesamtmenge .....	25
<b>6.</b>	<b>Fazit.....</b>	<b>27</b>
<b>7.</b>	<b>Literaturverzeichnis .....</b>	<b>28</b>
<b>8.</b>	<b>Abkürzungsverzeichnis .....</b>	<b>31</b>



<b><u>Abbildungsverzeichnis:</u></b>	<b>Seite:</b>
Abbildung 3.1: Anteil Volumeninventar im ERAM nach Herkunft, gem. [BMU 21].....	6
Abbildung 3.2: Anteil Aktivitätsinventar in der Asse nach Herkunft, gem. [BMU 21].....	7
Abbildung 3.3: <u>Volumen-Aufteilung</u> des Bestandes radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung nach Abfallverursachergруппen zum 31. Dezember 2019 gem. [BMU 21].....	7
Abbildung 3.4: Aufteilung des Bestandes radioaktiver Abfälle aus Abbildung 3.3 nach <u>Masse</u> . [BMU 21].....	8
Abbildung 3.5: Zeitlicher Verlauf des kumulierten Anfalls radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung als Abfallgebindevolumen bis zum Jahr 2080 [BMU 21].....	9
Abbildung 3.7: Zuwachsfaktor der radioaktiven Abfälle von 2020 bis 2080 nach Volumen gem. Prognose [BMU 21].....	9
Abbildung 4.1: Darstellung der Regressionsgeraden „Erwartung“, „Prognose“ und „Garantiewert“ für die Korrelation zwischen den Aktivitäten von Co-60 und Pu-239/240 der Abfälle aus dem GKN (links) und dem KWB (rechts) gem. [BS 14].....	14
Abbildung 4.2: Korrelationsmatrix Radionuklide aus „ISS Kataster“ mit Einteilung in Gruppen gem. [BS 22].....	16
Abbildung 4.3: Vergleich der Gesamtaktivitäten aus „ISS Kataster“ (berechnet nach PAI Modul) mit der angegebenen mittleren Aktivität aus „Chargen-mod“.....	17
Abbildung 5.1: Messdaten der spezifischen Gesamt-Alpha-Aktivität aus betrieblichen Abfällen der KKW in der Schweiz .....	21
Abbildung 5.2: Anteilige Alpha-Aktivität nach Abfallverursacher, Abschätzung.....	26

<b><u>Tabellenverzeichnis:</u></b>	<b>Seite:</b>
Tabelle 5.1: Abschätzung der Gesamt-Alpha-Aktivität der KKW-Betriebsabfälle in Deutschland .....	22
Tabelle 5.2: Abschätzung der Gesamt-Alpha-Aktivität der KKW-Betriebs- und Stilllegungsabfälle in Deutschland anhand der spezifischen Aktivitäten im ERAMDOK .....	23
Tabelle 5.3: Bundesländer und Standorte der LSSSt .....	24
Tabelle 5.4: Abschätzung der Gesamt-Alpha-Aktivität für das Endlager Konrad.....	26

## **1. EINLEITUNG**

### **1.1 Hintergrund**

Für das Endlager Konrad existieren verschiedene Aktivitätsgrenzwerte für einzelne Radionuklide, die in den Endlagerungsbedingungen von 2014 [BFS 14] niedergelegt sind. Sie basieren auf Analysen möglicher Störfälle während der Betriebsphase, auf Analysen der Auswirkung der ins Endlager verbrachten radioaktiven Abfälle auf das Wirtsgestein sowie auf Analysen der langfristigen Sicherheit der im Endlager gelagerten Radionuklide.

Von besonderer Bedeutung sind dabei solche Aktivitätsgrenzwerte, die durch reale oder scheinbare Aktivität im Zuge der Einlagerung von radioaktiven Abfällen tangiert werden könnten. Das Adjektiv „scheinbar“ kennzeichnet hierbei Aktivität, die nicht real vorliegt, sondern die sich nur rechnerisch aufgrund von nicht ausreichend genauen Analyse- bzw. Berechnungsverfahren ergibt. Wird die scheinbare Aktivität in gleicher Weise wie die real vorhandene Aktivität bei der Einlagerung von Abfällen in das Endlager Konrad bilanziert, so besteht die Gefahr, dass die zugehörigen Aktivitätsgrenzwerte vorzeitig erreicht werden, so dass weitere noch vorhandene Abfälle nicht mehr in das Endlager verbracht werden können, obwohl die real vorhandene Aktivitätsmenge die Grenzwerte bei weitem noch nicht ausschöpft.

### **1.2 Zielstellung**

Vor dem geschilderten Hintergrund gilt es zu bewerten, ob

- die bisher an schon konditionierten Abfällen ermittelten Alpha-Aktivitäten sowie
- die für zukünftig anfallende Abfälle abzuschätzenden Alpha-Aktivitäten

in Summe kompatibel sind mit dem Grenzwert der Gesamtaktivität der alphastrahlenden Radionuklide im Endlager Konrad ( $1,5 \cdot 10^{17}$  Bq gem. [BFS 14], vgl. Abschnitt 2.1). Ein kritischer Punkt ist hierbei die Zugänglichkeit und Verfügbarkeit von Daten.

Folgende Daten wurden für die vorliegende Abschätzung der Alpha-Aktivität der radioaktiven Abfälle für das Endlager Konrad herangezogen:

- 1) Entsorgungswerk für Nuklearanlagen GmbH: im Zwischenlager Nord (ZLN) eingelagerte Abfälle;
- 2) Kerntechnische Entsorgung Karlsruhe GmbH: durch die Entsorgungsbetriebe (ehem. HDB) bearbeitete Abfälle;
- 3) Altabfälle im ehemaligen Endlager Morsleben (ERAM) – diese Abfälle sind für das Endlager Konrad irrelevant, es lassen sich hieraus aufgrund des guten Datenstandes allerdings Rückschlüsse auf die Vorgehensweise zur Berechnung der Alpha-Aktivitäten in Betriebsabfällen aus den letzten Jahrzehnten ziehen;
- 4) Altabfälle in der Schachanlage Asse II – diese Abfälle sind ebenfalls für das Endlager Konrad irrelevant, es lassen sich hieraus aber Rückschlüsse auf die Alpha-Aktivität speziell von Wiederaufarbeitungsabfällen ziehen;

- 5) Abfälle in einigen Landessammelstellen;
- 6) Stilllegungsabfälle diverser Kernkraftwerke sowie anderer kerntechnischen Anlagen;
- 7) im Abfalllager Gorleben (ALG) eingelagerte Abfälle (zum Stichtag 31.12.2013).

Auf dieser Datenbasis kann hochgerechnet werden, wie hoch nach Beendigung der Nutzung der Kernenergie und Durchführung aller Rückbauaufgaben die im Endlager Konrad nominell einzulagernde Gesamt-Alpha-Aktivität ist. Insbesondere kann eine klare Tendenzaussage getroffen werden, ob der Grenzwert für die Gesamt-Alpha-Aktivität deutlich eingehalten oder deutlich überschritten werden wird. Für den Fall, dass die Abschätzung der nominell einzulagernden Gesamt-Alpha-Aktivität eher in Höhe des Grenzwerts liegen wird, muss die Datengrundlage erweitert und verfeinert werden und es müssen zusätzliche Daten von einzelnen Anlagen abgefragt werden.

Im zweiten Schritt können Ansätze aufgezeigt werden, wie die Konservativität der Abschätzung der Aktivität der Alphastrahler auf der Basis statistischer Methoden beschränkt werden kann.

### **1.3 Gliederung des Berichts**

Der vorliegende Bericht führt in Abschnitt 2 zunächst eine Übersicht der radioaktiven Abfälle, die Alpha-Aktivität enthalten, auf. Abschnitt 3 gibt eine Übersicht über das prognostizierte Abfallinventar. In Abschnitt 4 werden Datenbasis und Hochrechnungsfaktoren speziell für die Ermittlung bzw. Angabe der Alpha-Aktivität angegeben. Abschnitt 5 führt die Daten der vorherigen Abschnitte zusammen und enthält auf dieser Basis eine Abschätzung des Alpha-Aktivitätsinventars. In Abschnitt 6 wird das Fazit der Bewertung gezogen.

## **2. RADIOAKTIVE ABFÄLLE, DIE ALPHA-AKTIVITÄT AUFWEISEN**

### **2.1 Aktivitätsbegrenzungen gem. Endlagerungsbedingungen Konrad**

Die Endlagerbedingungen Konrad [BFS 14] enthalten im Anhang II diverse Aktivitätsbegrenzungen sowohl für den Abfall in einzelnen Abfallbehältern als auch für das Endlager Konrad als Ganzes. Diese Aktivitätsbegrenzungen sind in den folgenden Tabellen aufgeführt:

- Tab. 2: Garantiewerte für Radionuklide und Radionuklidgruppen pro Abfallgebinde, die aus der Sicherheitsanalyse für den bestimmungsgemäßen Betrieb resultieren. Angaben in Bq pro Abfallgebinde;
- Tab. 3: Aktivitätsgrenzwerte für Leitnuklide und nicht spezifizierte sonstige  $\alpha$ - und  $\beta$ -/ $\gamma$ -Strahler, die aus der Störfallanalyse resultieren. Angaben in Bq pro Abfallgebinde;
- Tab. 4: Aktivitätsgrenzwerte für weitere Radionuklide, die aus der Störfallanalyse resultieren. Angaben in Bq pro Abfallgebinde;
- Tab. 5: Aktivitätswerte für Leitnuklide und nicht spezifizierte sonstige  $\alpha$ - und  $\beta$ -/ $\gamma$ -Strahler, die aus der Analyse zur thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins resultieren. Angaben in Bq pro Abfallgebinde;
- Tab. 6: Aktivitätswerte für weitere Radionuklide, die aus der Analyse zur thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins resultieren. Angaben in Bq pro Abfallgebinde;

- Tab. 7a: Aktivitätswerte für spaltbare Stoffe außer Natururan und abgereichertem Uran, die aus der Analyse zur Kritikalitätssicherheit resultieren. Angaben in Bq pro Abfallgebinde;
- Tab. 7b: Massen spaltbarer Stoffe außer Natururan und abgereichertem Uran, die aus der Analyse zur Kritikalitätssicherheit resultieren. Angaben in g pro Abfallgebinde;
- Tab. 8: Maximal einlagerbare Aktivitäten relevanter Radionuklide und Radionuklidgruppen am Ende der Betriebsphase des Endlagers Konrad. Angaben in Bq;
- Tab. 9 Mittlere Aktivitätskonzentrationen relevanter Radionuklide und Radionuklidgruppen. Angaben in Bq/m<sup>3</sup>;
- Tab. 10: Zusätzliche Radionuklide, die in radioaktiven Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung enthalten sein können.

Tabellen 2 bis 7b beziehen sich ausschließlich auf Aktivitätsangaben für einzelne Abfallgebinde und Tabelle 10 enthält lediglich eine Auflistung zusätzlicher Radionuklide, die in radioaktiven Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung enthalten sein können. Diese Daten sind für die vorliegende Betrachtung nicht relevant.

Die Gesamtaktivität im Endlager Konrad wird dagegen durch die Werte in den Tabellen 8 und 9 begrenzt. In Tabelle 8 sind die maximal einlagerbaren Aktivitäten relevanter Radionuklide und Radionuklidgruppen am Ende der Betriebsphase des Endlagers Konrad angegeben. Aus diesen Aktivitätswerten und dem maximal einlagerbaren Abfallgebindevolumen von 303.000 m<sup>3</sup> resultieren mittlere Aktivitätskonzentrationen, die in Tabelle 9 aufgeführt sind.

Im Hinblick auf alphastrahlende Radionuklide enthält Tabelle 8 aus [BFS 14] den Grenzwert  $1,5 \cdot 10^{17}$  Bq. Gegen diesen Wert wird im Folgenden geprüft, ob die teilweise erheblichen Konservativitäten bei der Aktivitätsermittlung für radioaktive Abfälle und die hieraus resultierende hohe (Schein-)Aktivität der alphastrahlenden Radionuklide bei der Bilanzierung aller einzulagernden Gebinde die Gefahr bergen, dass dieser Grenzwert für die Gesamtaktivität überschritten werden könnte.

## 2.2 Relevante alphastrahlende Nuklide

**U-232, U-233, U-234, Np-237, U-236, U-238** sind Kernbrennstoffe, natürliche Uranisotope bzw. Produkte aus Neutroneneinfangreaktionen dieser Nuklide. Ihr Aktivitätsanteil in radioaktivem Abfall ist insgesamt gering.

**U-235** ist ein Kernbrennstoffnuklid, dessen Aktivitätsanteil meist gering ist. Da es aber auch bei geringeren Aktivitätsinventaren einen wesentlichen Beitrag zur Masse des insgesamt im Abfall enthaltenen Kernbrennstoffes leisten kann, kann es ggf. für Nuklidvektoren für radioaktive Abfälle relevant sein.

**Pu-238, Pu-239/240, Pu-241** sowie **Am-241** werden durch Neutronenreaktionen bzw. Zerfallsprozesse von Uran- bzw. Transuranisotopen erzeugt. Sie tragen den wesentlichen Anteil der Alpha-Aktivität aus kerntechnischen Anlagen bei. Am-241 hat in Abfällen aus Kernkraftwerken mit Leichtwasserreaktor (nach einigen Jahren Abklingzeit) in der Regel den höchsten Aktivitätsanteil aller alphastrahlenden Radionuklide.

**Cm-242, Cm-243/244** sind Transurane, die durch Neutronenreaktionen bzw. Zerfallsprozesse aus dem Kernbrennstoff gebildet werden.

### **2.3 Kernkraftwerke, Forschungsreaktoren und Anlagen des Brennstoffkreislaufs**

Radioaktive Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung, die in das Endlager Konrad verbracht werden, schließen die Abfälle aus

- Forschungseinrichtungen,
- Anlagen der kerntechnischen Industrie,
- Kernkraftwerken (Betriebsabfälle)
- stillgelegten Kernkraftwerken (Stilllegungsabfälle),
- den Landessammelstellen und
- der Wiederaufarbeitung im Inland ein.

Die Alpha-Aktivität dieser Abfälle liegt im Wesentlichen als Kontamination von Abfallmaterialien vor.

### **2.4 Brennelementherstellung, Anreicherung**

Mit der gewerblichen Nutzung der Kernenergie in Deutschland entstanden in den westlichen Bundesländern neben den Leistungsreaktoren auch andere Anlagen und Einrichtungen der kerntechnischen Industrie sowie Anlagen und Einrichtungen zur Behandlung und Lagerung aller anfallenden radioaktiven Abfälle.

Am Standort Hanau wurden Anlagen zur Herstellung von Uran-, HTR- und MOX-Brennelementen betrieben. Sie sind inzwischen stillgelegt und abgebaut.

In Betrieb sind eine Urananreicherungsanlage in Gronau und eine Anlage zur Brennelementfertigung in Lingen.

Die radioaktiven Abfälle aus der Herstellung von Brennelementen (BE) und aus der Anreicherung enthalten keine Aktivierungsprodukte (sofern keine MOX-BE gefertigt werden), demnach besteht der wesentliche Anteil an Alpha-Aktivität aus der Zerfallsreihe des natürlichen Urans. Uran mit seiner relativ niedrigen spezifischen Aktivität liefert als Gesamtaktivität demnach nur einen geringen Beitrag zur Alpha-Aktivität, die im Endlager Konrad einzulagern ist.

### **2.5 WAK und VEK**

Die Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) wurde fast zwei Jahrzehnte lang betrieben. Nachdem die Wiederaufarbeitung im Ausland durchgeführt wurde, wurde auch die Forschung zur Wiederaufarbeitung eingestellt. Für die im Zuge des Rückbaus der WAK notwendige Behandlung der hochradioaktiven flüssigen Abfälle wurde die Verglasungseinrichtung Karlsruhe (VEK) errichtet, die von 2009 bis 2010 betrieben wurde.

Durch das Vorliegen eines breiten Spektrums alphastrahlender Nuklide ist die Abschätzung der Alpha-Aktivität der radioaktiven Abfälle aus dem Rückbau der WAK und der VEK kompliziert und der Anteil der Alpha-Aktivität unsicher.

## **2.6 Industrie, Forschung**

Laut Joint-Convention-Bericht 2019 [BMU 20] besteht der Bestand radioaktiven Abfalls mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung in Deutschland dem Volumen nach zu etwa einem Drittel aus Abfällen aus Forschungseinrichtungen. Einige dieser Abfälle wurden an die Schachtanlage Asse II abgegeben. Demnach können die Daten aus der ASSEKAT Anhaltspunkte zur Nuklidzusammensetzung dieser Abfälle liefern.

## **3. PROGNOSTIZIERTES ABFALLINVENTAR**

### **3.1 Inventare gemäß Joint Convention Bericht 2021**

Gemäß Deutschlands siebtem Bericht zur Joint Convention vom August 2020 [BMU 20] sind Inventare an Mengen, Masse und Aktivität nach Herkunftsort und Art der Abfälle prognostiziert worden. Die dort angegebenen Inventare beruhen unter anderem auf dem Nationalen Entsorgungsprogramm [BMU 15] sowie auf dem Verzeichnis radioaktiver Abfälle des BMUV [BMU 17]. Auf dieser Basis wird in den folgenden Unterabschnitten eine kurze Übersicht der abgeschätzten Abfallmengen gegeben.

#### **3.1.1 Abgebrannte Brennelemente in Zwischenlagern und in Leistungsreaktoren**

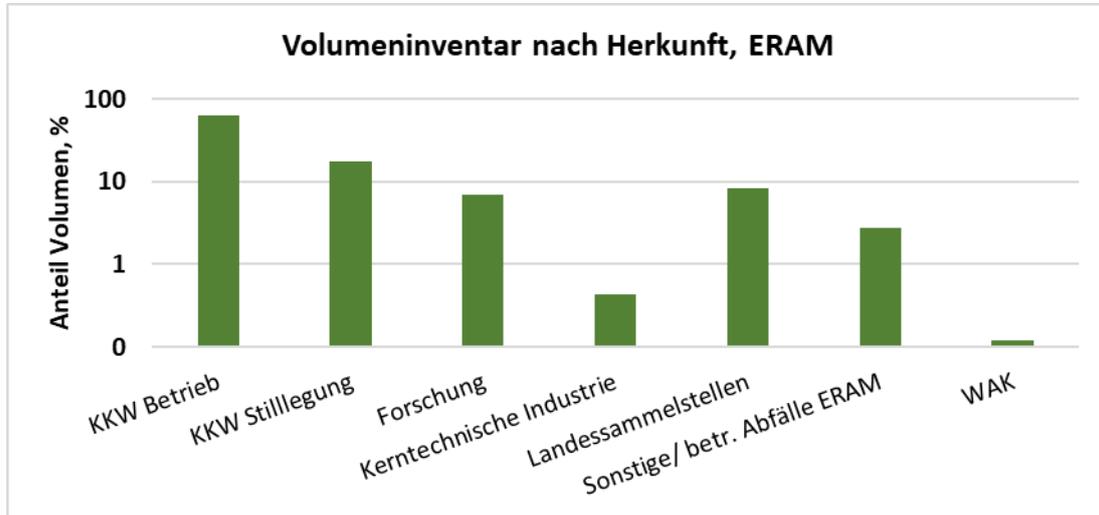
Das Inventar abgebrannter Brennelemente (Abschnitt 3.1.1) ist für die aktuellen Untersuchungen nicht relevant, da diese Abfälle in das Endlager für wärmeentwickelnde radioaktive Abfälle verbracht werden sollen (oder bereits anderweitig, z. B. durch Wiederaufarbeitung, entsorgt worden sind). Da ein Endlager für die abgebrannten Brennelemente und wärmeentwickelnde radioaktive Abfälle noch nicht verfügbar ist, werden die anfallenden Brennelemente zwischengelagert.

#### **3.1.2 Schwach- bis mittelradioaktive Abfälle im Endlager ERAM**

Im Endlager für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM) sind in der Zeit von 1971 bis 1991 und von 1994 bis 1998 ca. 37.000 m<sup>3</sup> schwach- und mittelradioaktive Abfälle mit vergleichsweise niedrigen Konzentrationen an Alphastrahlern eingelagert worden. Die Summenaktivität aller endgelagerten radioaktiven Abfälle beträgt ca.  $8,2 \cdot 10^{13}$  Bq, die Aktivität der Alphastrahler ca.  $4,7 \cdot 10^{11}$  Bq (Stand 31. Dezember 2019) [BMU 20]. Auch dieses Aktivitätsinventar ist für die aktuellen Untersuchungen in Bezug auf das Endlager Konrad nicht direkt relevant, da diese Abfälle bereits endgelagert sind. Jedoch kann die verfügbare Datenlage zur Extrapolation auf noch zu bestimmende Aktivitätsinventare hinzugezogen werden.

Die Herkunft der Abfälle im ERAM ist nach deren Volumenanteil aufgeschlüsselt, siehe Abbildung 3.1 (logarithmische Skalierung). Demnach stammen mehr als 80 % der Abfälle aus dem Betrieb oder der Stilllegung der KKW.

Abbildung 3.1: Anteil Volumeninventar im ERAM nach Herkunft, gem. [BMU 20]



Das Aktivitätsinventar liegt für das ERAM nach Nukliden aufgeschlüsselt vor. Die Summenaktivität für alle endgelagerten radioaktiven Abfälle beträgt ca.  $8,2 \cdot 10^{13}$  Bq, die Aktivität der Alphastrahler ca.  $4,7 \cdot 10^{11}$  Bq [BMU 20]. Demnach beträgt der Aktivitätsanteil der Alphastrahler hier nur ca. 0,6 % an der Gesamtaktivität.

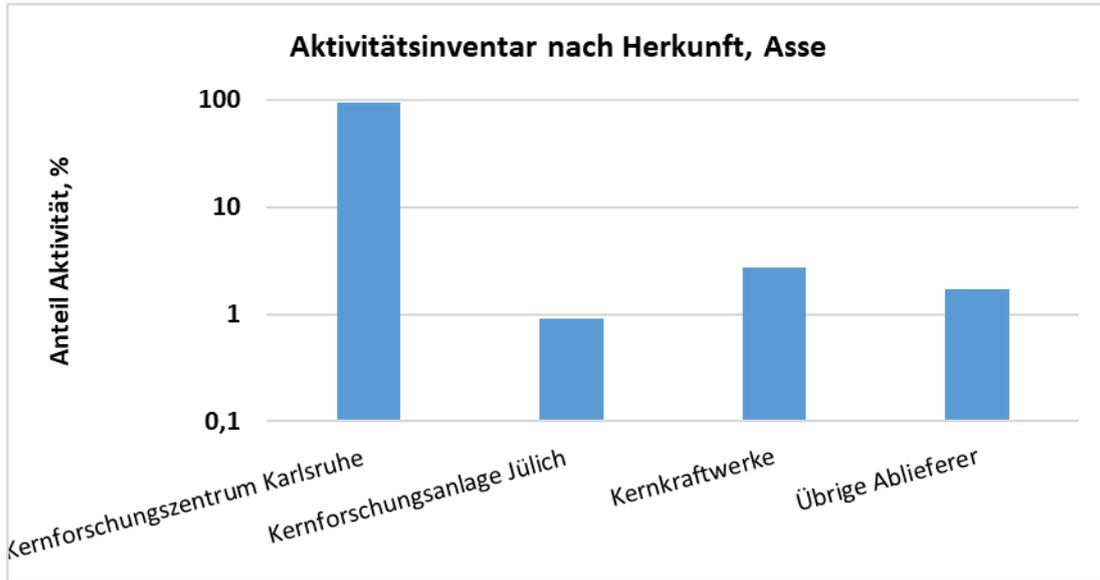
### 3.1.3 Schwach- bis mittelradioaktive Abfälle im Endlager Asse II

In der Schachanlage Asse II begann 1967 die Einlagerung von schwachradioaktiven Abfällen und 1972 die Einlagerung mittelradioaktiver Abfälle. 1978 endeten die befristeten Einlagerungsgenehmigungen. Es wurde entschieden, dass alle in der Schachanlage Asse II eingelagerten Abfälle rückgeholt werden sollen. Da die Abfälle nach der Rückholung nicht in das Endlager Konrad abgegeben werden, ist das Aktivitätsinventar der Schachanlage Asse II daher für die vorliegenden Untersuchungen nicht relevant. Die Daten aus der ASSEKAT können jedoch zur Extrapolation hinzugezogen werden. Die insgesamt eingelagerten 125.787 Abfallgebinde mit einem Abfallgebindevolumen von ca. 47.000 m<sup>3</sup> und einer Gesamtmasse von ca. 89.000 Mg hatten zum Stichtag 31. Dezember 2019 eine Gesamtaktivität ca.  $2,2 \cdot 10^{15}$  Bq, wovon die Alpha-Aktivität ca.  $4,1 \cdot 10^{14}$  Bq ausmachte [BMU 20]. Demnach wird die Alpha-Aktivität auf 18,6 % der Gesamtaktivität geschätzt.

Dabei wird noch unterschieden zwischen schwachradioaktiven Abfällen, die gem. [BMU 20] eine Gesamtaktivität von  $1,69 \cdot 10^{15}$  Bq bzw. 80 % der Gesamtaktivität aufweisen, sowie mittelradioaktiven Abfällen mit ca. 20 % der Gesamtaktivität bzw.  $4,64 \cdot 10^{14}$  Bq.

Die Herkunft der Abfälle in der Asse ist fast ausschließlich auf das Kernforschungszentrum Karlsruhe zurückzuführen, mit Beiträgen von insgesamt ca. 5% von den drei anderen Zulieferern zusammen, wie in Abbildung 3.2 in logarithmischer Skalierung gezeigt wird.

Abbildung 3.2: Anteil Aktivitätsinventar in der Asse nach Herkunft, gem. [BMU 20]



### 3.1.4 Radioaktive Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung

Die bis Ende 2019 kumulierte Menge radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung der verschiedenen Abfallverursacher wird in Abbildung 3.3 nach Volumen und in Abbildung 3.4 nach Masse dargestellt. Dabei handelt es sich gem. [BMU 20] um 20.156 Mg Abfälle mit einem Volumen von 124.736 m<sup>3</sup>. Ein geringer Anteil dieser Abfälle (146 m<sup>3</sup>) ist nach aktueller Einschätzung nicht für eine Endlagerung im Endlager Konrad geeignet.

Abbildung 3.3: Volumen-Aufteilung des Bestandes radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung nach Abfallverursachergruppen zum 31. Dezember 2019 gem. [BMU 20]

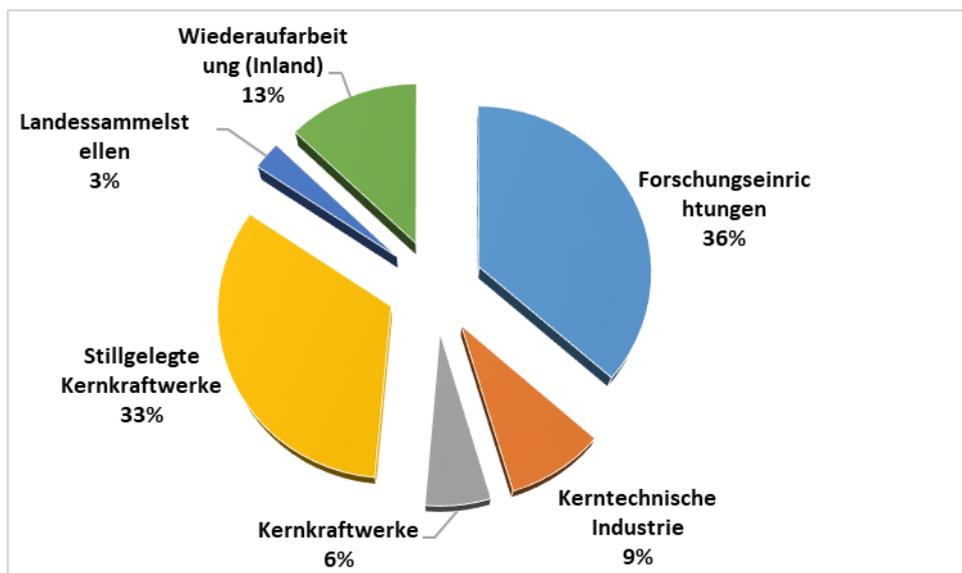
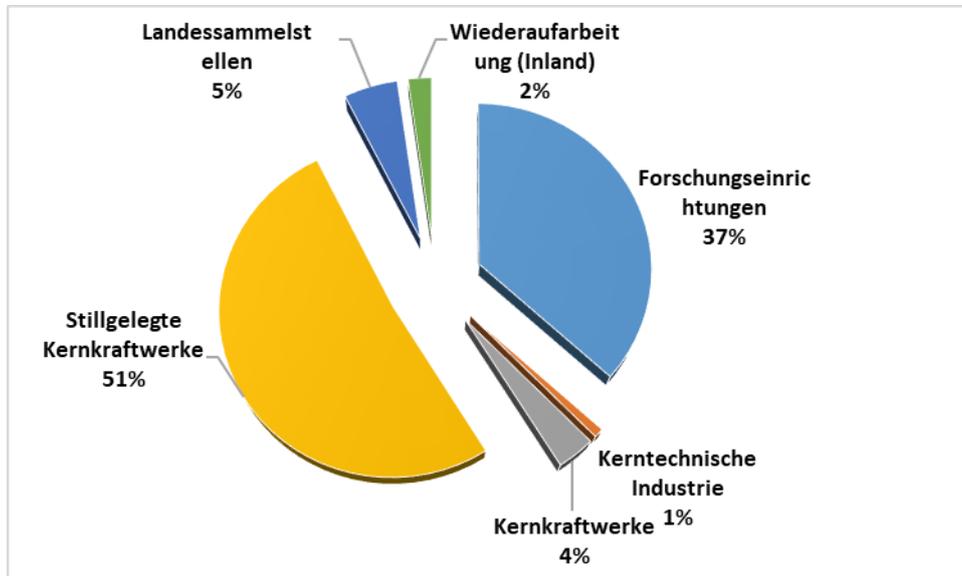
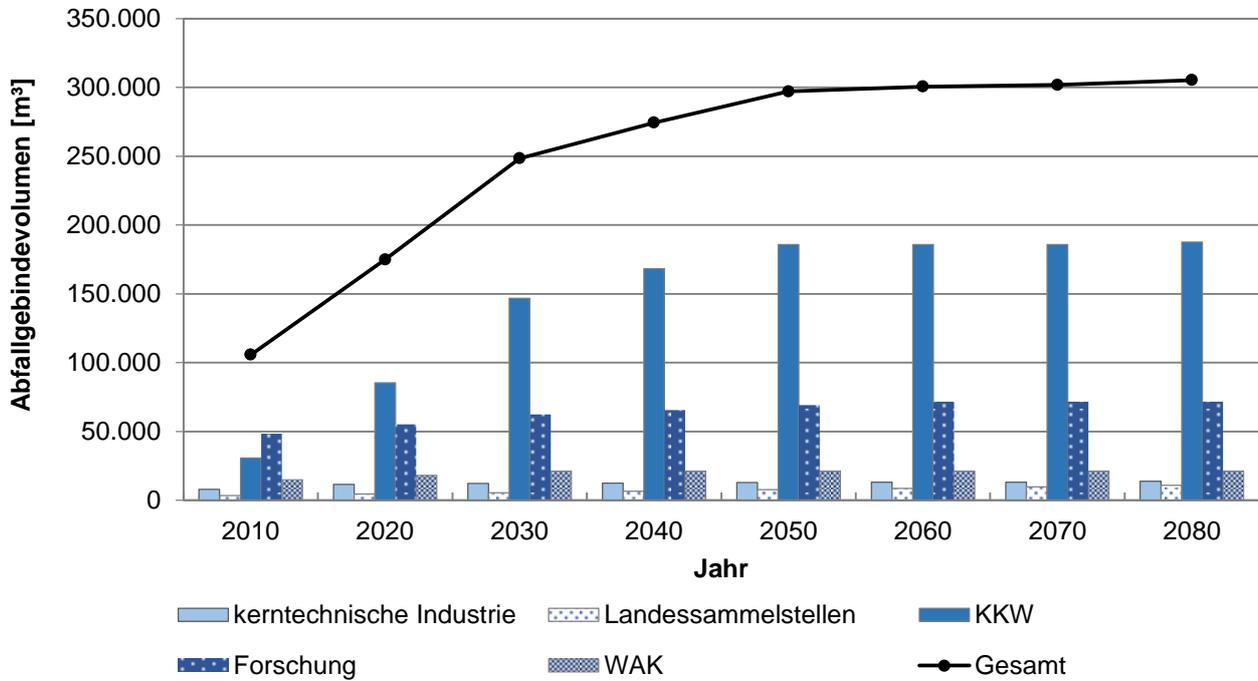


Abbildung 3.4: Aufteilung des Bestandes radioaktiver Abfälle aus Abbildung 3.3 nach Masse.  
[BMU 20]



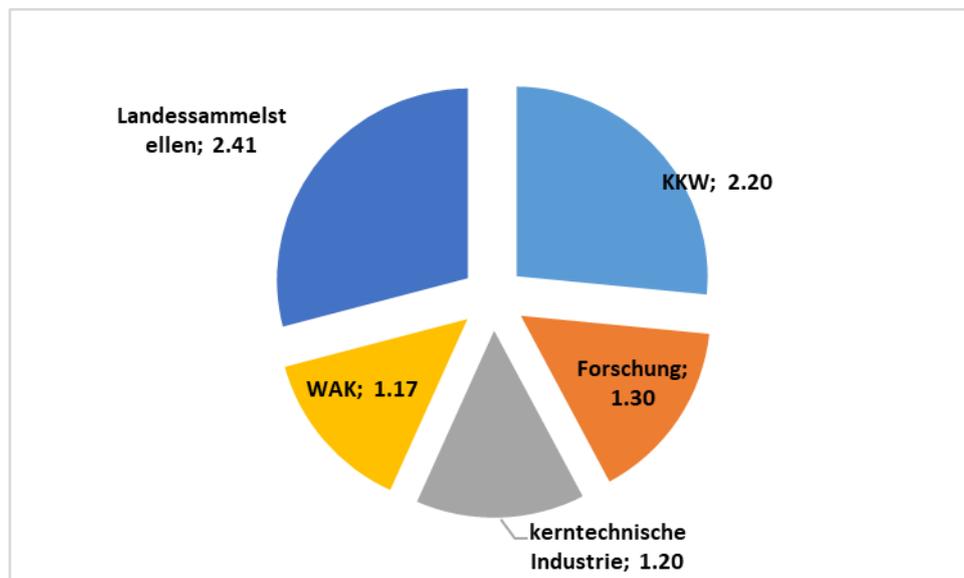
Für die Prognose der Volumina der radioaktiven Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung wurden folgende Randbedingungen angenommen: Für jeden Kernkraftwerksblock werden die Betriebsabfälle pro Jahr mit 45 m<sup>3</sup> Abfallgebindevolumen (konditionierter Abfall) unterstellt. In einer vierjährigen Phase des Übergangs vom Betrieb zur Stilllegung läuft das Stilllegungsgenehmigungsverfahren ab. In diesem Zeitraum fallen weiterhin Betriebsabfälle an. Für die Stilllegung selbst wurden im Mittel ca. 5.000 m<sup>3</sup> je Leichtwasserreaktor berücksichtigt. Der zeitliche Verlauf des von den Abfallverursachern erwarteten zukünftigen Abfallanfalls ist in Abbildung 3.5 modellmäßig wiedergegeben. Aus dieser Abbildung wird ersichtlich, dass nach 2050 keine weiteren großen Abfallmengen mehr zu erwarten sind.

Abbildung 3.5: Zeitlicher Verlauf des kumulierten Anfalls radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung als Abfallgebinder Volumen bis zum Jahr 2080 [BMU 20]



Der prognostizierte Zuwachs der radioaktiven Abfälle der einzelnen Abfallverursacher bis zur Einlagerung im Endlager ist unterschiedlich. In Abbildung 3.6 wird der noch erwartete Zuwachsfaktor nach Volumen zusammengefasst. Der größte Volumenzuwachs (etwas mehr als Verdoppelung) wird demnach bei den Landessammelstellen und als Folge des Rückbaus der KKW erwartet.

Abbildung 3.6: Zuwachsfaktor der radioaktiven Abfälle von 2020 bis 2080 nach Volumen gem. Prognose [BMU 20]



### 3.2 Abgebrannte Brennelemente

In Deutschland sind bis Ende des Jahres 2019 insgesamt 15.777 Mg Schwermetall (SM) in Form von abgebrannten Brennelementen aus dem Betrieb der Leichtwasserreaktoren angefallen. Hiervon lagern an den Standorten der Reaktoren in den Abklingbecken und den zentralen oder dezentralen Brennelemente-Zwischenlagern insgesamt 9.104 Mg SM. Zumeist im europäischen Ausland wiederaufgearbeitet wurden 6.346 Mg SM und 327 Mg SM wurden anderweitig entsorgt [BMU 20].

Neben den Leistungsreaktoren wurden in der Bundesrepublik Deutschland acht Versuchs- und Demonstrationsreaktoren betrieben, die sich alle in Stilllegung befinden oder bereits vollständig abgebaut sind. In Summe sind aus deren Betrieb 189,6 Mg SM angefallen, die teilweise im In- oder Ausland wiederaufgearbeitet wurden oder zwischengelagert werden [BMU 20].

Für das Aktivitätsinventar in den abgebrannten Brennelementen wird von Uranoxid-Brennstoff ausgegangen, dessen nuklidspezifische Aktivität mittels eines anerkannten Abbrandprogramms ermittelt wird. Die Gesamtaktivität aller gelagerten abgebrannten Brennelemente wird mit  $2,6 \cdot 10^{20}$  Bq angegeben [BMU 20].

Unter den Randbedingungen des vom Deutschen Bundestag beschlossenen Dreizehnten Gesetzes zur Änderung des Atomgesetzes vom 31. Juli 2011 ergibt sich, dass ab dem 1. Januar 2020 bis zur endgültigen Abschaltung aller Anlagen noch etwa 1.688 Mg SM (einschließlich Restcores) an abgebrannten Brennelementen anfallen werden [BMU 20].

### 3.3 Radioaktive Abfälle

Radioaktive Abfälle aus dem Betrieb und der Stilllegung von kerntechnischen Anlagen sind bis zu ihrer Verbringung in ein Endlager zwischenzulagern. Gegenwärtig stehen für die Abfälle neben Einrichtungen an den Standorten der Kernkraftwerke die Abfall-Zwischenlager Unterweser, Biblis, Ahaus, Gorleben, Obrigheim, Philippsburg, Stade, Würgassen, die EVU-Halle des Zwischenlagers Mitterteich, die Zwischenlager der DAHER Nuclear Technologies GmbH in Hanau, das Zwischenlager Nord der Entsorgungswerk für Nuklearanlagen GmbH in Rubenow, das Zwischenlager Rossendorf des VKTA sowie die Zwischenlagerkapazitäten der Kerntechnische Entsorgung Karlsruhe GmbH und der Jülicher Entsorgungsgesellschaft für Nuklearanlagen mbH zur Verfügung.

Das Verzeichnis radioaktiver Abfälle [BMU 17] unterscheidet grundsätzlich zwischen

- bestrahlten Brennelementen und radioaktiven Abfällen aus deren Wiederaufarbeitung sowie
- sonstigen radioaktiven Abfällen.

Erstere zählen zu den wärmeentwickelnden Abfällen und werden demnach für das Endlager Konrad nicht berücksichtigt. Die sonstigen Abfälle gehören bis auf wenige Ausnahmen zu den Abfällen, die an das Endlager Konrad abgegeben werden sollen. Dabei wird unterschieden zwischen

- Rohabfällen: unverarbeitete, teilweise vorsortierte, radioaktive Abfälle in ihrer Entstehungsform;
- vorbehandelte Abfälle: radioaktive Rohabfälle, die vorbehandelt wurden und für die weiteren Behandlungsschritte vorgesehen sind;
- konditionierte Abfallprodukte: in Innenbehältern verpackte Abfallprodukte, die in standardisierte, zur Endlagerung vorgesehene Behältergrundtypen (Endlagerbehälter) eingebracht werden sollen. Die Produkte werden nach qualifizierten Verfahren hergestellt. Ihre Verarbeitung

ist abgeschlossen und unterliegt bis auf eine ggf. erforderliche Nachtrocknung voraussichtlich keiner physikalischen oder chemischen Veränderung durch Behandlungsschritte mehr. Diese Abfälle müssen für die Endlagerung noch in einen Endlagerbehälter verpackt werden;

- Endlagergebinde: in standardisierten Endlagerbehältern verpackte Abfallprodukte (mit oder ohne Innenbehälter). Die Produkte werden nach qualifizierten Verfahren hergestellt.

Die gelisteten Inventare entsprechen denen im Joint-Convention-Bericht [BMU 20], dessen Aktualisierung den Stand Dezember 2019 abbildet.

## **4. HOCHRECHNUNGSFAKTOREN, DATEN**

### **4.1 Konzept der Hochrechnungsfaktoren nach IAEA (NW-T-1.18)**

Die Annahmekriterien von Zwischen- oder Endlagereinrichtungen legen üblicherweise Grenzwerte für die Aktivität einzelner Nuklide fest. Da nur wenige der einzulagernden Nuklide für einfache Messungen infrage kommen, z.B. durch (nichtzerstörende) gammaspektrometrische Messungen, wurden Hochrechnungsfaktoren (scaling factors, SF) für die Ermittlung der Aktivität der schwer messbaren (difficult-to-measure, DTM) Nuklide aus der Aktivität der einfach messbaren (easy-to-measure, ETM) entwickelt. Das Konzept wird im IAEA Technical Report [IAE 09] beschrieben.

Wesentlicher Faktor für die Eignung von Hochrechnungsfaktoren ist die gemeinsame Herkunft der zueinander in Beziehung gesetzten Nuklide, wie z. B. der Produktionsmechanismus oder das Transportverhalten in der kerntechnischen Anlage. Als einfach messbare Schlüsselnuclide mit ausreichend langer Halbwertszeit fungieren in der Regel Co-60 und Cs-137. Die Korrelation mit DTM-Nukliden beruht zumeist auf empirischen Beobachtungen, die für eine bestimmte kerntechnische Anlage ermittelt wurden. Oftmals wird die Korrelation zur Bestimmung der Aktivität der alphastrahlenden Radionuklide zunächst zwischen z. B. Cs-137 oder Co-60 und Pu-239+240 ermittelt, um dann aus der Korrelation zwischen Pu-239+240 mit anderen Transuranen (TRU) wie Cm-244 oder Am-241 einen Hochrechnungsfaktor zu ermitteln.

Hochrechnungsfaktoren lassen sich nur aus unabhängigen Datenpaaren ermitteln, d. h. für die Bestimmung müssen Messdaten für beide Parametersätze (Schlüsselnuclid und DTM-Nuclid) existieren.

Für die Ermittlung eines Hochrechnungsfaktors wird in der Regel ein Ansatz über die lognormale Verteilung der Aktivitätskonzentrationen oder spez. Aktivitäten der in Beziehung zu setzenden Nuklide als auch deren Verhältnis zueinander verwendet. Der Hochrechnungsfaktor wird als Steigung der Trendlinie ermittelt, wenn beide Aktivitätskonzentrationen logarithmisch gegeneinander aufgetragen werden. Allerdings unterscheiden sich die Herangehensweisen unterschiedlicher Länder bezüglich der veranschlagten Konservativität, die sich in der konkreten statistischen Interpretation der Daten zur Berechnung der Hochrechnungsfaktoren niederschlägt. Ein maßgeblicher Faktor in dieser Hinsicht ist auch das relative Alter der Daten zu Aktivitätskonzentrationen.

In Deutschland wird das obere Konfidenzniveau für die Korrelationsanalyse bei der Festlegung von Skalierungsfaktoren verwendet. Dieser Ansatz kann zu extrem konservativen Hochrechnungsfaktoren führen, insbesondere in Fällen, in denen die Datenlage spärlich ist und die Daten stark streuen.

In den folgenden Abschnitten werden Hochrechnungsfaktoren aus Datenbanken dargestellt, auf deren Grundlage Rückschlüsse für sinnvoll zu wählende Hochrechnungsfaktoren zwischen der Gesamt-Alpha-Aktivität und der Aktivität von Schlüsselnukliden gezogen werden können.

## **4.2 ERAM**

Die Altabfälle im ehemaligen Endlager Morsleben (ERAM) stammen aus

- dem Betrieb von Kernkraftwerken (KKW),
- der Stilllegung von kerntechnischen Anlagen,
- der kerntechnischen Industrie,
- Forschungseinrichtungen,
- Landessammelstellen bzw. direkt von Kleinverursachern und
- dem Umgang sonstiger Anwender.

Die Abfalldaten der eingelagerten radioaktiven Abfälle sind dokumentiert und nach Herkunftsort, Gebindeart und Aktivitätsinventar archiviert.

Die Erfassung der Aktivität der abgegebenen Abfälle erfolgte in den beiden Einlagerungszeit-räumen 1971 bis 1991 (ausschließlich Abfälle aus der ehemaligen DDR) und 1994 bis 1998 (Abfälle aus dem gesamten Gebiet der heutigen BRD) unterschiedlich. Heute sind diese Daten in zwei nebeneinanderstehenden Datenbanken (ERAPROT für das Abfallaufkommen bis 1991 und ERAMDOK für das Aufkommen ab 1994) erfasst. Da die Anforderungen an die Deklaration der Abfälle in der Zeit bis 1991 nicht den heutigen Anforderungen entsprachen und mittlerweile bekannt ist, dass die Angaben im ERAPROT an verschiedenen Stellen unvollständig bzw. nichtzutreffend sind, wurden die Inventarangaben für den Einlagerungszeitraum 1971 bis 1991 außerhalb des ERAPROT mehrfach korrigiert. Die nachträglich vom BfS durchgeführten Abschätzungen und Korrekturen zum Inventar der potenziell langzeitsicherheitsrelevanten Radionuklide sind mit erheblichen Ungewissheiten verbunden.

Die zwischen 1994 und 1998 eingelagerten Abfälle stammten von

- 23 Kernkraftwerksblöcken der EVU (inkl. KWB, GKN, KBR, KGA, KGG, KKI1, KKI2, KKB, KKE, KKG, KKK, KKP, KKS, K KU, KWG, KWO, KWW, MKA und THT)
- 3 kerntechnischen Betrieben (GNS, Siemens Brennelementwerk Hanau und Siemens Kraftwerk Union),
- den Kernkraftwerken Greifswald und Rheinsberg (KGR, KKR),
- 9 Forschungseinrichtungen mit Kernreaktoren (AVR, VAK, FRB, HMI, MHH, VKT, GKS, KFA und WAK),
- 6 Landessammelstellen (LBA, LBE, LHE, LMV, LNW, STO) und
- 6 sonstigen Abliefern (DBE, Gamma-Service Leipzig, Gamma-Service Berlin, ZFI Leipzig, Bundeswehr, Abfallverursacher mit dem Kürzel „AMD“).

In den Annahmebedingungen des ERAM (zuletzt [BFS 96]) sind u. a. für die volumenspezifische Aktivität der radioaktiven Abfälle nuklidspezifische „Garantiewerte“ aufgeführt, die grundsätzlich einzuhalten waren. Entsprechend [BFS 96] resultieren diese Garantiewerte „aus den Betrachtungen

zu den radiologischen Langzeitauswirkungen“. Im Rahmen des Planfeststellungsverfahrens zur Stilllegung des ERAM wurden jedoch vom BfS die Langzeitsicherheitsanalysen [NIE 09] und [BEC 09] vorgelegt. In diesen wird die Langzeitsicherheit des ERAM nicht auf der Basis der Garantiewerte, sondern auf der Basis eines deutlich niedrigeren Radionuklidinventars analysiert.

In den Langzeitsicherheitsanalysen des BfS werden keine Angaben zu den Ungewissheiten, mit denen die Inventarangaben verbunden sind, gemacht. Das Radionuklidinventar wird in den Langzeitsicherheitsanalysen als sicher bekannt behandelt und durch feste Werte ohne Fehlerbandbreiten bzw. ohne Wahrscheinlichkeits- oder Plausibilitätsverteilungen beschrieben.

Die Datenbank ERAPROT ist für die vorliegenden Untersuchungen nicht relevant, da sie das Abfallaufkommen aus der ehemaligen DDR betrifft, das nicht mehr im Endlager Konrad berücksichtigt werden muss.

Bei der Überprüfung der Datenbank ERAMDOK durch Brenk Systemplanung [BS 14] wurde von den folgenden Prämissen ausgegangen:

- „Die Abfalldeklarationen von (reinen) Nutzern radioaktiver Stoffe in Industrie, Medizin und Forschung sind zuverlässig.

*Begründung: Abfallverursacher aus dieser Gruppe erzeugen keine Radionuklide, sondern nutzen radioaktive Stoffe, die sie von Dritten bezogen haben. Aus Bilanzbetrachtungen konnten sie die Aktivitätsmengen in den Abfällen in der Summe gut abschätzen.*

- Die Deklaration der Abfälle hinsichtlich stark und mäßig  $\gamma$ -strahlender Nuklide ist in der Summe über die jeweils abgelieferten Abfälle bei allen Abfallverursachern zuverlässig.

*Begründung: Von den wesentlichen Erzeugern radioaktiver Stoffe (Kernkraftwerke und Forschungseinrichtungen mit Reaktoren, in denen z. T. auch Brennelemente aufbereitet wurden) werden im Rahmen der Charakterisierung und Deklaration der Abfälle regelmäßig Ortsdosisleistungsmessungen (ODL-Messungen) und  $\gamma$ -spektrometrische Messungen durchgeführt. Diese erlauben eine gute Charakterisierung der Abfälle hinsichtlich der stark und mäßig  $\gamma$ -strahlenden Nuklide. Alle zur Endlagerung im ERAM gelangten radioaktiven Abfälle unterlagen der Produktkontrolle. Im Rahmen der Produktkontrolle lassen sich ODL-Messungen und  $\gamma$ -spektrometrische Messungen zerstörungsfrei durchführen. Wir gehen davon aus, dass diese Messungen dort in statistisch ausreichendem Umfang durchgeführt wurden.“*

Die Aktivität der Nuklide, die keine oder nur schwache  $\gamma$ -Strahler sind, wurde auf der Basis von Berechnungen deklariert. Hierzu wurde das Konzept der Schlüsselnuklide und Hochrechnungsfaktoren angewendet. Von der GRS wurden solche Korrelationen zwischen schwer messbaren Radionukliden und Schlüsselnukliden für die Abfälle aus Kernkraftwerken untersucht und funktionale Zusammenhänge abgeleitet. In diesen Studien wurde zwischen Abfällen aus Druckwasserreaktoren (DWR) und Siedewasserreaktoren (SWR) unterschieden. Die Autoren der Studien werteten ihnen vorliegende Messergebnisse an Materialproben deutscher, belgischer, französischer, spanischer und US-amerikanischer Kernkraftwerke aus.

In den GRS-Studien [GRS 89], [GRS 95], [GRS 95a], [GRS 97] wird als funktionaler Zusammenhang zwischen der spezifischen Aktivität eines schwer messbaren Nuklids  $C_s$  und der spezifischen Aktivität eines leicht messbaren Schlüsselnuklids  $C_l$  die Gleichung

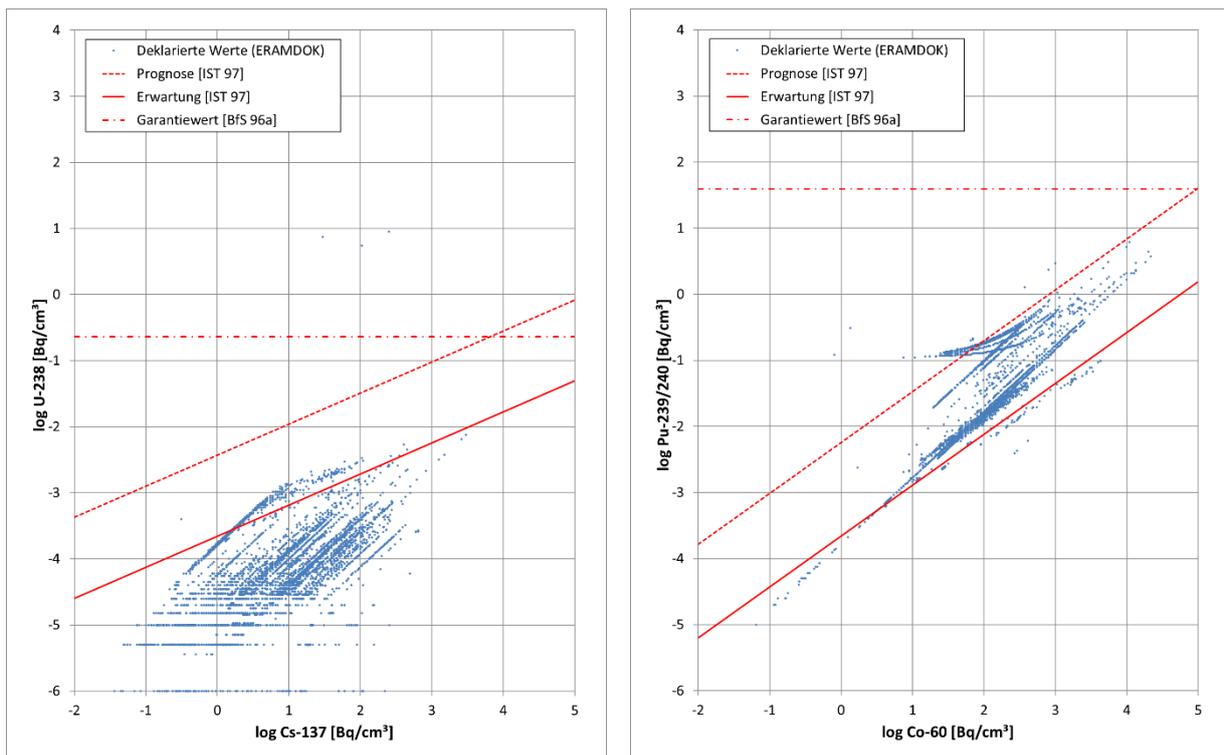
$$C_s = a \cdot C_l^b \quad \text{bzw.} \quad \log(C_s) = A + B \cdot \log(C_l)$$

gewählt mit  $A = \log(a)$  und  $B = b$ . Die sich hieraus für die Logarithmen  $\log(C_s)$  und  $\log(C_l)$  ergebende Regressionsgerade wird als *Erwartungswert* bezeichnet. Das heißt, dass die tatsächliche Aktivität des schwer messbaren Nuklids in der Charge mit einer Wahrscheinlichkeit von ca. 50 % unter (bzw. über) dem berechneten Wert liegt. Neben dieser Regressionsgerade für den *Erwartungswert* wird auch eine Gerade als *Prognose* ermittelt. Sie liefert zu einer Charge mit einer bekannten spezifischen Aktivität des leicht messbaren Schlüsselnuklids einen Wert für das schwer messbare Nuklid, der etwa dem 95 %-Perzentil der Verteilung der erwarteten Nuklidverhältnisse entspricht. Das heißt, dass die tatsächliche Aktivität der Charge mit einer Wahrscheinlichkeit von ca. 95 % unter der so berechneten Aktivität liegt.

In Abbildung 4.1 wird dies an zwei Beispielen illustriert: Die Regressionsgeraden „Erwartung“ und „Prognose“ gem. [GRS 97] sowie der „Garantiewert“ gem. [BS 14] werden auf die im ERAMDOK deklarierten Aktivitätskonzentrationswerte für Co-60 und Pu-239/240 aufgetragen. Die Beispiele zeigen, dass die Regressionsgerade „Erwartung“ deutlich oberhalb (GKN) oder deutlich unterhalb (KWB) der Medianwerte der deklarierten Werte liegen kann, je nach Berechnungsmethode der deklarierten Daten.

Bei fast jedem Gebinde, das zwischen 1994 und 1998 im ERAM endgelagert wurde, kam das Konzept der Schlüsselnuklide für die Deklaration der schwer messbaren Radionuklidgehalte zur Anwendung. Die Angabe, dass (und wie) die Aktivität schwer messbarer Radionuklide rechnerisch ermittelt wurde, findet sich in [TÜV 02]. Dort werden insbesondere das „WTI-Verfahren“ und das „AVK-ELA-Verfahren“ als Berechnungsmethoden genannt, die dort auch beschrieben werden. Es kamen aber bei einigen Abfallverursachern teilweise auch alternative Verfahren zur Anwendung.

Abbildung 4.1: Darstellung der Regressionsgeraden „Erwartung“, „Prognose“ und „Garantiewert“ für die Korrelation zwischen den Aktivitäten von Co-60 und Pu-239/240 der Abfälle aus dem GKN (links) und dem KWB (rechts) gem. [BS 14]



### 4.3 ASSEKAT

Die Access-Datenbank „ASSEKAT“ wurde als Grundlage für den Sicherheitsbericht der Stilllegung der Schachanlage Asse II bei Verbleib der Abfälle entwickelt. Sie beinhaltet vor allem Informationen über das nuklidspezifische Inventar der Asse-Abfälle. Die ursprüngliche Version der Datenbank stammt aus dem Jahr 2000, wurde jedoch zwischenzeitlich mehrfach überarbeitet.

Im Zusammenhang mit der durch die BGE in Auftrag gegebenen Aktualisierung und Überarbeitung der Datenbank ASSEKAT wurde durch die Brenk Systemplanung auch eine explorative Datenanalyse durchgeführt, die der Beantwortung von Fragestellungen zur

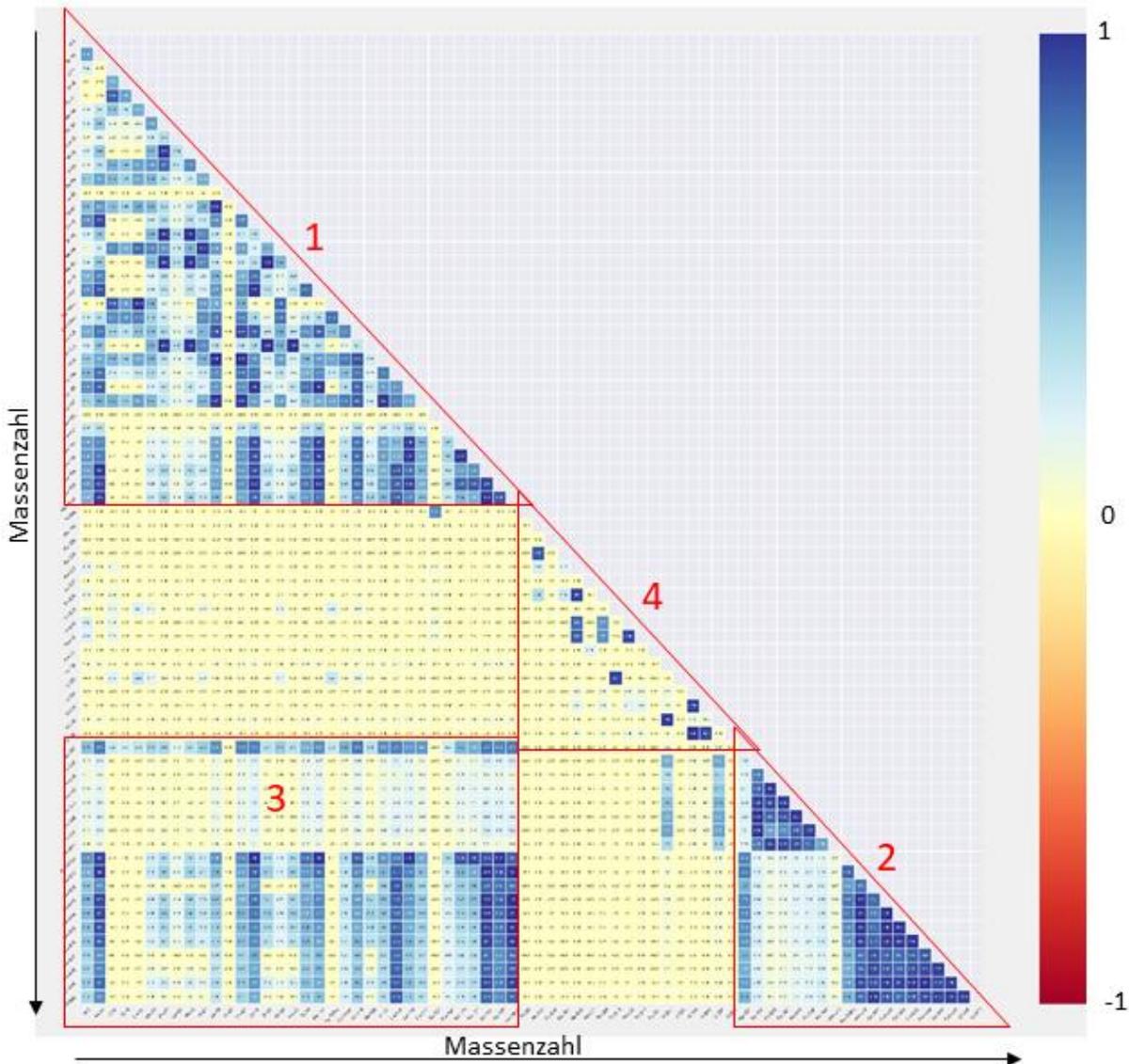
- Datenqualität und
- grundsätzlichen Anwendbarkeit der Daten für Machine learning (ML)-Analysen

dient [BS 22].

Die Datenbank enthält eine Vielzahl von Daten mit unterschiedlichem Grad der Vollständigkeit. Die Tabelle „ISS Kataster“ enthält relevante Radionuklide in Form von Gesamtaktivitäten zu Chargen. Die Aktivitätsberechnung erfolgte zum Stichtag 01.01.1980 mithilfe des Moduls „PAI Aktivitätsberechnung Nuklidtabelle“, kurz PAI.

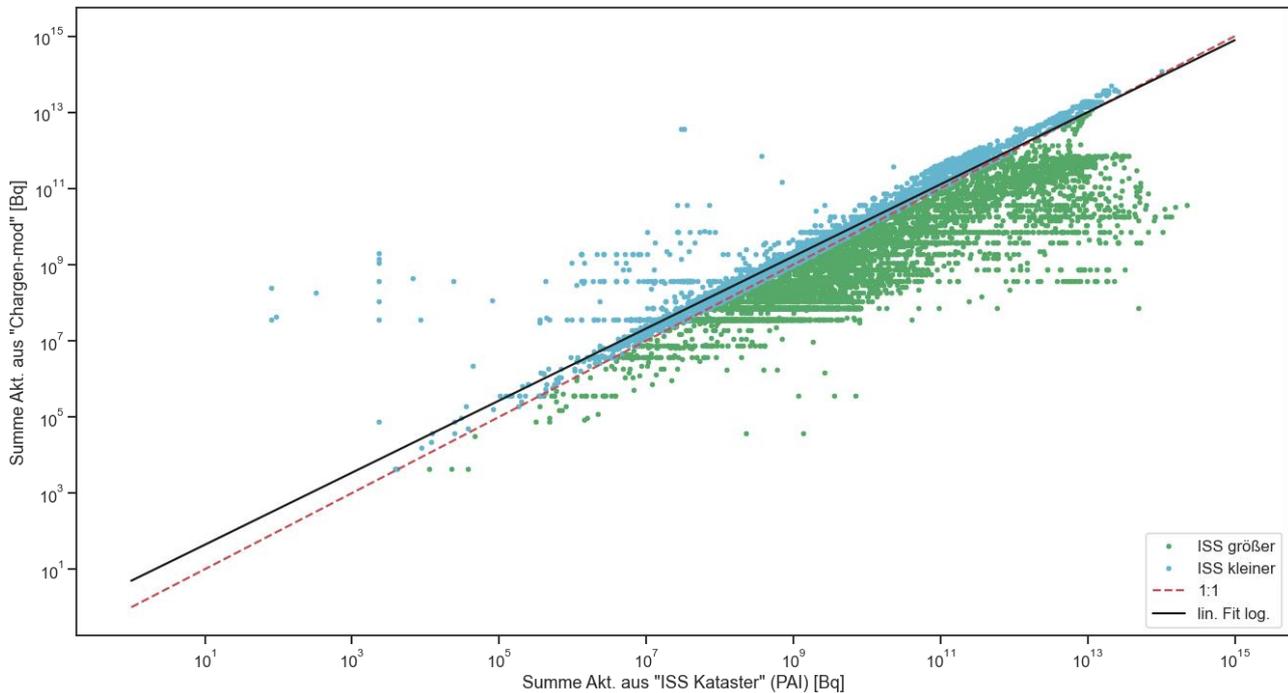
Wie Abbildung 4.2 zeigt, weisen alle Nuklidaktivitäten ausschließlich positive Korrelationen auf. Dieses Ergebnis ist ein eindeutiger Hinweis darauf, dass die Aktivitätsberechnung über Nuklidvektoren (wie hier über die PAI-Routine) erfolgte und keine Angabe aufgrund von Messdaten erfolgte. Die Gruppe 2 der Transurane (unten rechts in Abbildung 4.2) zeigt sehr häufig positive Korrelationen, die teilweise stark sind. Auffällig ist auch, dass die Gruppe 3 der Fissionsnuklide häufig positive Korrelationen mit der Gruppe der Transurane aufweist, was für kernbrennstoffhaltige Abfälle typisch ist.

Abbildung 4.2: Korrelationsmatrix Radionuklide aus „ISS Kataster“ mit Einteilung in Gruppen gem. [BS 22]



Die Berechnung der Aktivität über einen Nuklidvektor hat eine signifikante Konservativität der Ergebnisse zur Folge. Dazu wurde in [BS 22] der Zusammenhang zwischen Aktivität aus „Chargen-mod“ (entspricht Abliefererangaben) und „ISS Kataster“ (entspricht Berechnung gem. PAI-Prozedur zum Stichtag 01.01.1980) beleuchtet. Unter Gesamtaktivität einer Charge nach „ISS Kataster“ wird die Summe aus sämtlichen Einzelaktivitäten verstanden. Wie Abbildung 4.3 zeigt, weist die Mehrheit der Chargen (etwa 60%) eine „ISS Kataster“-Gesamtaktivität größer als diejenigen unter „Chargen-mod“ in mAktiv beschriebenen aus (in Abbildung 4.3 grün dargestellt). Teilweise sind die Abweichungen beträchtlich (mehr als eine Größenordnung). Zudem wurde festgestellt, dass ein deutlicher linearer Zusammenhang besteht zwischen der Ortsdosisleistung an der Außenseite des in den Abschirmbehälter eingestellten Gebindes (ODL) und der Behälteraktivität. Die Korrelation zwischen ODL und der Aktivitätsangabe aus „Chargen-mod“ ist besser als die zwischen ODL und errechneter Aktivität aus „ISS Kataster“.

Abbildung 4.3: Vergleich der Gesamtaktivitäten aus „ISS Kataster“ (berechnet nach PAI Modul) mit der angegebenen mittleren Aktivität aus „Chargen-mod“



Aus der explorativen Datenanalyse wurde in [BS 22] gefolgert, dass sich prädiktive ML-Modelle zur Überprüfung und ggf. Verbesserung der Datenlage auch hinsichtlich der veranschlagten Aktivität empfehlen. Diese bieten die Möglichkeit, die durch die Datenqualität bedingte Konservativität der Aktivitätsberechnung deutlich zu reduzieren.

#### 4.4 ENGIE – Hochrechnungsfaktoren für Betriebsabfälle aus Kernkraftwerken in Belgien

Im Zusammenhang mit dem geplanten Rückbau der belgischen KKW an den Standorten Doel und Tihange wurden für die Betriebsabfälle gezielt Hochrechnungsfaktoren (scaling factors) entwickelt [BS 23]. Hier handelte es sich durchgehend um Abfälle mit niedriger Aktivität, die aus der Betriebszeit der zwei belgischen KKW mit insgesamt 7 Blöcken stammen. Dementsprechend wurden Hochrechnungsfaktoren für fünf wesentliche Abfallströme (basierend auf einer Vielzahl von Teilströmen) berechnet, jeweils für Primärkühlmittel, Ionenaustauscherharze, brennbaren Abfall, Aktivkohlefilter und Wasserfilter und jeweils für die Hochrechnung aus Co-60 und Cs-137. Aufgrund der guten Übereinstimmung zwischen den beiden KKW wurde geschlossen, dass ein gemeinsamer Satz von Hochrechnungsfaktoren ausreichend sein kann.

Grundlage der Datenanalyse war die umfangreiche Datenbank aus dem belgischen LLWAA-Modell, das Daten für die Betriebsabfälle aus allen Stoffströmen der beiden belgischen KKW ab 1979 bzw. 1981 umfasst. Eine detaillierte Beschreibung des LLWAA-Modells findet sich in [VAN 02].

Aufgrund der großen Bandbreite der Aktivitätskonzentrationen in einzelnen Stoffströmen wurde die Berechnung der Hochrechnungsfaktoren als gewichtetes geometrisches Mittel vorgeschlagen. Der Wichtungsfaktor trägt hier dem Beitrag der Teilmenge an der Gesamtaktivität durch das entsprechende Nuklid Rechnung:

$$\bar{x} = \sqrt[w]{\prod_{i=1}^n x_i^{w_i}}$$

Mit

$\bar{x}$  = gewichtetes geometrisches Mittel der Aktivität

$x_i$  = Aktivitätsquotienten des Teilsystems  $i$

$w_i$  = Gewichtungsfaktor für das Teilsystem  $i$ , angegeben als das Verhältnis der Aktivität des schwer messbaren Radionuklids in diesem Teilsystem geteilt durch die Summe aller Aktivitäten desselben Nuklids in allen Teilsystemen

$w$  = Summe aller Gewichtungsfaktoren ( $w = \sum_i w_i$ )

$n$  = Anzahl der Teilsysteme

$i$  = Index des Teilsystems

Für die Entwicklung von Hochrechnungsfaktoren nach diesem Modell ist Voraussetzung, dass kontinuierlich dokumentierte Daten zu Aktivitätskonzentrationen in den relevanten Abfallströmen der relevanten KKW vorliegen.

#### 4.5 NAGRA – Hochrechnungsfaktoren für Stilllegungsabfälle von Kernkraftwerken in der Schweiz

In der Schweiz existieren vier KKW: KKW Beznau (KKB-CH) mit den beiden Blöcken KKB-CH 1 und KKB-CH 2 als DWR, KKW Leibstadt (KKL-CH als SWR), KKW Gösgen (KKG-CH als DWR), und KKW Mühleberg (KKM als SWR).

Eine umfangreiche Untersuchung der verfügbaren Daten aus Probenahmen der KKW hatte die Ermittlung eines Nuklidvektors zum Ziel, der als typisch für einen großen Anteil des in der Stilllegungs- und Rückbauphase anfallenden kontaminierten Materials angesehen werden kann [BS 22a]. Als Ergebnis wurde für jedes der vier KKW ein Nuklidvektor ermittelt. Dazu wurde ein Modell entwickelt, das für jedes Jahr nach der Inbetriebnahme des KKW die Kontamination mit der für das betreffende Jahr gültigen prozentualen Zusammensetzung aufaddiert. Diese wird so skaliert, dass die vorliegende Beprobung für das betreffende Jahr exakt getroffen wird. Mit der „repräsentativen Beprobung des die Kontamination verursachenden Mediums“ ist im betreffenden Jahr eine Beprobung des Verdampferkonzentrats gemeint, auf welcher die Modellrechnung beruht.

Dabei wurde der Nuklidvektor nur für die Radionuklide

- Co-60, Fe-55 und Ni-63 für die aktivierten Korrosionsprodukte,
- Sr-90, Tc-99 und Cs-137 für die Spaltprodukte und
- Pu-238, Pu-239/40, Pu-241, Am-241 für die Actinoide

angegeben. Co-60 wurde also als Schlüsselnuklid für alle übrigen 21 Radionuklide, die in die Analyse einbezogen wurden, verwendet. Die Wahl dieses Schlüsselnuklids erfolgte unter dem Gesichtspunkt, dass es das einzige gammaspektrometrisch gut messbare Radionuklid mit hohem Aktivitätsanteil ist.

Cs-137 zeigt in allen 4 Kernkraftwerken demgegenüber eine Aktivität, die wenigstens um ca. 1 Größenordnung niedriger liegt als die von Co-60.

Die Abfälle aus den KKWs werden in unterschiedliche Kategorien eingeordnet:

- Betriebsabfälle, BA,
- Reaktorabfälle, RA,
- Brennelementen, BE,
- Stilllegungsabfälle, SA,
- Wiederaufbereitungsabfälle, WA.

Die Abfalldaten werden in Datenbanken (MIRAM) durch die Nagra erfasst.

Für die Entwicklung von Hochrechnungsfaktoren nach diesem Modell sind die Wahl eines als repräsentativ zu betrachtenden Mediums, hier das Verdampferkonzentrat, und die Beprobung des gewählten Mediums zu einem bestimmten Zeitpunkt in der Betriebshistorie Voraussetzung.

#### **4.6 MOPRO, ReVK**

Hochrechnungsfaktoren für radioaktive Abfälle werden in Deutschland für Anlagen in der Betriebsphase in der Regel aus Messungen an Proben der folgenden Abfallarten gewonnen:

- Kugel- und Pulverharze aus der Primärkühlmittel- und Lagerbeckenreinigung (DWR, SWR),
- Filterkerzen (DWR),
- Konzentrate und Filterhilfsmittel aus Abwasser- und Kondensatreinigung (DWR, SWR),
- kontaminierte Feststoffe (DWR, SWR),
- veraschte Feststoffe (DWR, SWR).

Die Hochrechnung erfolgt im von der ehemaligen GRS-Tochter ISTec entwickelten Aktivitätsberechnungsmodul MOPRO des Abfallverfolgungs- und Kontrollsystems (AVK) sowie analog im ReVK bei Anlagen, die dieses System nutzen. Diese Hochrechnungsfaktoren basieren alle auf der oberen Grenze (95 %) des Vertrauensbereichs für die Regressionsgerade, die sich aus der Auswertung aller vorliegenden Aktivitätsverhältnisse (Messdaten) zwischen dem jeweiligen alphastrahlenden Radionuklid und dem zugehörigen Schlüsselnuclid in doppelt-logarithmischer Auftragung ergibt (vgl. Abschnitt 4.2). Das bedeutet, dass bei weniger als 5 % aller Hochrechnungen die tatsächliche Aktivität der alphastrahlenden Radionuklide höher ist als bei der aus der Hochrechnung ermittelten bzw. dass in 95 % der Fälle die tatsächliche Aktivität der alphastrahlenden Radionuklide überschätzt wird.

##### **4.6.1 Abfallflussverfolgungs- und Produktkontroll-System (AVK):**

Auf den verschiedenen Stationen eines Abfalls von seiner Entstehung über die Behandlung, Konditionierung und den Transport bis zur Zwischenlagerung sind eine Vielzahl von Daten und Angaben zu erfassen, zu dokumentieren und aktuell zu halten, um die Kontrolle über Herkunft, sicherheitstechnische Beschaffenheit und Verbleib des Abfalls zu ermöglichen. Das Abfallflussverfolgungs- und Produktkontroll-System (AVK) bietet über die reine Abfallflusskontrolle hinaus auf Basis umfangreicher, behördlich anerkannter Berechnungsverfahren die Möglichkeit der Aktivitätsdeklaration von Abfällen und Reststoffen.

Die deutschen Kernkraftwerksbetreiber betreiben im Verbund mit den Konditionierungsstätten und Zwischenlagern das AVK, um die bestehenden gesetzlichen Anforderungen zu erfüllen. Radioaktive

Abfälle werden erfasst und Herkunft, Zustand, Behandlung, Verpackung, Ortsveränderung, Zwischenlagerung und Verbleib bis zur Abgabe an ein Endlager lückenlos dokumentiert.

#### **4.6.2 Reststofffluss-Verfolgungs- und Kontrollsystem (ReVK):**

Beim ReVK handelt es sich um ein Programmsystem zur Verfolgung und Kontrolle von Reststoffen und radioaktiven Abfällen beim Rückbau und Betrieb von kerntechnischen Anlagen, welches hinsichtlich der Erfassung der Daten radioaktiver Abfälle ähnliche Anforderungen erfüllt wie das AVK.

### **5. ABSCHÄTZUNG DER ALPHA-AKTIVITÄTSINVENTARE**

In den Abschnitten 5.1 bis 5.7 erfolgt eine einfache Abschätzung der Alpha-Aktivitätsinventare der verschiedenen, in Abschnitt 2 dargestellten Gruppen kerntechnischer Anlagen. Diese Einzelergebnisse werden in Abschnitt 5.8 zur Gesamtaktivität der alphastrahlenden Radionuklide im Endlager Konrad zusammengeführt.

#### **5.1 Betrieb der KKW**

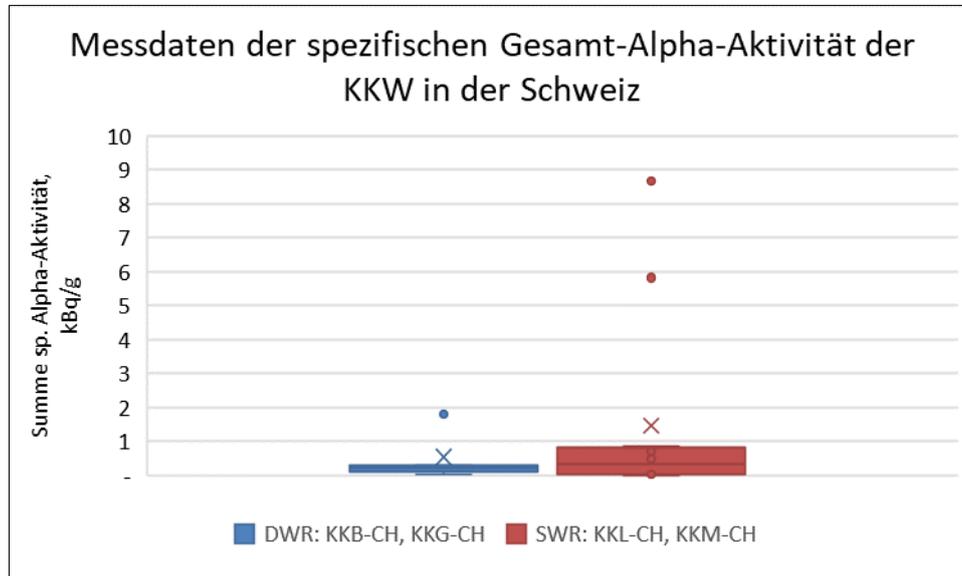
Die Betriebsabfälle der KKW werden gem. [BMU 20] mit 45 m<sup>3</sup> konditioniertem Abfall pro Block angegeben. Der tatsächlich anfallende Abfall wird teilweise deutlich niedriger geschätzt, dennoch kann dieser Werte als Obergrenze der über die Betriebszeit zu erwartenden radioaktiven Abfälle herangezogen werden.

Der Bericht [BMU 20] gibt als Menge der schon zwischengelagerten Betriebsabfälle aus KKW 7.332 m<sup>3</sup> zu 702 Mg sowie 40.637 m<sup>3</sup> zu 10.372 Mg Stilllegungsabfälle aus Kernkraftwerken an. Dies entspricht einer Dichte von 0,10 Mg/m<sup>3</sup> für Betriebsabfälle sowie 0,25 Mg/m<sup>3</sup> für Stilllegungsabfälle.

Die Aktivität der Betriebsabfälle wurde in der Schweiz durch Messungen vor allem der Verdampferkonzentrate (VDK) und der Ionenaustauscherharze (IAH) bestimmt. Es kann davon ausgegangen werden, dass die restlichen Betriebsabfälle eine geringere spezifische Aktivität aufweisen, demnach kann die spezifische Aktivität dieser Abfälle wiederum als Obergrenze für die spezifische Aktivität der Betriebsabfälle hinzugezogen werden. Die spezifische Aktivität der Alpha-Nuklide verändert sich aufgrund der langen Halbwertszeiten nicht maßgeblich, daher werden als erste Näherung die absoluten Messwerte aus [BS 22a] verwendet. Es wird lediglich zwischen Reaktoren der Typen SWR und DWR unterschieden.

Abbildung 5.1 zeigt die Messdaten aus beiden Reaktortypen als Boxplot-Diagramme zusammengefasst. Es ergeben sich Medianwerte für die spezifische Gesamt-Alpha-Aktivität von 230 Bq/g für die DWR und von 472 Bq/g für die SWR. Da die Streuung der Werte relativ hoch und die Anzahl der einzelnen Datenpunkte relativ gering ist, bildet der Medianwert die Daten am Besten ab. Als noch konservativere Abschätzung kann daher der jeweilige Mittelwert angesehen werden, der zwei- bis viermal so hoch wie der Medianwert ist.

Abbildung 5.1: Messdaten der spezifischen Gesamt-Alpha-Aktivität aus betrieblichen Abfällen der KKW in der Schweiz



Aus diesen Messwerten lässt sich mittels der KKW-Laufzeit und der durch das BMUV angesetzten jährlichen Abfallmenge die zu erwartende Alpha-Aktivität aus betrieblichen Abfällen der KKW abschätzen, wie in Tabelle 5.1 zusammengefasst wird. Die Betriebsabfälle aus den KKW der ehemaligen DDR, KGR 1-5 und KKR, sowie aus dem THTR werden nicht mit berücksichtigt, da diese Abfälle im ERAM endgelagert sind.

Tabelle 5.1: Abschätzung der Gesamt-Alpha-Aktivität der KKW-Betriebsabfälle in Deutschland

Reaktortyp	Abkürzung	Name	Leistung MW <sub>e</sub>	Betriebsjahre (gerundet 1 a)	Summe Alpha-Gesamtakt., Bq <sub>α</sub>
SWR	KRB-A	Gundremmingen A	250	11	6,95E+10
	KRB-B	Gundremmingen B	1344	34	2,15E+11
	KRB-C	Gundremmingen C	1344	36	2,27E+11
	KKI-1	Isar 1	912	34	2,15E+11
	KKB	Brunsbüttel	806	37	2,34E+11
	KKK	Krömmel	1402	38	2,40E+11
	KWW	Würgassen	670	23	1,45E+11
	KWL	Lingen	254	9	5,68E+10
DWR	KKP-1	Philippsburg 1	926	33	7,61E+10
	KKP-2	Philippsburg 2	1458	36	8,30E+10
	GKN-1	Neckarwestheim 1, 2	440	36	8,30E+10
	GKN-2	Neckarwestheim 1, 3	1400	34	7,84E+10
	KBR	Brokdorf	1480	36	8,30E+10
	KKI-2	Isar 2	1475	35	8,07E+10
	KKE	Emsland	1400	35	8,07E+10
	KKG	Grafenrheinfeld	1345	34	7,84E+10
	KKS	Stade	672	32	7,38E+10
	KKU	Unterweser	1410	33	7,61E+10
	KWG	Grohnde	1430	39	8,99E+10
	KWO	Obrigheim	357	37	8,53E+10
	KMK	Mülheim-Kärlich	1302	3	6,92E+09
	KWB-A	Biblis A, B	1225	38	8,76E+10
	KWB-B	Biblis A, B	1300	36	8,30E+10
<b>Gesamt (aus Mittelwerten)</b>					<b>2,55E+12</b>

## 5.2 Stilllegung der KKW

Die jährlich anfallenden Stilllegungsabfälle der KKW nehmen mit fortlaufendem Fortschritt der Stilllegung ab. Legt man hier demnach in erster Näherung 10 weitere Betriebsjahre für den Anfall der Stilllegungsabfälle zugrunde (bei gleichzeitig höherer Dichte der Abfälle gegenüber Betriebsabfällen, wie die Mengenangaben aus [BMU 20] nahelegen), wird die Gesamtaktivität dieser Abfälle mit Sicherheit überschätzt. Aus dieser einfachen Betrachtung ergibt sich ein zusätzlicher Beitrag der Alpha-Aktivität von **2,26E+12 Bq**, der im Vergleich zu den betrieblichen Abfällen gem. Abschnitt 5.1 einen etwa gleichen Beitrag liefert.

Zur Überprüfung dieser Größenordnung wird die mittlere Alpha-Aktivitätskonzentration der Betriebsabfälle im ERAMDOK [BS 14] mit der Anzahl der jeweiligen Betriebsjahre der SWR und

DWR in Deutschland gewichtet und mit dem durch das BMUV angegebenen bereits zwischengelagerten Volumen an Betriebsabfällen multipliziert, wie Tabelle 5.2 zeigt.

Tabelle 5.2: Abschätzung der Gesamt-Alpha-Aktivität der KKW-Betriebs- und Stilllegungsabfälle in Deutschland anhand der spezifischen Aktivitäten im ERAMDOK

	Volumen gem. BMUV, m <sup>3</sup>	Alpha-Aktivitätskonz. gem. ERAMDOK, gewichtet, MBq/m <sup>3</sup>	Gesamt-Alpha, Bq
Betriebsabfälle	7.332	3.857	2,83E+10
Stilllegungsabfälle	40.637		1,57E+11

Diese Abschätzung ergibt einen Wert, der für die Betriebsabfälle um ca. zwei bzw. für die Stilllegungsabfälle um ca. eine Größenordnung unter den in Tabelle 5.1 und den oben in diesem Abschnitt 5.2 abgeschätzten Werten liegt. Da jedoch hier die bereits zwischengelagerten Abfälle mit den insgesamt entstehenden Abfällen verglichen werden, ist dieser Größenordnungsvergleich ausreichend aussagekräftig.

### 5.3 Beiträge der Forschungsreaktoren

Die Beiträge der Forschungsreaktoren zum Aktivitätsinventar für das Endlager Konrad sind vernachlässigbar. Einerseits sind die Forschungsreaktoren mit ihrer sehr geringen Leistung keine maßgeblichen Lieferanten von radioaktivem Abfall, zudem sind ein Großteil derselben schon im Inventar der Asse II abgebildet. Die niedrigen Betriebstemperaturen führen darüber hinaus nicht zu Brennelementschäden als Ursache für die Freisetzung alphastrahlender Radionuklide.

### 5.4 Industrie, Medizin und Forschung

Die radioaktiven Abfälle aus Industrie, Medizin und Forschung werden an die Landessammelstellen abgegeben, sie werden demnach dort berücksichtigt.

### 5.5 Landessammelstellen

Für radioaktive Abfälle aus Medizin, Industrie und Forschung hat das Gesetz den Bundesländern die Verpflichtung auferlegt, für die Zwischenlagerung der in ihrem Gebiet anfallenden radioaktiven Abfälle Sammelstellen einzurichten. Diese werden teilweise von mehreren Bundesländern gemeinschaftlich betrieben, siehe Tabelle 5.3 mit einer Zusammenstellung der Landessammelstellen (LSSt) nach Bundesland.

Tabelle 5.3: Bundesländer und Standorte der LSSt

Bundesland	Betreiber, Standort
Baden-Württemberg	<b>KTE, Karlsruhe</b>
Bayern	<b>Zwischenlager Mitterteich, Mitterteich</b>
Berlin	Helmholtz-Zentrum Berlin für Materialien und Energie
Hessen	Ebsdorfergrund / Roßberg
Mecklenburg-Vorpommern	Zwischenlager Nord, Rubenow / Greifswald
Brandenburg	
Niedersachsen	GNS, Jülich und Leese
Nordrhein-Westfalen	<b>Forschungszentrum Jülich, Jülich</b>
Rheinland-Pfalz	Hoppstädten-Weiersbach
Saarland	
Sachsen	<b>VKTA - Strahlenschutz, Analytik &amp; Entsorgung, Rossendorf</b>
Thüringen	
Sachsen-Anhalt	
Hamburg	<b>GKSS-Forschungszentrum, Geesthacht</b>
Schleswig-Holstein	
Bremen	

Als Teil ihrer Umgangsgenehmigung müssen die LSSt „der zuständigen Behörde den Bestand an radioaktiven Stoffen mit Halbwertszeiten von mehr als 100 Tagen am Ende jedes Kalenderjahres innerhalb eines Monats mitteilen.“ Demnach liegen zuverlässige Aktivitätsinventare der LSSt vor.

Als Teil der Überprüfung des Buchführungssystems ReVK wurde in [BS 16] die Bilanzierung des Nuklidinventar der Landessammelstelle des Freistaates Sachsen untersucht. Die größeren LSSt wurden in Tabelle 5.3 hervorgehoben. Die übrigen LSSt weisen ein deutlich geringeres Inventar auf.

In erster Näherung wird demnach davon ausgegangen, dass sich das gesamte Inventar der LSSt in Deutschland durch eine Verfünfachung des Inventars der LSSt Sachsen abschätzen lässt.

Die Meldung der ReVK an das BfS zum Bestand aus dem Jahr 2016 weist einen Gesamtgehalt an Alpha-Aktivität von  $5,39E+10$  Bq auf [BS 16].

Durch eine Verfünfachung ergibt sich die Abschätzung von  **$2,65E+11$  Bq** an Alpha-Aktivität.

## 5.6 Abfälle aus der Brennelementherstellung

Die Alpha-Aktivität in den radioaktiven Abfällen aus der Brennelementherstellung besteht hauptsächlich als Kontamination der Anlagen, hier im Wesentlichen Filteranlagen. Unterstellt man sehr konservativ 1.000 kg an Natur-Uran aus den Filteranlagen, ergibt sich daraus mit einer spezifischen Aktivität von ca. 25.000 Bq/g für die Summe der Aktivitäten von U-238, U-235 und U-234 eine Alpha-Aktivität von  **$2,5E+10$  Bq**.

## 5.7 WAK/VEK

Zur Abschätzung des Alpha-Inventars aus der Wiederaufarbeitung wird die in [BMU 20] zugrunde gelegte Abfallmenge von 456 Mg an Rohabfällen (RA) und vorbehandelten Abfällen (VA) zzgl. 15.728 m<sup>3</sup> an Abfällen in Innenbehältern (P1), produktkontrollierten Abfällen (P2) und Abfällen in Endlagergebinden (G1) angesetzt.

Die spezifische Alpha-Aktivität der Abfälle aus der Wiederaufarbeitung wird teilweise in der Datenbank ERAMDOK angegeben [BS 14]. Die spezifische Alpha-Aktivität wird dort für Abfälle der GNS, der Siemens-BE-Werke Hanau (SBW), der Siemens Kraftwerk Union (SKU) und der WAK am Kernforschungszentrum Karlsruhe (KFK-WAK) angegeben. Den höchsten Wert nimmt hier der Abfall der SKU mit 36 MBq/m<sup>3</sup> ein und wird demnach zur Schätzung für das gesamte durch das BMUV angegebene Abfallvolumen unterstellt. Daraus ergibt sich ein Schätzwert der Alpha-Aktivität von **5,67E+11 Bq**.

Schätzt man die Aktivität wieder über das durch das BMUV angegebene Volumen bereits zwischengelagerter Abfälle ab und legt die Alpha-Aktivitätskonzentration (4,9E+6 Bq/m<sup>3</sup>) der im ERAMDOK aufgeführten Abfälle der WAK zugrunde, ergibt sich als Schätzung der Größenordnung eine Alpha-Aktivität von 7,8E+10 Bq, was um etwa eine Größenordnung unter dem obigen Schätzwert liegt.

## 5.8 Schätzung der Gesamtmenge

Wie in den vorigen Abschnitten beschrieben, wurde die Alpha-Aktivität der verschiedenen Abfallverursacher in den vorstehenden Abschnitten grob abgeschätzt. Wie durch das BMUV prognostiziert (siehe Abbildung 3.6), wird die abgeschätzte Menge noch auf die bis 2080 angenommenen Zunahme extrapoliert. Die hieraus resultierende Abschätzung wird in Tabelle 5.4 zusammengefasst.

Eine weitere Abschätzung kann durch die im ERAMKDOK angegebenen spezifischen Alpha-Aktivitäten aus [BFS 14] und die durch [BMU 20] ermittelten Massenangaben erfolgen. Bei den Daten aus dem ERAMDOK handelt es sich jedoch um berechnete Aktivitäten, nicht um Messwerte wie diejenigen aus den Schweizer KKW gem. Abschnitt 4.5.

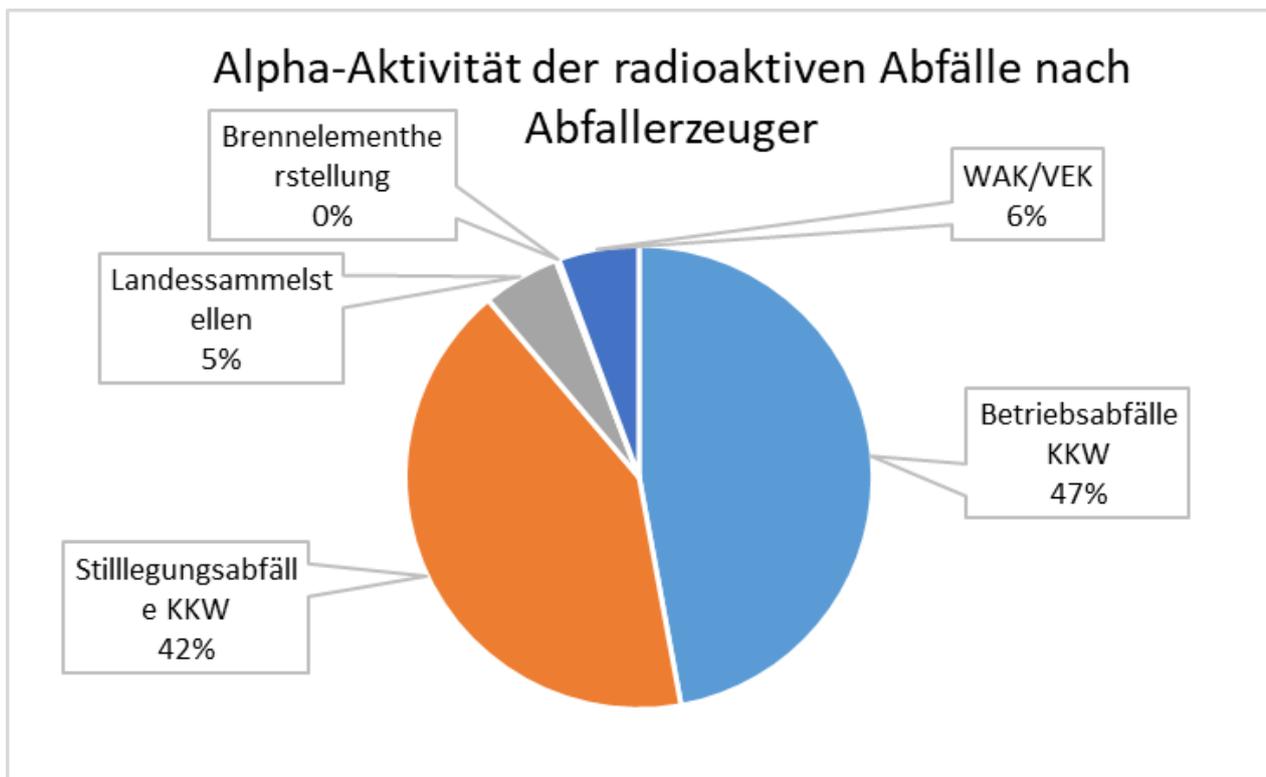
Tabelle 5.4 fasst die Ergebnisse der Abschätzung zusammen. Es zeigt sich, dass zwischen der insgesamt abgeschätzten Alpha-Aktivität und den Einlagerungsbedingungen für das Endlager Konrad eine Differenz von 4 Größenordnungen liegt. Eine genauere Abschätzung ist demnach an dieser Stelle zwar langfristig wünschenswert, aber für die Einschätzung des Risikos einer Kapazitätsausschöpfung nicht erforderlich.

Tabelle 5.4: Abschätzung der Gesamt-Alpha-Aktivität für das Endlager Konrad

Abfallart	Schätzung Gesamt-Alpha	Multiplikationsfaktor BMUV bis 2080	Schätzung Gesamt nach Beendigung der Abfallerzeugung
Einheit	Bq		Bq
Betriebsabfälle KKW	2,55E+12	2,2	5,61E+12
Stilllegungsabfälle KKW	2,26E+12	2,2	4,96E+12
Landessammelstellen	2,65E+11	2,41	6,39E+11
Brennelementherstellung	2,50E+10	1	2,50E+10
WAK/VEK	5,67E+11	1,17	6,63E+11
Forschungsreaktoren	-	1	-
Industrie und Forschung	-	1,3	-
Gesamt	5,66E+12		<b>1,19E+13</b>
Konrad Einlagerungsbedingungen			<b>1,50E+17</b>
Größenordnung Differenz	4		4

Der anteilige Beitrag dieser Abschätzung durch die jeweiligen Abfallerzeuger wird in Abbildung 5.2 gezeigt. Die Tabelle veranschaulicht, dass der maßgebliche Anteil der Alpha-Aktivität aus dem Betrieb und der Stilllegung der KKW stammt.

Abbildung 5.2: Anteilige Alpha-Aktivität nach Abfallverursacher, Abschätzung



## **6. FAZIT**

Die Charakterisierung radioaktiver Abfälle erfolgt oft nicht durch direkte Messung der Aktivität aller Nuklide. Die Fokussierung auf die Messung leicht zu messender Nuklide, deren Aktivität sich insbesondere durch Gammaskpektrometrie gut feststellen lässt, reduziert den Aufwand an Ressourcen erheblich. Die Aktivitäten schwer zu messender Nuklide, zu denen auch viele der alphastrahlenden Nuklide gehören, werden dann über Hochrechnungsfaktoren ermittelt. Durch diese Vorgehensweise erhöht sich allerdings die Konservativität der Aktivitätsermittlung aus den folgenden zwei Gründen erheblich:

- Die Hochrechnungsfaktoren zu einer Charge mit einer bekannten spezifischen Aktivität des leicht messbaren Schlüsselnuklids liefern einen Wert für die Aktivität des schwer messbaren Nuklids, der etwa dem 95 %-Perzentil der Verteilung der erwarteten Nuklidverhältnisse entspricht.
- Bei der Aktivitätsmessung stellt die Nachweisgrenze ein Niveau dar, das deutlich oberhalb der tatsächlich vorhandenen Aktivität liegen kann.

Die Abschätzung der tatsächlichen Alpha-Aktivität in Abschnitt 5 ist ohne Betrachtung der Fehlerquellen durchgeführt worden und stellt demnach lediglich den Versuch dar, die Größenordnung der gesamten Alpha-Aktivität, die in Abfällen für das Endlager Konrad am Ende von dessen Betriebszeit vorliegen kann, zu ermitteln. Da jedoch vier Größenordnungen zwischen der maximal zulässigen Alpha-Aktivität und der tatsächlich erwarteten Alpha-Aktivität liegen, kann sicher davon ausgegangen werden, dass der Grenzwert der Annahmebedingungen für das Endlager Konrad nicht erreicht oder überschritten wird.

## 7. LITERATURVERZEICHNIS

- [BEC 09] BECKER ET AL.  
Endlager Morsleben - Sicherheitsanalyse für das verfüllte und verschlossene Endlager mit dem Programm EMOS  
GRS, Braunschweig, 27.03.2009
- [BFS 96] KUGEL K., NOACK W., GILLER H., MARTENS B.-R., BRENNECKE P.  
Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle und Maßnahmen zur Produktkontrolle radioaktiver Abfälle  
Endlager für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM)  
Teil I: Endlagerbedingungen  
Stand: August 1996  
ET-IB-85  
BfS, Salzgitter, August 1996
- [BFS 14] BUNDESAMT FÜR STRAHLENSCHUTZ  
Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle (Endlagerungsbedingungen, Stand: Dezember 2014) - Endlager Konrad  
Bericht SE-IB-29/08-REV-2
- [BMU 15] BUNDESMINISTERIUM FÜR UMWELT, NATURSCHUTZ, BAU UND REAKTORSICHERHEIT  
Programm für eine verantwortungsvolle und sichere Entsorgung bestrahlter Brennelemente und radioaktiver Abfälle (Nationales Entsorgungsprogramm), August 2015
- [BMU 17] BUNDESMINISTERIUM FÜR UMWELT, NATURSCHUTZ, NUKLEARE SICHERHEIT UND VERBRAUCHERSCHUTZ  
Verzeichnis radioaktiver Abfälle (Bestand zum 31. Dezember 2017 und Prognose)  
[https://www.bmu.de/fileadmin/Daten\\_BMU/Download\\_PDF/Nukleare\\_Sicherheit/verzeichnis\\_radioaktiver\\_abfaelle\\_bf.pdf](https://www.bmu.de/fileadmin/Daten_BMU/Download_PDF/Nukleare_Sicherheit/verzeichnis_radioaktiver_abfaelle_bf.pdf),  
aufgerufen April 2023
- [BMU 20] BUNDESMINISTERIUM FÜR UMWELT, NATURSCHUTZ UND NUKLEARE SICHERHEIT  
Bericht der Bundesregierung für die siebte Überprüfungskonferenz im Mai 2021 zur Erfüllung des Gemeinsamen Übereinkommens über die Sicherheit der Behandlung abgebrannter Brennelemente und über die Sicherheit der Behandlung radioaktiver Abfälle, August 2020
- [BS 16] BRENK SYSTEMPLANUNG GMBH  
Begutachtung zur Einführung des elektronischen Buchführungssystems ReVK zur Erfassung von radioaktiven Abfällen gemäß § 73 StrlSchV in der Landessammelstelle des Freistaates Sachsen (LSN), BS-Projekt Nr. 1605-02, Aachen, 26.08.2016

- [BS 14] BRENK SYSTEMPLANUNG GMBH  
Prüfung von Antragsunterlagen zur Stilllegung des ERAM:  
Bewertung der Angaben in den Planunterlagen zum Radionuklidinventar der im ERAM end-  
gelagerten Abfälle, BS-Projekt-Nr. 0108-03/19, Aachen, 07.03.2014
- [BS 22] BRENK SYSTEMPLANUNG GMBH  
ASSEKAT ISS 9.3.1.mdb: Explorative Datenanalyse, Zusammenfassung der Untersu-  
chungsmethoden und -ergebnisse, Brenk Systemplanung GmbH, BS-Projekt Nr. 2011-07,  
Aachen, März 2022
- [BS 22A] BRENK SYSTEMPLANUNG GMBH  
Nuklid-Korrelationsfaktoren für (modellhaft) erfasste kontaminierte Stilllegungs-abfälle für  
Kernkraftwerke in der Schweiz, Brenk Systemplanung GmbH, BS-Projekt Nr. 2111-07,  
Aachen, Juni 2022
- [BS 23] BRENK SYSTEMPLANUNG GMBH  
Derivation of Scaling Factor for Radioactive Waste from Dismantling of Belgian NPPs,  
WP1: Radioactive Waste, BS-Projekt Nr. 2108-07, Aachen, 26.01.2023
- [GRS 89] GRS GESELLSCHAFT FÜR ANLAGEN- UND REAKTORSICHERHEIT GGMBH  
Bestimmung des Aktivitätsinventars in KKW-Abfällen über Schlüsselnuclide  
Bericht GRS-A-1635, Dezember 1989
- [GRS 95] GRS GESELLSCHAFT FÜR ANLAGEN- UND REAKTORSICHERHEIT GGMBH  
Aktivitätsbestimmung an Betriebsabfälle aus Leichtwasserreaktoren über Korrelationen,  
GRS-A-2129, GRS mbH, Juli 1995
- [GRS 95A] GRS GESELLSCHAFT FÜR ANLAGEN- UND REAKTORSICHERHEIT GGMBH  
Aktivitätsbestimmung in radioaktiven Abfälle aus Leichtwasserkernreaktoren, ISTec-A-064  
/ Revision 1, ISTec GmbH, Garching, Februar 1995
- [GRS 97] GRS GESELLSCHAFT FÜR ANLAGEN- UND REAKTORSICHERHEIT GGMBH  
Aktivitätsbestimmung für Abfälle aus deutschen Leichtwasserreaktoren, ISTec-A-210,  
ISTec GmbH, Garching, März 1997
- [IAE 09] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY  
Determination and Use of Scaling Factors for Waste Characterization in Nuclear Power  
Plants, IAEA Nuclear Energy Series, No. NW-T-1.18, Vienna, 2009
- [IAE 23] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY  
PRIS – Database on Nuclear Power Reactors  
<https://www.iaea.org/PRIS/home.aspx>, aufgerufen März 2023



- [NIE 09] NIEMEYER ET AL.  
Endlager Morsleben - Sicherheitsanalyse für das verfüllte und verschlossene Endlager mit dem Programm PROSA  
Colenco Power Engineering AG, Baden / CH, 27.03.2009
- [TÜV 02] TÜV HANNOVER/SACHSEN-ANHALT E.V.  
Endlager für radioaktive Abfälle Morsleben; Erfahrungsbericht zur Produktkontrolle radioaktiver Abfälle, Mai 2002
- [VAN 02] VANDERPERRE, S. ET AL.  
Radioactive Waste Characterisation in Belgium  
Tractebel, Brüssel  
Presentation on VI ENAN - National Meeting on Nuclear Applications / INAC 2002 - International Nuclear Atlantic Conference 2002

## **8. ABKÜRZUNGSVERZEICHNIS**

AVR	Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor Jülich
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
BMU	Bundesumweltministerium
BMUV	Bundesumweltministerium, aktuell Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz
BE	Brennelemente
DWR	Druckwasserreaktor
EVU	Energieversorgungsunternehmen
EWN	Energiewerke Nord GmH
FRB	Forschungs- und Messreaktor Braunschweig
GKN	Gemeinschaftskraftwerk Neckar, Neckarwestheim 1-2 (DWR)
GKS	FZ Geesthacht
HMI	Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung Berlin
IAT	Ionenaustauscherharze
KFA	Kernforschungsanlage Jülich
KBR	Kernkraftwerk Brokdorf (DWR)
KGA	Kernkraftwerk Gundremmingen A (SWR)
KGK	Kernkraftwerk Gundremmingen B, C (SWR)
KGR	Kernkraftwerk Greifswald 1-5 (DWR)
KKI1	Kernkraftwerk Isar-1 (SWR)
KKI2	Gemeinschaftskernkraftwerk Isar-2 (DWR)
KKB	Kernkraftwerk Brunsbüttel (SWR)
KKB-CH	Kernkraftwerk Beznau 1-2, Schweiz (DWR)
KKE	Kernkraftwerk Emsland (DWR)
KKG-CH	Kernkraftwerk Gösgen, Schweiz (DWR)
KKG	Kernkraftwerk Grafenrheinfeld (DWR)
KKK	Kernkraftwerk Krümmel (SWR)
KKM-CH	Kernkraftwerk Mühleberg, Schweiz (SWR)
KKL-CH	Kernkraftwerk Leibstadt, Schweiz (SWR)
KKP	Kernkraftwerk Philippsburg 1-2 (SWR)
KKR	Kernkraftwerk Rheinsberg (DWR)
KKS	Kernkraftwerk Stade (DWR)

KKU	Kernkraftwerk Unterweser (DWR)
KWB	Kernkraftwerk Biblis A, B (DWR)
KWG	Kernkraftwerk Grohnde (DWR)
KWO	Kernkraftwerk Obrigheim (DWR)
KWW	Kernkraftwerk Würgassen (SWR)
LBA	LS Bayern
LBE	LS Berlin
LHE	LS Hessen
LMV	LS Mecklenburg-Vorpommern
LNW	LS Nordrhein-Westfalen
LLWAA	Low Level Waste Activity Assessment (Modell und Datenbank)
LSSt	Landessammelstelle
MIRAM	Modellhafte Inventar Radioaktiver Materialien
MHH	Med. Hochschule Hannover
MKA	Kernkraftwerk Mülheim-Kärlich (DWR)
NAGRA	Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle
SWR	Siedewasserreaktor
STO	LS Brandenburg
THTR	Hochtemperatur-Reaktor, Hamm (Gasgekühlter Hochtemperaturreaktor)
VAK	Versuchsatomkraftwerk Kahl
VEK	Verglasungseinrichtung Karlsruhe
VDK	Verdampferkonzentrat
VKT	VKTA Rossendorf, bis Dezember 2014 Verein für Kernverfahrenstechnik und Analytik Rossendorf e. V.
WAK	Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe

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

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

Boltzmannstraße 14  
**85748 Garching b. München**  
Telefon +49 89 32004-0  
Telefax +49 89 32004-300

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

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

[www.grs.de](http://www.grs.de)