

Geschäftsstelle
der Reaktor-Sicherheitskommission
und der Entsorgungskommission
beim Bundesamt für Strahlenschutz
Hausanschrift:
Robert-Schuman-Platz 3, 53175 Bonn

Az BR310111_AG ASSE12 / dib
Datum: 31.01.2011
Bearbeiterin: Dr. Dibbern
Durchwahl: 03018 / 305-3720
Telefax: 0228 / 67 03 88
e-Mail: hdibbern@bfs.de

RSK/ESK-Geschäftsstelle beim BfS • Postfach 12 06 29 • 53048 Bonn

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz
und Reaktorsicherheit (BMU)
RS III 2
Herrn Arens
Robert-Schuman-Platz 3

53175 Bonn

Arbeitsbericht: Bewertung des Kenntnisstandes zum Stoffinventar der Kammer 12/750 der Schachtanlage Asse und Hinweise zur Verbesserung der Aussagequalität, Dezember 2010

Sehr geehrter Herr Arens,

auf Veranlassung durch den ESK-Vorsitzenden Herrn Sailer erhalten Sie anbei einen Arbeitsbericht der Unterarbeitsgruppe Asse Inventar der ESK zum Stoffinventar der Kammer 12/750 der Schachtanlage Asse zur weiteren Verwendung. Die ESK regt an, diese Unterlagen auch dem BfS zeitnah zur Information zur Verfügung zu stellen.

Die Unterarbeitsgruppe Asse Inventar wurde im Zuge der Beratungen der Ad-hoc-AG ASSE der ESK und der SSK zum Inventar der Schachtanlage ASSE II gebildet. Ihre Aufgabe war es, sich speziell mit dem Kenntnisstand zum radioaktiven Inventar der Asse auseinanderzusetzen und die Möglichkeiten einer Verbesserung der Inventarannahmen zu prüfen. Im Fokus der Betrachtungen stand dabei die Kammer 12 auf der 750 m Sohle.

Die Ad-hoc AG ASSE weist darauf hin, dass der Bericht kein abgestimmtes Papier bzw. verabschiedete Stellungnahme der ESK im Sinne der Satzung und nicht für eine weitere Verteilung gedacht ist. Da teilweise nur wenig belastbare Fakten zum Inventar der Asse vorliegen, musste stellenweise auf Abschätzungen und Hypothesen zurückgegriffen werden, die u. a. auch auf Erfahrungen aus französischen Anlagen basieren. Für eine weitergehende Interpretation der Inventardaten sind Absicherungen dieser Randbedingungen unbedingt notwendig.

Der Bericht ist als Diskussionsbeitrag der ESK zum Umgang mit dem Inventar der Asse zu verstehen und erhebt keinen Anspruch auf Vollständigkeit. Im Bericht sind teilweise Hypothesen wiedergegeben, die in der ESK nicht ausführlich oder abschließend diskutiert wurden, die für eine Interpretation der vorhandenen Unterlagen jedoch möglicherweise wichtig sein könnten. Der Bericht soll daher in erster Linie Gedankenanstöße zu weiteren Untersuchungen geben.

Mit freundlichen Grüßen
Im Auftrag

- gez. Dr. Dibbern -

Anlage
Bericht
CD

Verteiler (ohne Anlagen)

**Ad-hoc-Arbeitsgruppe ASSE
der Entsorgungskommission und der Strahlenschutzkommission**

Herrn Dipl.-Ing. Sailer • Vorsitzender
Herrn Ing. Saas
Hr. Prof. Dr. Michel SSK-Vorsitzender

**BEWERTUNG DES KENNTNISTANDES ZUM STOFFINVENTAR DER
KAMMER 12/750 DER SCHACHTANLAGE ASSE UND HINWEISE
ZUR VERBESSERUNG DER AUSSAGEQUALITÄT**

Arbeitsbericht erstellt von

Arsène SAAS, ESK

Dezember 2010

Arbeitsbericht für die ESK-SSK- Ad-hoc-Arbeitsgruppe ASSE

Interner Bericht

VORBEMERKUNG

Der vorliegende Bericht liefert einen Überblick über Ergebnisse und den Kenntnisstand betreffend Kammer 12/750 der Schachanlage Asse II. Da insgesamt nur wenige konkrete Messungen und Ergebnisse vorhanden sind, stützt sich der Bericht in weiten Teilen auf Abschätzungen und Hypothesen. Einige dieser Abschätzungen und Hypothesen beruhen auf französischen Erfahrungen. Auf jeden Fall müssen diese Abschätzungen und Hypothese durch Asse-spezifische Analysen, Probenahmen, Messungen und Beobachtungen überprüft, verifiziert und bewertet werden.

Die hier beschriebenen Prognosen für die Auslaugung und den Zustand der Abfälle sollen der Unterstützung bei der Konzeption eines Mess- und Forschungsprogramms, besonders für die anstehende Kammeröffnung, dienen. Die Abschätzung der zu erwartenden Nuklidaktivitäten und der Stoffkonzentrationen können für die Planung der Messmethodik herangezogen werden.

Die Prüfung des Stoff- und Nuklidinventars sowie die Vorschläge für dessen Verbesserung sind als vorläufige Annäherung zu betrachten. Im ersten Schritt werden hierzu offensichtliche Inventarlücken (z.B. beim AVR-Grafit) und Unsicherheiten für einzelnen Radionuklide, chemische Stoffe oder Abfallarten benannt.

Für die weiteren Auswertungen wird das (noch ausstehende) Handbuch des BfS für die Datenbank Assekat 9.2 eine wesentliche Hilfe sein.

Entsprechend dem Vortrag in der ESK/SSK-Ad-hoc-Arbeitsgruppe ASSE am 20.09.2010 und nach der Diskussion in der 14. Sitzung der ESK, soll dieser Bericht als ein Beitrag des Autors zum Kenntnisstand des Inventars der Kammer 12/750 der Asse betrachtet und benutzt werden. Dabei konnten nicht alle Fragen der ESK/SSK-Ad-hoc-Arbeitsgruppe ASSE und der ESK zum Inventar in diesem Bericht behandelt werden. Für die vorliegenden Ergebnisse gibt es mehrere Interpretationen und Abschätzungen; dadurch sind Nachprüfungen und Bewertungen wichtig und notwendig.

Version: 21.11.2010

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	7
2	Bewertung der Untersuchungsergebnisse	10
2.1	Zugrunde liegende Informationen	10
2.2	Plausibilitätsbetrachtung zum Inventar der Kammer 12/750 aus der Rückrechnung der Untersuchungsergebnisse aus dem Laugensumpf vor Kammer 12/750 (Messstelle 21)	11
2.2.1	Auslaugung von Tritium aus Kammer 12/750	11
2.2.2	Auslaugung von Cäsium aus Kammer 12/750	17
2.2.3	Auslaugung von Kobalt aus Kammer 12	23
2.2.4	Auslaugung von Uran aus Kammer 12/750.....	24
2.2.5	Auslaugung von ¹⁴ C aus Kammer 12/750	27
2.2.6	Auslaugung von ⁹⁹ Tc aus Kammer 12/750.....	28
2.2.7	Auslaugung von ⁹⁰ Sr aus Kammer 12/750	29
2.2.8	Auslaugung von Plutonium und Americium aus der Kammer 12/750	30
2.2.9	Auslaugung von Radium-Thorium und Tochternuklide aus der Kammer 12/750	30
2.2.10	Auslaugung von ¹²⁹ Iod.....	31
2.2.11	Auslaugung nichtradioaktiver chemischer Stoffe.....	31
2.3	Zusammenfassende Schlussfolgerungen aus den Überlegungen zur Auslaugung und zur Nuklidzusammensetzung von Salzlauge, Salzgrus und Grubenluft der Kammer 12/750	32
2.3.1	Zusammenfassung der Überlegungen zu den Untersuchungen zur Auslaugung.....	33
2.3.2	Ableitung eines modellhaften Quellterms für die Radionuklidaktivitäten in der Salzlauge und dem Salzgrus aus Kammer 12/750.....	38
2.4	Überlegungen zum Zustand der Abfälle der Kammer 12/750	42
2.4.1	Getrocknete, ehemals flüssige Abfälle	43
2.4.2	Verfestigte, ehemals flüssige Abfälle.....	45
2.4.3	Feste Abfälle, konditioniert	45
2.4.4	Feste Abfälle, unkonditioniert	45
2.4.5	Verbrennungsrückstände	46
2.5	Schlussfolgerung 1: Vorschlag zum Untersuchungsumfang für Salzlaugen, Salzgrus und Grubenluft vor der Kammer 12/750	47
2.6	Schlussfolgerung 2: Verbesserungsvorschläge für die Inventarannahmen zur Kammer 12/750	48
3	Überlegungen zu den Inventarannahmen für die Kammer 12/750	50

3.1	Ziele der Arbeitsgruppe	50
3.2	Modell des Inventars für die chemischen Bestandteile der Abfallgebinde..	50
3.3	Modell eines Radionuklidinventars für Kammer 12/750	51
3.3.1	Schlüsselnuklide Beta-Gamma	52
3.3.2	Schlüsselnuklide Alpha	54
3.4	Verbesserungsvorschläge für das Inventar der Asse II	58
3.4.1	Einführung zusätzlicher Abfragetabellen	58
3.4.2	Ergänzung fehlender Angaben für einige Abfälle	58
3.4.3	Verbesserung der Aktivitätsannahmen für fehlende oder schlecht abgeschätzte Radionuklide.....	59
3.4.4	Verbesserung der Annahmen zum Stoffinventar.....	59
4	Schlussfolgerungen, Hinweise und Vorschläge	60
	Literaturverzeichnis	62
	Anlagen	65
	Anlage 1: Inventarmodell für die Stoffe der Kammer 12.....	64
	Anlage 2: Inventarmodell für die Nuklide der Kammer 12.....	78
	Anlage 3: Beispiele für die Konditionierungsschwierigkeiten der Abfälle.....	89
	Anlage 4: Bilanz für die Rückholung und Umlagerung der Kammer 12.....	91
	Anlage 5: Beispiel für Modellrechnungen für die flüssigen Abfälle.....	92

Verzeichnis der Abbildungen:

Abbildung 1: Tritiumgehalte in Messstelle 21, Originaldaten aus [9], in MBq/l, (ergänzt für 2008-2010 nach [20])	13
Abbildung 2: Tritiumgehalte in Messstelle 21, zerfallskorrigiert, Rückrechnung auf Stichtag 01.01.1972, in MBq/l (ergänzt für 2008-2010 auf Grundlage von [20])	14
Abbildung 3: Tritiumaktivität und ¹³⁷ Cs-Aktivität in Messstelle 21 (Originaldaten), in kBq/l (ergänzt für 2008-2010 nach [20])	15
Abbildung 4: ¹³⁷ Cs-Aktivität in Messstelle 21, Originaldaten und Rückrechnung auf den Stichtag 01.01.1974, in kBq/l (ergänzt für 2008-2010 nach [20])	20
Abbildung 5: ¹³⁷ Cs und Tritium in Messstelle 21, zerfallskorrigiert (Rückrechnung auf den Stichtag 01.01.1974) Tritium in MBq/l, ¹³⁷ Cs in kBq/l (ergänzt für 2008-2010 nach [20])	21
Abbildung 6: Verhältnis der Aktivitäten von Tritium zu ¹³⁷ Cs in Messstelle 21, zerfallskorrigiert (Rückrechnung auf den Stichtag 01.01.1974) (ergänzt für 2008-2010 nach [20])	21

Verzeichnis der Tabellen (im Text)

Tabelle 1: Beantragte Ableitungen radioaktiver Stoffe mit der Fortluft der Schachanlage Asse II im Vergleich mit den mittleren und maximalen jährlichen Ableitungen aus den Betriebsjahren 2001 - 2008	17
Tabelle 2: Vergleich der Angaben zur ¹³⁷ Cs-Aktivität und der Cs-Konzentration in Laugeproben aus der Messstelle 21 im Zeitraum 2008 bis 2010 (nach [20])	18
Tabelle 3: Verhältnis von ¹³⁴ Cs zu ¹³⁷ Cs in der Lauge vor der Kammer 12/750	19
Tabelle 4: Verhältnis von ¹³⁷ Cs zu ⁶⁰ Co in der Lauge vor der Kammer 12/750	23
Tabelle 5: Uran-Nuklidvektor für MZFR-1 aus [5] (Angaben in Bq/gU):	26
Tabelle 6: Anreicherung chemischer und chemotoxischer Stoffe in Salzlauge gegenüber der Referenz aus [7] (µg/g)	32
Tabelle 7: Erhöhung der Konzentration im Vergleich mit der Referenz	32
Tabelle 8: Abschätzung der Nuklidaktivitäten in der Salzlauge, Kammer 12/750	34
Tabelle 9: Abschätzung der Aktivität löslicher Radionuklide in der Salzlauge, Kammer 12/750	37
Tabelle 10: Zusammenfassung der Daten und Schätzwerte zur Auslaugung von Radionukliden aus Kammer 12/750	38
Tabelle 11: Quellterm für Radionuklide in der Salzlauge, Kammer 12/750	39
Tabelle 12: Quellterm für Radionuklide im Salzgrus, Kammer 12/750	40
Tabelle 13: Quellterm für Radionuklide und andere gasförmige Stoffe in der Grubenluft, Kammer 12/750	41
Tabelle 14: Vergleich der verschiedenen Inventare für Kammer 12/750	53

Tabelle 15: Vergleich der Inventare für andere Beta-Gamma Nuklide	54
Tabelle 16: Vergleich der Inventare für Alpha-Nuklide	56

1 Einleitung

Mit Schreiben RS III 3 – 17005/0 vom 04.07.2008 [1] hat das BMU die Entsorgungskommission (ESK) und die Strahlenschutzkommission (SSK) beauftragt, über die Sicherheit der Schachtanlage Asse II zu beraten und eine gemeinsame Stellungnahme von ESK und SSK zu folgender Fragestellung zu erarbeiten:

Sind die Angaben des Helmholtz Zentrum München für Gesundheit und Umwelt (HMGU)

- zum radioaktiven Inventar – inklusive Angabe zu Unsicherheiten,
- zum radiologischen Messprogramm innerhalb und außerhalb der Schachtanlage und
- zum den möglichen Ursachen der aufgetretenen Kontaminationen

vollständig und nachvollziehbar?

ESK und SSK haben zur Beratung der Asse-spezifischen Fragestellungen die Ad-hoc-Arbeitsgruppe ASSE eingerichtet, in der die mit dem Problemfeld Asse zusammenhängenden Fragestellungen gremienübergreifend beraten werden.

Eine Stellungnahme zu den Fragestellungen des BMU [2] wurde von der ESK in ihrer 3. Sitzung am 17.09.2008 und von der SSK in ihrer 227. Sitzung am 25.09.2008 verabschiedet. In Kapitel 5.1 enthält diese Stellungnahme eine erste Bewertung der Betreiberangaben zu dem in der Schachtanlage Asse II eingelagerten Radionuklidinventar. Außerdem wurden folgende Hinweise zu Korrekturen bei der Ermittlung des Inventars und zur Verwendung der Inventarinformationen aufgelistet:

- Zunächst sind die [in der o. g. Stellungnahme] dargestellten notwendigen Korrekturen am Inventar durchzuführen.
- Bei der Verwendung des modifizierten Inventars nach [5] für Fragen des Langzeitsicherheitsnachweises ist durch geeignete Betrachtungen abzusichern, dass mögliche Unschärfen, die sich aus den angesprochenen Punkten ergeben, sich nicht in einer erheblichen Weise auf entscheidungsrelevante Ergebnisse der Langzeitsicherheitsuntersuchung auswirken.
- Bei einer Verwendung des modifizierten Inventars nach [5] für Fragen der Planung von Maßnahmen, die von örtlichen Verteilungen des Inventars abhängen, sind mögliche Bandbreiten sehr sorgfältig abzuwägen.
- Aus der Gesamtbetrachtung (Summenbildung der Aktivitäten) ist ein Rückschluss auf Einzelgebäude aus einzelnen Kammern für die Arbeits- und Strahlenschutzmaßnahmen nicht möglich.

Wie in der 6. Sitzung der ESK/SSK-Ad-hoc-Arbeitsgruppe ASSE am 21.09.2009 vom BMU gewünscht, hat der Vorsitzende dieser Ad-hoc-Arbeitsgruppe den Diskussionsstand über das Radionuklidinventar der Asse in einem Brief [3] zusammengefasst und

am 02.11.2009 an das BMU übermittelt. Das Schreiben hat drei wichtige Aspekte zum Kenntnisstand bezüglich des Radionuklidinventars der Asse deutlich gemacht:

- Das Inventar von 2002 weist methodische und systematische Schwächen auf.
- Zu einzelnen Nukliden gibt es weitere ungelöste Fragen.
- Es liegen Indizien für falsch deklarierte Gebinde vor.

Die ESK/SSK-Ad-hoc-Arbeitsgruppe ASSE zog hinsichtlich der Belastbarkeit des Inventars, in Bestätigung der bereits in [2] enthaltenen Hinweise, folgende Schlussfolgerungen [3]:

- Beim Ansatz eines Inventars für Fragen des Langzeitsicherheitsnachweises ist durch geeignete Betrachtungen abzusichern, dass mögliche Unschärfen, die sich aus den angesprochenen Punkten ergeben, sich nicht in einer erheblichen Weise auf entscheidungsrelevante Ergebnisse der Langzeitsicherheitsuntersuchung auswirken.
- Sinngemäß das Gleiche gilt für alle generischen Betrachtungen hinsichtlich der Bewertung von Optionen bzw. des Vergleichs von Optionen. Dies gilt insbesondere bei der Beurteilung von erreichbaren Reduktionen von Risiken.
- Bei einer Verwendung des Inventars für Fragen der Planung von Maßnahmen, die von örtlichen Verteilungen des Inventars abhängen, sind mögliche Bandbreiten sehr sorgfältig abzuwägen. Dies gilt beispielsweise hinsichtlich Umlagerungen von Gebinden oder der Beräumung einzelner Einlagerungskammern, die die Freisetzbarkeit von Teilmengen des Inventars beeinflussen.
- Aus der Gesamtbetrachtung (Summenbildung der Aktivitäten) ist ein Rückschluss auf Einzelgebände aus einzelnen Kammern für die Arbeits- und Strahlenschutzmaßnahmen nicht möglich. Daraus ergibt sich zwingend, dass bei Planung und Durchführung von Arbeiten mit Gebinden vorsorglich von den ungünstigsten Randbedingungen, einschließlich der durch eine mögliche Fehldeklaration bedingten Unsicherheit, ausgegangen werden muss.

Die ESK/SSK-Ad-hoc-Arbeitsgruppe ASSE hat in ihrer 9. Sitzung 01.03.2010 zur Bündelung der erforderlichen Kompetenzen im Rahmen ihrer Beratungen und auf Grundlage einer Besprechung mit BMU am 23.03.2010 eine Unterarbeitsgruppe gebildet, die sich fokussiert mit dem Kenntnisstand zum radioaktiven Inventar der Asse auseinandersetzt und Möglichkeiten einer Verbesserung der Inventarannahmen prüft.

Mitglieder der Unterarbeitsgruppe sind

- Herr Saas (Vorsitzender)
- Herr Prof. Mengel (TU Clausthal)
- Herr Rittscher (EWN, WAK)
- Herr Odoj (FZJ)
- Herr Lennartz (FZ Jülich)

Die Unterarbeitsgruppe „Asse-Inventar“ hat in ihrer 1. Sitzung am 30./31.03.2010 über den Kenntnisstand zur Inventarproblematik beraten und erste Verbesserungsvorschläge diskutiert.

In ihrer 10. Sitzung am 30.04.2010 beschloss die ESK/SSK-Ad-hoc-Arbeitsgruppe ASSE, dass von der Unterarbeitsgruppe ein interner Bericht erstellt werden soll, in dem die Fragen und Hinweise zur Assekat-Datenbank sowie die Bewertungsgrundlagen und Schlussfolgerungen der Unterarbeitsgruppe nachvollziehbar dargestellt sind. Dem BMU soll dieser Bericht mit der Empfehlung vorgelegt werden, ihn an das BfS weiter zuleiten. Eine Diskussion des Berichtes mit dem BfS wird ausdrücklich begrüßt.

Der vorliegende Bericht vom Leiter der Unterarbeitsgruppe, Herrn SAAS unter Mithilfe von Herrn ALT erstellt. Der Entwurf wurde in der Sitzung der ESK/SSK-Ad-hoc-Arbeitsgruppe am 20.09.2010 vorgestellt und diskutiert; nach der Diskussion in der 14. Sitzung der ESK wurde beschlossen vor der Zuleitung an BMU in diesen Arbeitsbericht die wichtigsten Anmerkungen der ESK/SSK-Ad-hoc-Arbeitsgruppe ASSE zu übernehmen.

2 Bewertung der Untersuchungsergebnisse

2.1 Zugrunde liegende Informationen

Entsprechend dem Beratungsauftrag des BMU [1] hat die ESK-SSK-Ad-hoc-Arbeitsgruppe Asse Analysenergebnisse zur Kontamination der Lauge im Sumpf vor Kammer 12 sowie den Bericht zur Bestimmung des radioaktiven Inventars der Asse aus dem Jahr 2002 [5] erhalten und ihren Beratungen zugrunde gelegt. Aus diesen Informationen konnten zunächst ausschließlich Abschätzungen zu Tritium und Cäsium abgeleitet werden, da nur für diese Nuklide umfassende, längerfristig erhobene Datensätze zur Laugenkontamination vorlagen.

Da die eingelagerten Abfälle von Art und Herkunft her Ähnlichkeiten zu den im französischen Centre de La Manche aufweisen (siehe hierzu auch Unterlage [6]), konnten für weitere Abschätzungen außerdem Erfahrungen aus dieser Quelle mit herangezogen werden.

Im März 2009 wurde ein Bericht zur Herkunft der kontaminierten Lösungen vor Kammer 12 [7] zur Verfügung gestellt. Dieser Bericht enthält Messwerte zum Gehalt an weiteren Radionukliden in der Lauge (^{90}Sr , $^{238-239}\text{Pu}$, ^{241}Am , $^{235-238}\text{U}$) sowie von einigen chemischen Bestandteilen (Eisen, Mangan usw.). Auf dieser Grundlage waren weitere Abschätzungen möglich.

Im Mai 2009 wurde ergänzend ein Bericht der TU Clausthal zur möglichen Herkunft und Genese der auf der 750- und der 775-m-Sohle auftretenden Salzlösungen und darin enthaltenen Radionuklide“ [8] übersandt.

Nach Konstituierung der Unterarbeitsgruppe wurden als weitere Unterlagen Daten der Strahlenschutzüberwachung [9] und die Datenbank Assekat, Version 9.2 [10] zur Verfügung gestellt. Zuletzt berichtete BfS auf der Sitzung der ESK-SSK-Ad-hoc-AG am 28.04.2010 über seinen Kenntnisstand hinsichtlich flüchtiger Nuklide (^3H , ^{14}C , ^{129}I , usw., s. [11]).

Das BMU hat darauf hingewiesen, dass die vorliegende Datenbank eine Arbeitsversion ist, zu der keine Nutzeranleitung existiert. In der Sitzung am 28.04.2010 wurde daher gewünscht, dass für die weiteren Beratungen im Zusammenhang mit der Datenbank die jeweils beteiligten Mitarbeiter des BfS hinzugezogen werden.

Eine seitens BfS angekündigte Aufarbeitung der Datenbasis inklusive einem für externe Bearbeiter nutzbaren Benutzerhandbuch der Datenbank Assekat steht derzeit noch aus.

Zwischenzeitlich wurden zur Ergänzung der Datenbasis aktuelle Untersuchungsergebnisse der TU Clausthal zur Verfügung gestellt [20], die die Ergebnisse monatlich durchgeführter Analysen aus dem Zeitraum Juli 2008 bis Mai 2010 enthalten und im Rahmen des hier vorgelegten Berichts insbesondere zur Ergänzung der Datensätze für Tritium und ^{137}Cs genutzt wurden.

Mit Schreiben vom BfS am 5.10.2010, wurde ein neuer Bericht zur Verfügung gestellt [21], der eine Zusammenstellung der Cs-Aktivitätskonzentrationen der kontaminierten Salzlösungen enthält.

Zwei weitere wesentlichen Berichte:

- Standortbezogene Freigabe von Zutrittslösungen aus der Schachanlage Asse, Abschlussbericht, Brenk Systemplanung, Aachen, 05.05.2010, und
- Beprobung und Analyse von Salzlösungen 2009, Schachanlage Asse II, Endbericht, Brenk Systemplanung, Aachen, 16.12.2009,

standen während der Bearbeitung nicht zu Verfügung und sind in die Bewertungen nicht einbezogen.

2.2 Plausibilitätsbetrachtung zum Inventar der Kammer 12/750 aus der Rückrechnung der Untersuchungsergebnisse aus dem Laugensumpf vor Kammer 12/750 (Messstelle 21)

In den Jahren 2005 bis 2008 wurden aus dem Laugensumpf vor Kammer 12/750 innerhalb von 3 Jahren insgesamt 74 m³ radioaktiv kontaminierte Lauge entnommen und in den Tiefenaufschluss verbracht. Aus den hierbei gewonnenen Informationen zum Nuklidgehalt (Caesium und Tritium) der abgeführten Lauge lässt sich die ausgelagte Nuklidmenge für die untersuchten Nuklide abschätzen und mit dem in dem 2002 dokumentierten Inventar in Kammer 12/750 vergleichen.

2.2.1 Auslaugung von Tritium aus Kammer 12/750

Ausgangsüberlegung:

- Tritium-Inventar, Stichtag 01.01.1980: $8,76 \cdot 10^{10}$ Bq [5]
- Tritium-Inventar, Stichtag 01.01.2003: $2,40 \cdot 10^{10}$ Bq [2] und [3]
- Tritium-Inventar, Stichtag 01.01.2008: $1,81 \cdot 10^{10}$ Bq [2]
- Tritium-Konzentration in Messstelle 21: ca. $2,2 \cdot 10^5$ Bq/l Dieser Wert basiert auf Erfahrungswerten aus dem Centre de La Manche [6]
- Wassermenge 2005-2008: 74 m³

Aus der angenommenen Tritium-Konzentration und der entnommenen Wassermenge lässt sich vereinfacht abschätzen, dass innerhalb der betrachteten 3 Jahre eine Tritium-Menge von etwa $2,2 \cdot 10^5 \times 74 \cdot 10^3 = 1,63 \cdot 10^{10}$ Bq über den Laugensumpf vor Kammer 12/750 aus der Kammer ausgetragen wurde.

Vergleicht man diesen Wert mit dem aus Assekat errechneten Inventar innerhalb der Kammer 12/750 zum Stichtag 01.01.2008, dann müsste man hieraus schließen, dass etwa 90 % des Tritiums bereits aus der Kammer ausgetragen sind. Erfahrungen aus dem französischen Centre de la Manche (Auslaugungsrate: $2,0 \cdot 10^{-2}$ /Jahr) lassen diesen Schluss allerdings nicht plausibel erscheinen. Die Auslaugung deutet eher daraufhin, dass das Tritium-Inventar in Assekat erheblich unterschätzt wird, zumal der angesetzte Schätzwert der Tritiumaktivität von $2,2 \cdot 10^5$ (abgeleitet nach Erfahrungen aus [6]) gegenüber den Messwerten in [9] ja noch eine Größenordnung zu niedrig angesetzt ist und daher die reale Auslaugung höher liegen würde als das Assekat-Tritiuminventar.

Unter Berücksichtigung vergleichbarer französischer Abfälle [6] und den Erfahrungen zur Auslaugung ($2,0 \cdot 10^{-2}$ /Jahr) im Centre de La Manche wird daher das Inventar für Tritium in Kammer 12/750 im Rahmen dieses Berichts auf $5,4 \cdot 10^{12}$ Bq geschätzt.

Mit Schreiben der TU Clausthal an die ESK vom 22.01.2009 „Tritium-Inventar des Bergwerks Asse II“ [12], sowie mit Email des Forschungszentrums Jülich [13] vom 24.02.2009 wurde eine Abschätzung des Tritium-Inventars in Grafitkugeln des AVR, die i.W. in Kammer 12/750 eingelagert wurden, mitgeteilt. Die Angaben wurden in einer Stellungnahme des FZJ vom November 2009 [16] bestätigt.

Laut den darin enthaltenen Informationen wurden seinerzeit bei der Abgabe an die Schachanlage Asse weder Tritium noch ^{14}C in den AVR-Kugeln bilanziert. Für das Tritiuminventar der AVR-Grafitkugeln sei nach heutigem Kenntnisstand von etwa $6,0 \cdot 10^{12}$ Bq auszugehen. Beide Abschätzungen stimmen gut überein, so dass die von den Ergebnissen aus Jülich unabhängigen Abschätzungen aus französischen Erfahrungswerten auch für die in der Asse eingelagerten vergleichbaren Abfälle herangezogen werden können.

Unter Verwendung der Daten aus [9] kann man weitere Betrachtungen zum Tritium in Kammer 12/750 anstellen. Von BMU wurden diesbezüglich Daten mit Ergebnissen von Aktivitätsmessungen in Proben aus der Messstelle 21 zur Verfügung gestellt. Die Messstelle beschreibt den Laugensumpf vor Kammer 12/750. Die Daten enthalten i.W. Angaben zur Aktivität von Tritium und ^{137}Cs aus monatlich durchgeführten Messungen im Zeitraum Januar 1994 bis Dezember 2007.

Für die Bewertung der Entwicklung der Tritium-Aktivität in Messstelle 21 wurde folgende Hypothese angenommen:

- Abfallentstehung: 1972
- Einlagerung der Abfälle: 1973-1974
- Abklingzeit: seit 01.01.1972

Die Darstellung der Tritiumaktivität im Laugensumpf vor Kammer 12/750 (Abb. 1) zeigt im längerfristigen Trend zwischen 1995 und 2004 eine tendenziell abklingende Tritiumaktivität. Dies deutet daraufhin, dass die in Messstelle 21 beobachteten Aktivitäten in diesem Zeitraum auf die Auslaugung einer einzelnen Quelle zurückgehen, die einerseits dem Zerfall, andererseits dem sukzessiven Austrag von Wasserstoff über den Kontakt mit Lauge, ggf. auch über den Gaspfad, unterliegt.

Abb. 2 zeigt die Tritium-Konzentration in der Lauge vor Kammer 12/750 in einer Rückrechnung des Zerfalls auf den Zeitraum der Abfallentstehung, als Stichtag wurde der 01.01.1972 angesetzt. Diese zerfallskorrigierten Werte zeigen im Zeitraum 1995 bis 2004 ebenfalls einen über mehrere Jahre abnehmenden Trend, der nun direkt auf die Auslaugung zurückgeführt werden kann. In der Zeit von 1994 bis 2004 wurde der Laugensumpf nach Angaben des BfS nicht geleert, sondern nur zu Messzwecken beprobt.

Zwei einzelne Konzentrationsspitzen im März/April 2002 und Februar 2003 passen hier nicht ins Bild und bedürfen, falls sie nicht als Messfehler zu interpretieren sind,

einer gesonderten Erklärung. Ggf. haben hier kurzzeitig einzelne neu mit Lauge in Kontakt getretene Abfallgebinde zur Laugenkontamination beigetragen.

Die außerdem zu beobachtenden Schwankungen höherer Frequenz scheinen einem Jahresgang zu folgen. Die Minima liegen zwischen 1995 und 2004 immer im August oder September des betrachteten Jahres. Ein absteigender Trend scheint jeweils im Mai zu beginnen. Eine mögliche Ursache wäre eine jährliche Entleerung des Laugensumpfes. Allerdings wurde nach Angaben des BfS in der Zeit von 1994 bis 2004 der Laugensumpf nicht geleert, so dass hiermit der "Jahresgang" nicht erklärt werden kann. Den Ursachen für den „Jahresgang“ sollte nachgegangen werden um andere jahreszeitliche Ursachen ausschließen zu können. Eine mögliche Korrelation zwischen den Tritium-Gehalten in der Grubenuft und in der Lösung vor Kammer 12/750 sollte dabei überprüft werden.

Ab 2005 bis November 2007 steigt der Tritiumgehalt in beiden Abbildungen sukzessive an, was durch die Auslaugung zusätzlicher Abfallgebinde erklärt werden kann. Außerdem erhöht sich die Frequenz der kleineren Werteschwankungen; ein „Jahresgang“ ist nun nicht mehr zu erkennen.

Allerdings setzt sich dieser Trend nicht fort; die ergänzenden Daten der TU Clausthal [20] zeigen, dass zwischen Mitte 2008 und Mitte 2010 erneut ein abnehmender Trend der Tritiumaktivitäten zu verzeichnen ist, der nun (vorbehaltlich der Kürze des ergänzenden Datensatzes) auch wieder einen Jahresgang-ähnlichen Verlauf analog zum Zeitraum vor 2005 zeigt. Seit 2008 nach Angaben des BfS, keine Lösung mehr abgepumpt worden [21].

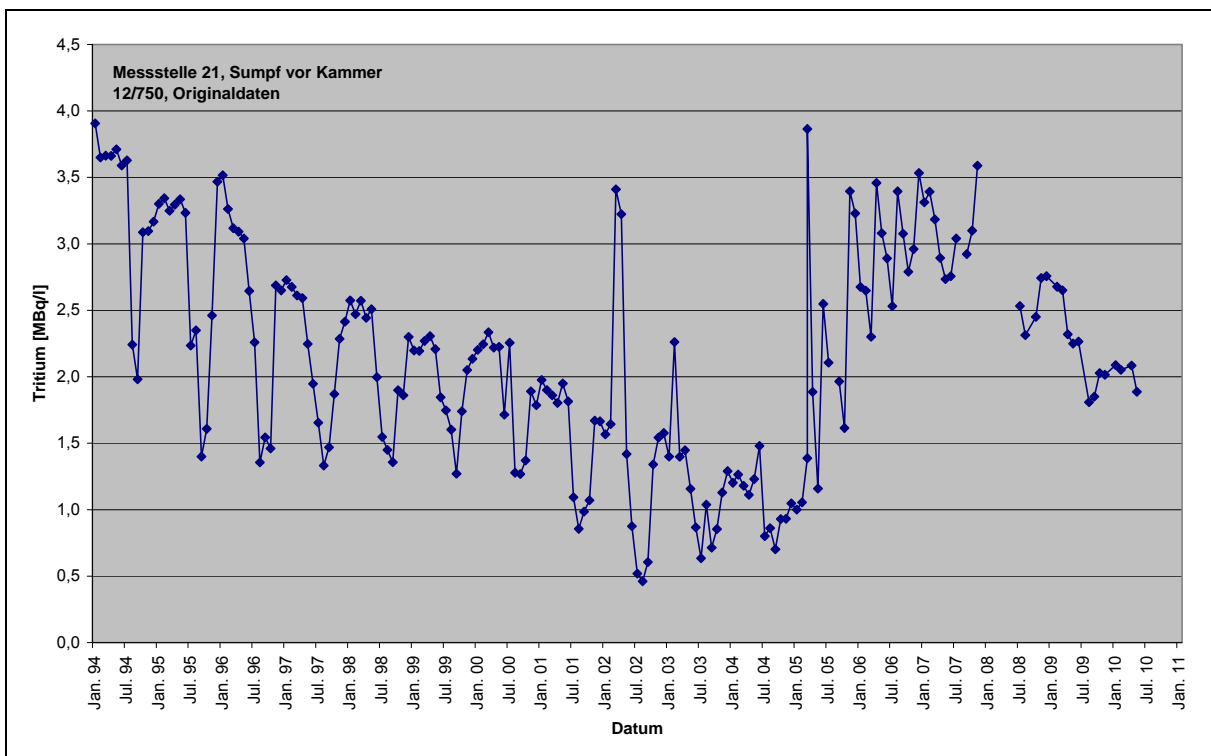


Abbildung 1: Tritiumgehalte in Messstelle 21, Originaldaten aus [9], in MBq/l, (ergänzt für 2008-2010 nach [20])

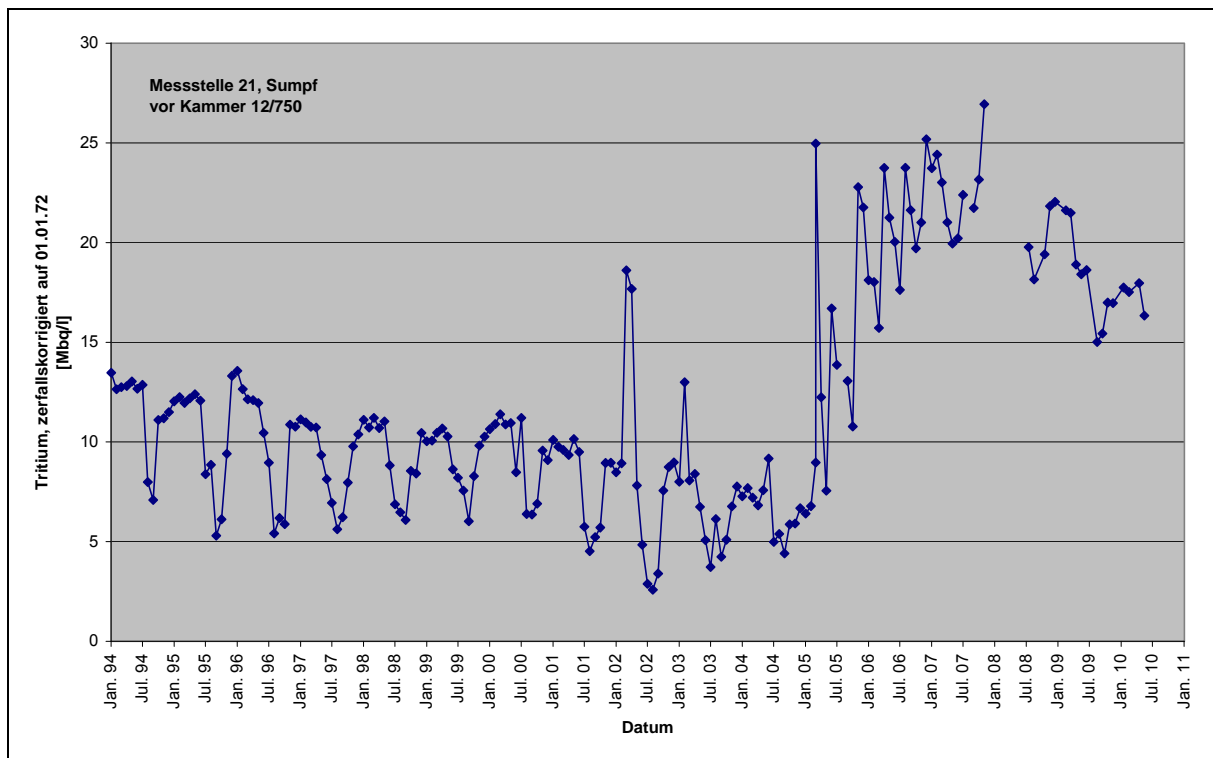


Abbildung 2: Tritiumgehalte in Messstelle 21, zerfallskorrigiert, Rückrechnung auf Stichtag 01.01.1972, in MBq/l (ergänzt für 2008-2010 auf Grundlage von [20])

Das Dokument „Laugeproben – Schachanlage Asse II – Probenahmestelle Nr. 21 (Laugebecken vor Ka. 12-750m S.)“ aus [9], in dem hauptsächlich Aktivitäten für Cs und Co im gleichen Beobachtungszeitraum aufgelistet werden, enthält für den Februar 2005 die Bemerkung „Ab 28.02.05 wurde der Laugensumpf entleert, gereinigt und der Laugenzulauf ständig abgepumpt“. In der Folgezeit stiegen die Aktivitäten für Cs und Co gegenüber dem Zeitraum vor der Sumpfentleerung deutlich an. Dies entspricht der Beobachtung für Tritium, so dass auch hier der Anstieg seit Jahresanfang 2005 vermutlich mit der Sumpfentleerung und insbesondere mit dem seither „ständigen“ Abpumpen des Laugenzutritts in Zusammenhang steht (s. a. Abb. 3). Die zunehmende Bedeutung von ^{137}Cs weist außerdem daraufhin, dass etwa ab 2001 neue Abfalltypen verstärkt der Auslaugung unterliegen, da im vorherigen Zeitraum Cäsium im Vergleich mit Tritium eine untergeordnete Rolle bei der Laugenkontamination spielte.

Die nach [20] ergänzten Daten für den Zeitraum ab Mitte 2008 zeigen, dass sich der Anstieg der ^{137}Cs -Aktivitäten ab Mitte 2008 nicht fortsetzt. Die Aktivitäten gehen seither offenbar deutlich zurück. Zu beachten ist dabei, dass seit 2008 keine Lösung mehr abgepumpt wird und daher keine zusätzliche Strömung aus der Kammer heraus mehr induziert wird. Auffällig, im Detail allerdings noch zu interpretieren, ist der im "Jahresgang" zu beobachtende gegenläufige Trend der ^{137}Cs -Aktivitäten im Vergleich zum Tritium: steigende Tritium-Aktivität geht offenbar mit zurückgehender ^{137}Cs -Aktivität einher und umgekehrt. Eine mögliche, aber noch zu verifizierende Interpretation: Der Messstelle 21 strömt in diesem Zeitraum weniger stark kontaminierte Lösung zu (sinkende Tritium-Aktivität), die aber mit dem stark ^{137}Cs -

kontaminierten Bodensatz der Messstelle nicht im Gleichgewicht steht und daher zur Rücklösung von ^{137}Cs führt (ansteigende ^{137}Cs Aktivität).

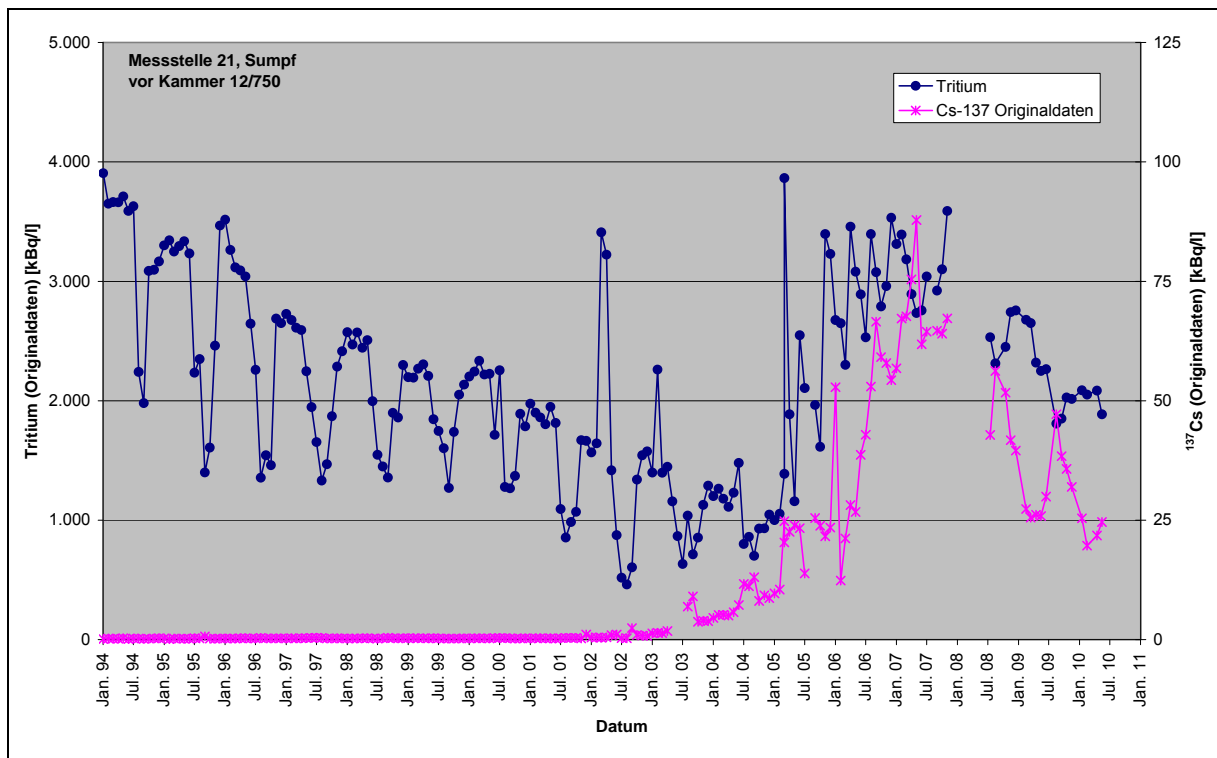


Abbildung 3: Tritiumaktivität und ^{137}Cs -Aktivität in Messstelle 21 (Originaldaten), in kBq/l (ergänzt für 2008-2010 nach [20])

Für die weitere Interpretation des Datensatzes wären folgende Informationen hilfreich:

- Zeitlicher Verlauf der aus dem Sumpf vor Kammer 12/750 entnommenen Laugenmenge
- Ergänzung des Datensatzes um Tritium-Messungen und zugehörigen Bestimmungen der Laugenmengen der GSF Neuherberg seit Beginn der Überwachung

Aus den bisherigen Betrachtungen ergibt sich eine erste Hypothese zum Ablauf der Auslaugung und zum Zustand der Kammer 12/750. Es besteht dabei der Auffassung, dass das Tritium aus Kammer 12/750 i.W. aus getrockneten und verfestigten flüssigen Abfällen aus Kernkraftwerken (Verdampferkonzentrate, Filterhilfsmittel) stammt. Das Tritium der AVR-Grafitkugeln liegt in einer adsorbierten Form vor und dürfte, in den ersten Jahren, an der Auslaugung weniger beteiligt sein. Das Assekat-Inventar gibt diesbezüglich aber keine Hinweise, da in den entsprechenden Abfällen Tritium

nicht deklariert wurde. Insofern wäre zu konstatieren, dass dieses Tritium im Inventar der Kammer 12/750 nicht erfasst ist.

Bezüglich der zu beobachtenden Messwertschwankungen ergibt sich der Eindruck dass die Migration von Lauge aus Kammer 12/750 in den vorgelagerten Sumpf aus mehreren Reservoirs gespeist wird. Am Boden der Kammer sollte ein größeres Laugenvorkommen (mehrere m³) existieren, dass mit dem Laugensumpf kommuniziert. In dieses Laugenvorkommen emittieren kleinere Reservoirs, die sich z.B. auf Gebindedeckeln, innerhalb von Abfallgebinden und unlöslichen Abfallkomponenten (Verdampferkonzentrate, Filterhilfsmittel Eisenoxiden, Korrosionsrückstände, Bitumenfladen o.ä.) ansammeln, dort Tritium und andere Kontaminanten aufnehmen und beim Überfließen diese Stoffe in das Laugenreservoir am Kammerboden transportieren.

Der Verlauf der Tritiumaktivität weist daraufhin, dass über die Zeit mehrere, wahrscheinlich unterschiedliche Abfalltypen zur Tritium-Kontamination der Lauge beigetragen haben. Zunächst unterlagen wahrscheinlich ausschließlich Verdampferkonzentrate und Filterhilfsmittel der Auslaugung, ab 2003 zusätzlich Cäsium-haltige Abfälle, die vorher keinen Kontakt mit Lauge hatten. Für eine Bestimmung dieser Abfalltypen müssten weitere Informationen zur Nuklidzusammensetzung der Lauge (Kobalt, Cäsium, Uran, ...) und zur allgemeinen chemischen Zusammensetzung der Lauge vorgelegt werden.

Schließlich muss auch die Flüchtigkeit von Tritium betrachtet werden. Nach Angaben des BfS [11] ist Tritium auch in der Grubenluft regelmäßig nachweisbar (z.B. 1984: 0,5 MBq/m³ in den abgeschlossenen Einlagerungskammer). Im Jahr 2009 wurde auf der 750-m-Sohle Tritium-Aktivitätskonzentrationen zwischen 8 und 21 Bq/m³ gemessen. Diese Luftkonzentration des Tritiums ist vergleichbar mit französischen Erfahrungen aus dem Centre de la Manche. Die Befunde weisen auf einen zusätzlichen Austragspfad, z.B. durch luftdurchlässigen Salzgrus hin. Bei einer Öffnung der Kammer 12/750 muss daher luftgetragenes Tritium und seine chemische Bindungsform (Wasserstoffgas, Wasserdampf, Methan, und andere organische Stoffe) gemessen werden.

In der gemeinsamen Stellungnahme der ESK/SSK [17] wurden die hierzu verfügbaren Ergebnisse der Abluftmessungen der letzten Jahre berücksichtigt (s. a. Tabelle 1). Mit dem abgeschätzten Inventar (inklusive der Grafitkugeln aus dem AVR) von etwa $5,00 \cdot 10^{13}$ Bq (Aktivität im Jahr 1984) in der Kammer 12/750 (entspricht ca. 90 % des Gesamtinventars) ergibt sich für das luftgetragene Tritium der Kammer eine Entgasung von ungefähr 0,1 %/a.

Tabelle 1: Beantragte Ableitungen radioaktiver Stoffe mit der Fortluft der Schachanlage Asse II im Vergleich mit den mittleren und maximalen jährlichen Ableitungen aus den Betriebsjahren 2001 - 2008

Radionuklid	Antragswert [Bq/Kalenderjahr]	Mittlere jährliche Ableitung aus den Jahren 2001-2008 [Bq/Kalenderjahr]	Maximale jährliche Ableitung aus den Jahren 2001-2008 [Bq/Kalenderjahr]
Tritium	$1,0 \cdot 10^{12}$	$4,3 \cdot 10^{10}$	$5,5 \cdot 10^{10}$
Kohlenstoff 14	$1,0 \cdot 10^{10}$	$1,0 \cdot 10^9$	$1,3 \cdot 10^9$
Aerosole	$1,0 \cdot 10^7$	$1,1 \cdot 10^6$	$1,6 \cdot 10^6$
Rn 222 ohne Töchter	$1,0 \cdot 10^{12}$	$9,0 \cdot 10^{10}$	$9,4 \cdot 10^{10}$

2.2.2 Auslaugung von Cäsium aus Kammer 12/750

Ausgangsüberlegung:

- ^{137}Cs - Inventar, Stichtag 01.01.2003: $2,31 \cdot 10^{11}$ Bq [5] und [10]
- ^{137}Cs - Inventar, Stichtag 01.01.2008: $1,11 \cdot 10^{13}$ Bq [5]
- ^{137}Cs - Aktivität in Messstelle 21: ca. $6,2 \cdot 10^4$ Bq/l [7], bzw. zwischen $5,4 \cdot 10^4$ Bq/l und $6,7 \cdot 10^4$ Bq/l [9]. Für die folgende Abschätzung wurde ein mittlerer Wert von $6,0 \cdot 10^4$ Bq/l verwendet.
- Wassermenge 2005-2008: 74 m^3

Aus der ^{137}Cs - Aktivität und der entnommenen Wassermenge lässt sich vereinfacht abschätzen, dass innerhalb der betrachteten 3 Jahre eine ^{137}Cs -Menge von etwa $6,0 \cdot 10^4 \times 74 \cdot 10^3 = 4,44 \cdot 10^9$ Bq über den Laugensumpf vor Kammer 12/750 aus der Kammer ausgetragen wurde. Dies entspricht etwa $1,5 \cdot 10^9$ Bq/a oder, im Vergleich zum ^{137}Cs -Inventar der Kammer (Stichtag 01.01.2008), einer jährlichen Auslaugungsrate von ca. $1,35 \cdot 10^{-4}$.

Untersuchungen zur Auslaugung gleichartiger Abfälle in Frankreich zeigen ähnliche Verhältnisse ($4,0 \cdot 10^{-5}$ /Jahr) so dass der Zusammenhang zwischen Auslaugung und Inventar plausibel erscheint. Die Löslichkeit in den Salzlaugen wurde durch experimentelle Prüfungen am INE in Karlsruhe bestätigt [14].

Die Aktivität von ^{135}Cs wurde bisher nicht direkt gemessen. Mit Hilfe der Inventar-Angaben und der Aktivität von ^{137}Cs kann man aber auch Rückschlüsse auf die Aktivität von ^{135}Cs in der Lauge vor Kammer 12/750 ziehen:

- ^{135}Cs - Inventar, Stichtag 01.01.2003: $8,96 \cdot 10^7$ Bq [5] und [10]
- ^{137}Cs - Inventar, Stichtag 01.01.2003: $1,27 \cdot 10^{13}$ Bq [5] und [10]
- Verhältnis von $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$: $7,1 \cdot 10^{-6}$
- ^{137}Cs - Konzentration in Messstelle 21: ca. $6,0 \cdot 10^4$ Bq/l (s.o.)

Unter der Voraussetzung, dass das Verhältnis $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ bei der Auslaugung konstant bleibt, lässt sich aus der ^{137}Cs -Konzentration in der Lauge auch die von ^{135}Cs abschätzen. Es ergibt sich ein Wert von ca. 0,4 Bq/l.

Die in Brennelementen gebildeten, und im Rahmen der Wiederaufarbeitung in die Abfälle übergegangenen, Mengen der Cäsiumisotope 133, 135 und 137 sind aus Erfahrungswerten bekannt. Nach 30 Jahren Abklingzeit bildet dabei ^{137}Cs ungefähr ein Fünftel der gesamten Cs-Masse. Das im Inventar für Kammer 12/750 vermerkte Inventar an ^{137}Cs entspricht einer Masse von etwa 4,11 g. Die Gesamtmasse an Cs sollte also etwa das 5-fache dieses Wertes betragen, etwa 20,6 g. Die chemische Konzentration von Cäsium in der Salzlösung kann man dann aus der Aktivität von ^{137}Cs abschätzen (Aus dem Inventar 2003 ergibt sich: $20,6\text{g}/1,27 \cdot 10^{13} \text{ Bq} = 1,6\text{E-}6 \mu\text{g/Bq}$); für die Salzlauge beträgt die Abschätzung dann etwa 0,01 $\mu\text{g/l}$ für eine Aktivität von ca. $6,0 \cdot 10^4 \text{ Bq/l}$.

Wendet man diese Umrechnung der Aktivität in eine Konzentrationsangabe auf die durch TU Clausthal in [20] dokumentierten Messwerte für 2008 bis 2010 an, ergeben sich für ^{137}Cs Werte, deren Größenordnung den in [20] ebenfalls angegebenen Cs-gesamt-Konzentrationen entspricht:

Tabelle 2: Vergleich der Angaben zur ^{137}Cs -Aktivität und der Cs-Konzentration in Laugeproben aus der Messstelle 21 im Zeitraum 2008 bis 2010 (nach [20])

Datum	^{137}Cs		Cäsium-gesamt		Lösungsdichte g/mL ⁵
	(Bq/L) ¹	($\mu\text{g/l}$) ²	($\mu\text{g/l}$) ³	[ppm] ⁴	
15.07.2008	4,28E+04	6,95E-02	5,42E-02	0,041	1,323
15.08.2008	5,62E+04	9,12E-02	6,48E-02	0,049	1,322
15.10.2008	5,17E+04	8,38E-02	8,46E-02	0,065	1,301
15.11.2008	4,18E+04	6,77E-02	5,18E-02	0,039	1,328
15.12.2008	3,96E+04	6,42E-02	5,71E-02	0,043	1,329
15.02.2009	2,74E+04	4,44E-02	2,98E-02	0,022	1,354
15.03.2009	2,55E+04	4,14E-02	4,02E-02	0,030	1,341
15.04.2009	2,62E+04	4,24E-02	2,97E-02	0,022	1,350
15.05.2009	2,59E+04	4,19E-02	2,68E-02	0,020	1,342
15.06.2009	3,00E+04	4,86E-02	3,70E-02	0,027	1,370
15.08.2009	4,72E+04	7,65E-02	5,11E-02	0,038	1,345
15.09.2009	3,84E+04	6,23E-02	3,55E-02	0,026	1,364
15.10.2009	3,57E+04	5,80E-02	3,08E-02	0,023	1,339
15.11.2009	3,20E+04	5,18E-02	3,12E-02	0,023	1,358
15.01.2010	2,54E+04	4,12E-02	3,10E-02	0,023	1,347
15.02.2010	1,97E+04	3,19E-02	2,87E-02	0,021	1,369
15.04.2010	2,18E+04	3,53E-02	2,82E-02	0,021	1,344
15.05.2010	2,46E+04	3,99E-02	2,86E-02	0,021	1,361

1: aus [20]

2: umgerechnet mit Faktor $1,6\text{E-}6 \mu\text{g/Bq}$, s.o. Cs-gesamt

3: umgerechnet aus ppm (4) und Dichte der Lösung (5) nach [20]

Daraus lässt sich im Rahmen der Unterschiede zwischen den Messmethoden schließen, dass das in der Lösung chemisch nachweisbare Cäsium i.W. aus ^{137}Cs besteht und kein ausgesprochen geogener Cäsium-Anteil in der Lösung vorhanden ist.

Unter Verwendung der Daten aus [9] kann man weitere Aussagen im Hinblick auf die Herkunft der Cäsium-haltigen Abfälle ableiten. Im Januar und Februar 1988 wurden, bei insgesamt niedriger Cs-Aktivität, an mehreren Terminen neben der Aktivität von ^{137}Cs auch die von ^{134}Cs in der Lauge vor Kammer 12/750 bestimmt.

Rechnet man die dabei festgestellten Aktivitätswerte auf den Stichtag 01.01.1974 zurück, der in etwa die Einlagerungszeit¹ der Cäsium-haltigen Abfälle in Kammer 12/750 beschreibt zurück, erhält man einen aufschlussreichen Vergleich zum Ausgangsgehalt beider Isotope (Tabelle 3):

Tabelle 3: Verhältnis von ^{134}Cs zu ^{137}Cs in der Lauge vor der Kammer 12/750

Probenahme	^{134}Cs [Bq/l] (Originaldaten)	^{134}Cs [Bq/l] (01.01.1974)	^{137}Cs [Bq/l] (Originaldaten)	^{137}Cs [Bq/l] (01.01.1974)	$^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$ (01.01.74)
25.01.1988	2,5	260	694	959	3,68
27.01.1988	2,8	292	619	855	2,93
01.02.1988	1,8	189	497	687	3,64
10.02.1988	1,1	116	356	492	4,24
18.02.1988	1,0	106	289	400	3,76

Zwischen dem Zeitpunkt der Messung 1988 und dem Stichtag 01.01.1974 liegt ein Zeitraum von etwa 14 Jahren, was bezogen auf ^{134}Cs etwa 6-7 Halbwertzeiten entspricht. Es ist also zu beachten, dass die Messwerte für ^{134}Cs aufgrund der vergleichsweise kurzen Halbwertzeit niedrig sind und daher aus der Bestimmungsgrenze heraus eine größere Ungenauigkeit aufweisen, die sich auf die rück gerechneten Daten überträgt.

Unter diesen Umständen lag das Verhältnis der beiden Isotope zur Einlagerungszeit bei etwa 1:3 bis 1:4 und zeigt damit, dass das Cäsium mit hoher Wahrscheinlichkeit aus Verdampferkonzentraten stammt, für die Verhältnisse zwischen 1:3 und 1:5 typisch sind.

Die hohe Löslichkeit des Cäsiums im Kontakt mit zutretender Salzlauge (s. a. [14]) zeigt sich auch in dem von Mitte 2002 bis Ende 2007 zu beobachtenden Anstieg der ^{137}Cs -Aktivität, der offenbar durch den verstärkten Kontakt Cäsium-haltiger Abfälle mit Salzlauge verursacht wird (Abb. 4).

Die Ergänzung des Datensatzes durch Ergebnisse der TU Clausthal [20] weist für den sich anschließenden Zeitraum (Daten liegen ab Juli 2008 bis Mai 2010 vor) in der Tendenz einen deutlichen Rückgang der ^{137}Cs -Aktivität auf, insofern setzt sich der Trend der Vorjahre offenbar nicht fort.

¹ Ende 1973/Anfang 1974

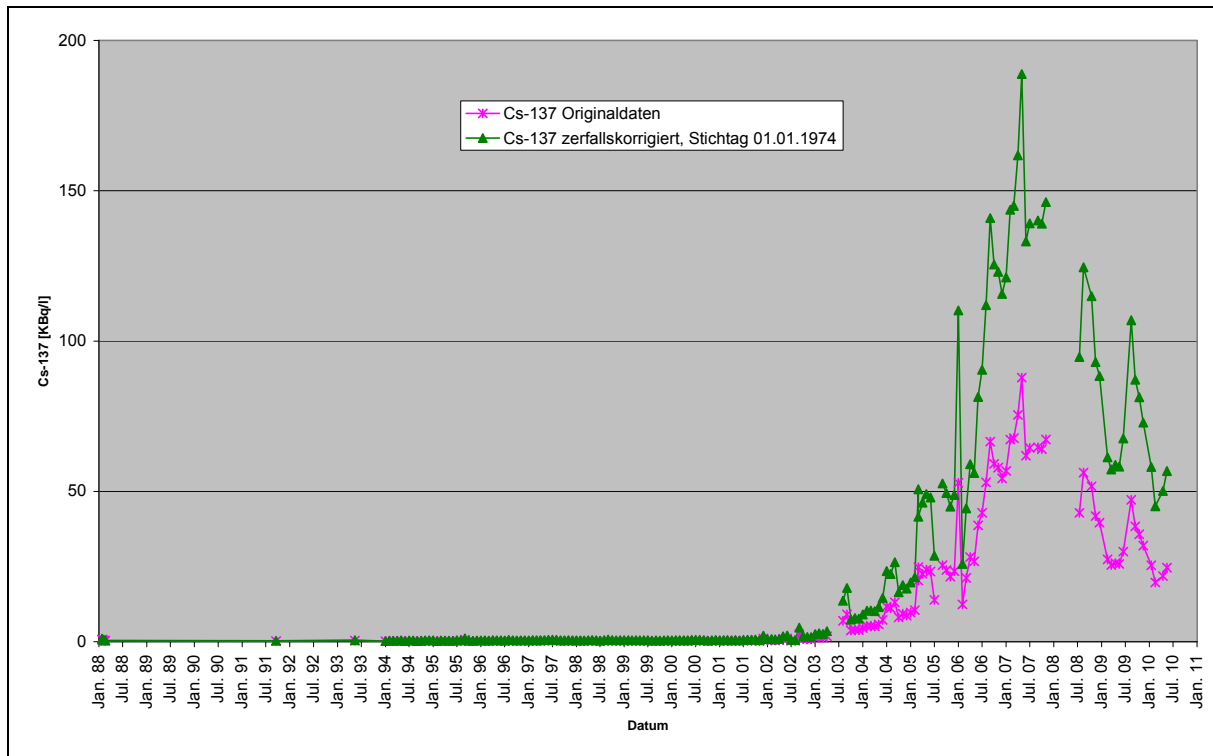


Abbildung 4: ^{137}Cs -Aktivität in Messstelle 21, Originaldaten und Rückrechnung auf den Stichtag 01.01.1974, in kBq/l (ergänzt für 2008-2010 nach [20])

Aus der Bewertung der vorliegenden Daten und angestellten Überlegungen zu Cäsium und dem Vergleich mit der Tritium-Aktivität ergeben sich folgende Schlussfolgerungen:

- Die Messungen aus dem Jahr 1988 zeigen zunächst, dass ^{134}Cs nachgewiesen wurde, woraus man das Verhältnis $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$ bilden und mit dem Verhältnis in bekannten typischen Abfällen vergleichen kann. Unter Berücksichtigung der Ungenauigkeiten durch den bereits weitgehenden Zerfall des ^{134}Cs lässt sich daraus schließen, dass das Cäsium in Messstelle 21 mit hoher Wahrscheinlichkeit aus flüssigen Abfällen aus Kernreaktoren stammt, die als Verdampferkonzentrate eingelagert wurden.
- Die Messungen vom ^{137}Cs und Tritium wurden ab 1994 mit wenigen Ausnahmen monatlich durchgeführt. Hieraus ergibt sich die Möglichkeit, beide Parameter miteinander zu vergleichen (Abb. 5 und 6). Für eine Rückrechnung der Aktivitäten wurde hier für beide Nuklide der Stichtag 01.01.1974 gewählt, der ungefähr dem Einlagerungszeitraum der Cäsium-haltigen Abfälle entspricht.

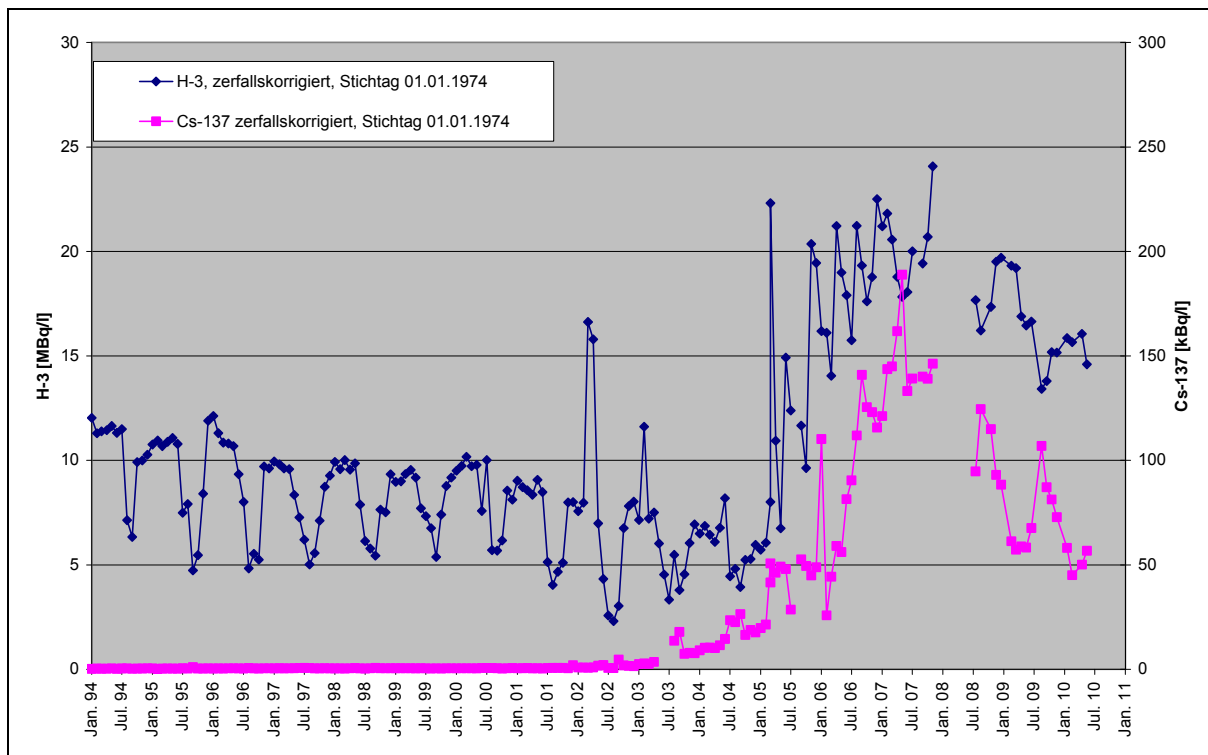


Abbildung 5: ^{137}Cs und Tritium in Messstelle 21, zerfallskorrigiert (Rückrechnung auf den Stichtag 01.01.1974) Tritium in MBq/l, ^{137}Cs in kBq/l (ergänzt für 2008-2010 nach [20])

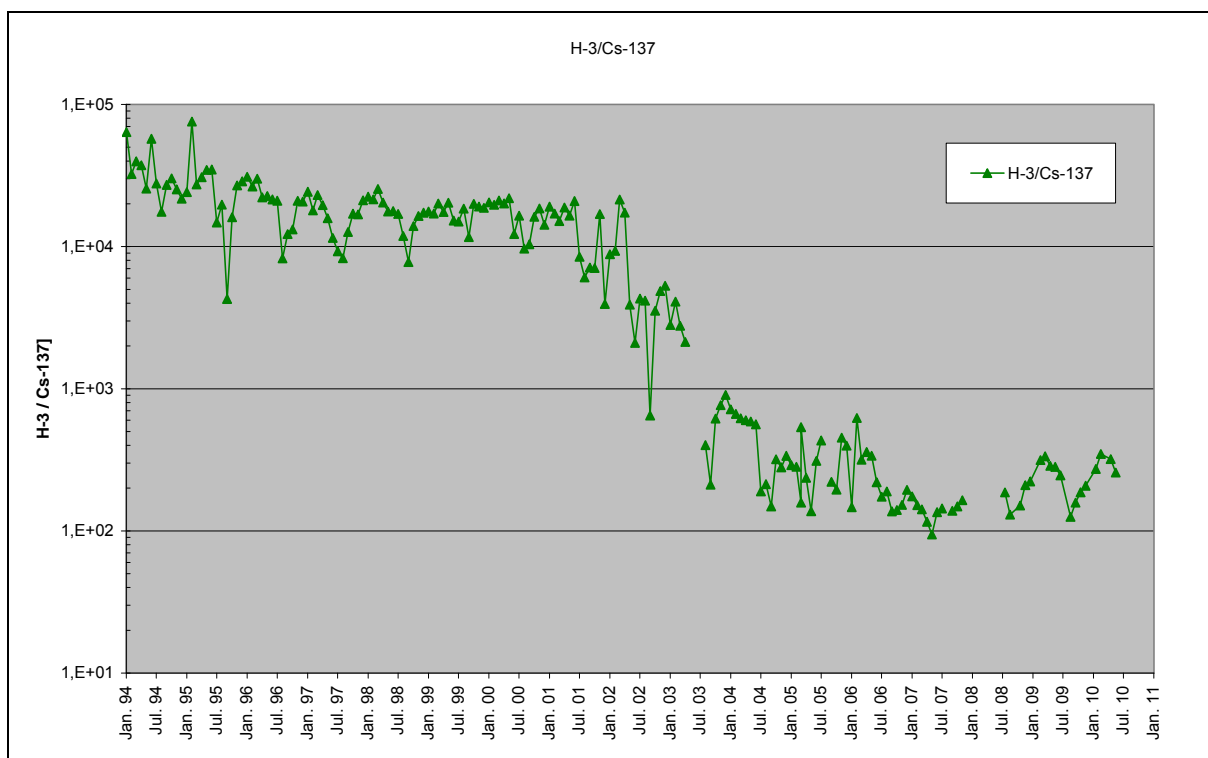


Abbildung 6: Verhältnis der Aktivitäten von Tritium zu ^{137}Cs in Messstelle 21, zerfallskorrigiert (Rückrechnung auf den Stichtag 01.01.1974) (ergänzt für 2008-2010 nach [20])

- Bis Juni 2001 ist dabei eine vergleichsweise stabile Auslaugung zu beobachten. Mit der Zeit nimmt die zerfallskorrigierte Tritium-Aktivität aufgrund der Auslaugung langsam ab, während die zerfallskorrigierten Cäsiumwerte auf niedrigem Niveau in etwa zwischen 300 und 600 Bq/l schwanken (Abb. 5). Das Verhältnis von Tritium zu Cäsium liegt in diesem Zeitraum meist in der Größenordnung zwischen $1,0 \cdot 10^4$ und $3,0 \cdot 10^4$ und folgt im Wesentlichen dem „Jahresgang“ der Tritium-Aktivität. Einige Ausreißer sind vielleicht auf Messungenauigkeiten bei niedrigen ^{137}Cs -Aktivitäten oder auf Fehler bei den Probenahmen zurückzuführen.

Ab etwa Juni 2001 bis April 2003 steigt die Aktivität von Caesium zunächst auf Werte zwischen ca. 500 Bq/l und ca. 3.000 Bq/l; die Aktivität von Tritium liegt in der gleichen Zeit zwischen 20 und 25 MBq/l. Dabei verschiebt sich das Verhältnis von Tritium zu Cäsium nach und nach um eine Größenordnung.

Ab dem Jahr 2003 liegt das Verhältnis Tritium/Cäsium unter 10^3 , die Werte sinken langsam weiter ab und erreichen ab 2006 nur noch Werte um 150. Im Zeitraum Mitte 2008 bis Mitte 2010 (ergänzte Daten nach [20]) erreicht das Verhältnis der beiden Nuklide wieder Werte um 300, auch bedingt durch Zeiträume mit gegenläufiger Tendenz (Tritium steigend, ^{137}Cs fallend).

- Die Auslaugung von Caesium betrifft wahrscheinlich alle Abfälle, wie es auch die Experimente des INE zeigen. Ein Teil des Cäsiums stammt dabei offenbar aus getrockneten Verdampferkonzentraten aus Kernkraftwerken, ein weiterer Teil aus zementierten Abfällen.
- Die Auslaugung von Caesium aus den Abfällen führt als Konsequenz auch zu einer Anreicherung im ausfallenden Salz, wie es die Messung der Feststoffaktivität im Bodensatz der Messstelle 21 zeigt. ^{137}Cs ist hier mit 420 kBq/kg Salz [9] nachweisbar. Dies kann auch bedeuten, das Cäsium im Salzgrus in der Kammer angereichert und entsprechend in den Abfällen selbst abgereichert wird. Man kann aus dem Feststoffmesswert aus der Messstelle 21 beispielsweise schätzen, dass durch die Auslaugung von ca. 2.000 m³ Salzgrus mit einer Dichte von 1,25 und einer Kontamination von $4,2 \cdot 10^5$ Bq/kg etwa $1,05 \cdot 10^{12}$ Bq ^{137}Cs aus dem Abfall in den Salzgrus migriert sein könnten. Das wären etwa 8% des Inventars von 2002.

Aus diesen Schlussfolgerungen ergeben sich folgende weitere Fragestellungen:

- Könnte eine weitere Zunahme der Aktivität in der Salzlösung ggf. dazu führen, dass die Einhaltung der Bedingungen der neuen Genehmigung nach §7StrlSchV in Frage gestellt ist und wenn ja, wie lange kann die Genehmigung noch eingehalten werden?
- Kann Cäsium noch als Leitnuklid für die Charakterisierung rückgeholter Abfälle verwendet werden, obwohl bereits ein erheblicher Teil des Cäsiums ausgelaut wurde? Werden hierdurch nicht die Nuklidvektoren für die Abfallcharakterisierung verfälscht? Die Anreicherung von Cäsium im Laugebecken vor Kammer 12/750 und die Auslaugversuche in Karlsruhe zeigen, dass die Möglichkeit der Verfälschung der Nuklidvektoren durch Auslaugung in Betracht gezogen werden muss.

- Es ist daher erforderlich, aufbauend auf dem derzeitigen Kenntnisstand und mit einem verbesserten Inventar die Anreicherung von Cäsium in der Salzlösung und dem Salzgrus abzuschätzen und die Konsequenzen für den Strahlenschutz und die Abfallcharakterisierung mit Nuklidvektoren zu prüfen.

2.2.3 Auslaugung von Kobalt aus Kammer 12

Ausgangsüberlegung:

- ^{60}Co - Inventar, Stichtag 01.01.1980: $4,51 \cdot 10^{12}$ Bq [10]
- ^{60}Co - Inventar, Stichtag 01.01.2003: $2,19 \cdot 10^{11}$ Bq ([10])
- ^{60}Co - Inventar, Stichtag 01.01.2008: $1,14 \cdot 10^{11}$ Bq [10]
- Wassermenge 2005-2008: 74 m^3
- Wasserkonzentration: 4,3 Bq/l [7] ; 5,1 Bq/l [9]

Aus der ^{60}Co -Konzentration und der entnommenen Wassermenge lässt sich vereinfacht abschätzen, dass innerhalb der betrachteten 3 Jahre eine ^{60}Co -Menge von etwa $5,1 \times 74 \cdot 10^3 = 3,77 \cdot 10^5$ Bq über den Laugensumpf vor Kammer 12 aus der Kammer ausgetragen wurde. Dies entspricht etwa $1,26 \cdot 10^5$ Bq/Jahr oder, im Vergleich zum ^{60}Co - Inventar der Kammer (Stichtag 01.01.2008), einer jährlichen Auslaugungsrate von $1,1 \cdot 10^{-7}$.

^{60}Co wurde auch im Bodensatz der Messstelle 21 mit einer Aktivität von 1 Bq/kg nachgewiesen. Es ist daher möglich, dass durch ausgelaugtes ^{60}Co auch Salzgrus in der Kammer kontaminiert wurde.

Nach den vorliegenden Untersuchungsdaten [7] und [9] wurde ^{60}Co in Proben aus der Salzlauge nicht immer bestimmt, wahrscheinlich aufgrund der Bestimmungsgrenzen bei insgesamt niedriger Aktivität.

Betrachtet man die Messwerte aus dem Jahr 1988 (s. a. Tabelle 4), dann ist aufgrund des parallelen Nachweises von ^{134}Cs zu vermuten, dass auch das ^{60}Co aus verfestigten flüssigen Reaktorabfällen stammt.

Nach dem Nuklidvektor der Druck- und Siedewasservektoren (SWR1 und DWR1) sind für Abfälle aus KKW's außerdem folgende Aktivitätsverhältnisse typisch:

DWR: $^{137}\text{Cs}/^{60}\text{Co}$: 1-3 ($^{137}\text{Cs}/^{60}\text{Co}$ Auslaugungsrate: 5-10E+2)

SWR: $^{137}\text{Cs}/^{60}\text{Co}$: 15-20

Tabelle 4: Verhältnis von ^{137}Cs zu ^{60}Co in der Lauge vor der Kammer 12/750

Probenahme	^{137}Cs (HWZ 30,2 a) (Originaldaten) Bq/l	^{137}Cs (HWZ 30,2 a) (01.01.1974) Bq/l	^{60}Co (HWZ 5,3 a) (Originaldaten) Bq/l	^{60}Co (HWZ 5,3 a) (01.01.1974) Bq/l	$^{137}\text{Cs}/^{60}\text{Co}$ (01.01.74)
25.01.1988	404	558	3,9	24,6	22,7
25.01.1988	694	959	3,8	23,9	40,0
27.01.1988	619	855	4,8	30,3	28,3

01.02.1988	497	687	4,5	28,4	24,2
10.02.1988	356	492	4,1	26,0	19,0
18.02.1988	289	400	5,4	34,3	11,7
21.03.1988	78	108	4,6	29,6	3,7
06.06.1988	38	53	7,1	46,9	1,1
18.07.1988	214	299	9,1	61,0	4,9
20.10.1988	53	74	8,0	55,5	1,3
19.01.1989	106	150	8,8	63,1	2,4
17.09.1991	190	285	2,0	20,3	14,1
08.12.1991	219	331	1,8	18,8	17,6
21.04.1992	33	50	1,9	20,8	2,4
12.11.1992	239	369	1,6	18,9	19,5
08.02.1993	213	330	1,8	21,9	15,1

2.2.4 Auslaugung von Uran aus Kammer 12/750

In der Kammer 12/750 sind u.a. bestrahlte und nicht bestrahlte uranhaltige Abfälle eingelagert. Im Bodensatz des Laugensumpfes vor der Kammer und in der untersuchten Salzlauge wurde hingegen Uran mit einem natürlichen Massenverhältnis der Isotope ^{238}U und ^{235}U nachgewiesen [7].

Hieraus ergibt sich die Fragestellung, aus welcher Quelle (bestrahlte Abfälle, unbestrahlte Abfälle, natürliches Uran) das außerhalb der Kammer nachgewiesene ^{238}U und ^{235}U stammt und welchem Abfalltyp es zuzuordnen ist. Hierfür wäre insbesondere die Bestimmung von ^{236}U notwendig.

Der Statusbericht des NMU vom September 2008 enthält u.a. Angaben zu Urankonzentrationen in Proben der Salzlauge aus unterschiedlichen Messpunkten in der Asse, die aus einer Untersuchung des NLWKN stammen ([15], s. d. Abb. 3.2-2). Die dort beurteilten Aktivitäten von ^{238}U und ^{235}U wurden dabei mit Trinkwasserwerten (^{238}U : $2 \cdot 10^{-2}$ Bq/l; ^{235}U : $1 \cdot 10^{-3}$ Bq/l) verglichen, die die SSK für nicht durch Uranbergbau belastetes Trinkwasser als natürliche Hintergrundwerte ausweist.

Vergleicht man die Messwerte aus [7] und [9] mit diesen Hintergrundwerten dann ist festzustellen, dass ^{238}U und ^{235}U nachweisbar sind und dass zumindest einige der ^{238}U -Messwerte den zugehörigen Schwellenwert überschreiten. Die dokumentierten Werte zeigen für ^{238}U Werte zwischen $1,0 \cdot 10^{-2}$ Bq/l [09] und $2,2 \cdot 10^{-2}$ Bq/l [7] und für ^{235}U zwischen $5 \cdot 10^{-4}$ Bq/l und $6 \cdot 10^{-4}$ Bq/l [09].

Leider wurde ^{236}U in der Lauge nicht untersucht. Das Vorhandensein dieses Radionuklids würde auf eine Abfallherkunft aus bestrahlten Brennelementen hindeuten, da es nur bei der Bestrahlung von Brennelementen entsteht. In der Kammer 12/750 wurden u.a. einige Gebinde schwach radioaktiver Abfälle der WAK (Kampagne: MZFR-1) eingelagert. Der Uran-Nuklidvektor für diese Kampagne wird für ^{236}U mit $1,26 \cdot 10^3$ Bq/g Uran angegeben (s. Tabelle 5 und [5]).

Aus [5] und [10] geht das Inventar der Kammer 12/750 für die drei Uranisotope ^{238}U , ^{235}U und ^{236}U wie folgt hervor:

Stichtag 01.01.2003, GSF 2002 [5]:

- ^{238}U : $1,48 \cdot 10^{10}$ Bq

- ^{235}U : $6,59 \cdot 10^8$ Bq
- ^{236}U : $1,38 \cdot 10^8$ Bq

Stichtag 01.01.2003, Assekat 9.2 [10]:

- ^{238}U : $1,59 \cdot 10^{10}$ Bq
- ^{235}U : $6,79 \cdot 10^8$ Bq
- ^{236}U : $2,70 \cdot 10^8$ Bq

Hinweis: das Inventar für die Uranisotope in Kammer 12/750, dokumentiert im Bericht aus dem Jahr 2002 [5], unterscheidet sich von den Werten in der Assekat-Datenbank, Version 9.2. [10]. In der Datenbank sind höhere Werte eingetragen als im Bericht aus dem Jahr 2002. Insbesondere der Wert für ^{236}U hat sich in etwa verdoppelt. Es ist nicht ersichtlich, welche Änderungen hier im Detail vorgenommen wurden. Änderungen in der Assekat 9.2. wurden am 02.02.2010 vorgenommen.

Aufgrund der langen Halbwertzeiten sind Aktivitätsänderungen zum Stichtag 01.01.2008 nicht relevant.

Die Auslaugung von Uran im Zeitraum 2005 bis 2008 lässt sich aus der in diesem Zeitraum aus Messstelle 21 entnommenen Wassermenge von 74 m^3 und mittleren Uranaktivitäten in der Salzlauge aus [7] (s. d. Tabelle 5, Mittelwert der Proben P-1 bis P-100, umgerechnet auf Bq/l) wie folgt abschätzen:

$$^{238}\text{U}: 2,5 \cdot 10^{-2} \text{ Bq/l} \times 74 \cdot 10^3 = 1,8 \cdot 10^3 \text{ Bq} \text{ oder ca. } 6,1 \cdot 10^2 \text{ Bq/Jahr}$$

$$^{235}\text{U}: 4,6 \cdot 10^{-4} \text{ Bq/l} \times 74 \cdot 10^3 = 3,4 \cdot 10^1 \text{ Bq} \text{ oder ca. } 1,1 \cdot 10^1 \text{ Bq/Jahr}$$

Im Vergleich zum Uraninventar der 12/750 (hier beispielhaft aus [5], der Unterschied zu [10] ist nicht relevant) ergibt sich eine jährliche Auslaugungsrate zwischen $4,1 \cdot 10^{-8}$ (^{238}U) und $1,7 \cdot 10^{-8}$ (^{235}U).

Die zu erwartende Aktivität von ^{236}U kann man nur aus dem Inventar abschätzen, denn es ist anhand der vorliegenden Daten für nicht möglich, die Auslaugung des Urans aus verschiedenen Abfalltypen zu unterscheiden.

Für eine Auslaugungsrate von etwa $2 \cdot 10^{-8}$ ergibt sich aus dem ^{236}U -Inventar der Kammer 12/750 von $1,38 \cdot 10^8$ Bq [5] eine Auslaugung von etwa 2,8 Bq/a. Bei einer Laugenmenge von etwa 24.700 l/a (also $\frac{1}{3}$ der zwischen 2005 und 2008 abgeführten Laugenmenge) entspricht dies einer mittleren Aktivität in der Lauge von etwa $1,12 \cdot 10^{-4}$ Bq/l.

Betrachtet man das Inventar der Uranisotope ^{235}U , ^{236}U und ^{238}U in Kammer 12/750 aus [5], so ergeben sich folgende Zusammenhänge:

- Aktivitätsverhältnis $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$: ca. 0,045
- Aktivitätsverhältnis $^{236}\text{U}/^{235}\text{U}$: ca. 0,21

Bezüglich des Isotopenverhältnisses von $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ findet man in den Laugenuntersuchungen nach [7] im Sumpf vor Kammer 12/750 in fünf von sechs untersuchten Proben Isotopenverhältnisse zwischen 0,043 und 0,056, die sehr gut mit dem Isotopenverhältnis des Inventars übereinstimmen.

Leitet man hieraus die Hypothese ab, dass das Isotopenverhältnis in der Salzlösung demjenigen im Inventar entspricht, kann man aus den in [7] gemessenen Aktivitäten für ^{235}U auch auf die wahrscheinliche Aktivität von ^{236}U schließen. Bei einer aus [7] abgeleiteten mittleren Aktivität für ^{235}U von $4,6 \cdot 10^{-4}$ Bq/l und einem Isotopenverhältnis von 0,21 (s.o) ergibt sich aus diesem Ansatz eine zu erwartende Aktivität von ^{236}U von etwa $9,7 \cdot 10^{-5}$ Bq/l.

Nach [5] wurden Anfang der 70er Jahre in Kammer 12 auch Abfälle aus Aufbereitungskampagnen für Brennelemente aus dem Kernkraftwerk Obrigheim (hier Kampagne KWO 1) und dem Karlsruher Forschungsreaktor MZFR (hier Kampagne MZFR 1) eingelagert. Die Uran-Nuklidvektoren für diese Kampagnen werden wie folgt angegeben:

Tabelle 5: Uran-Nuklidvektor für MZFR-1 aus [5] (Angaben in Bq/gU):

	MZFR-1	KWO-1
^{232}U	1,14E+01	1,44E+02
^{233}U	2,66E-01	2,09E+00
^{234}U	1,17E+04	4,09E+04
^{235}U	2,94E+02	1,13E+03
^{236}U	1,26E+03	6,06E+03
^{238}U	1,24E+04	1,22E+04

Für die Isotopenverhältnisse lässt sich hieraus ableiten:

- MZFR-1: $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$: 0,0237 mit einer Bandbreite² von 0,018-0,023;
 $^{236}\text{U}/^{235}\text{U}$: 4,29 mit einer Bandbreite von 4-7.
- KWO-1: $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$: 0,0926 mit einer Bandbreite von 0,06-0,09;
 $^{236}\text{U}/^{235}\text{U}$: 5,36 mit einer Bandbreite von 5-12

Die Herkunft des Urans aus zwei verschiedenen Brennelementtypen erschwert die Zuordnung der Befunde in Lauge und Salz zu einem speziellen Abfalltyp. Mit Vorlage von Messergebnissen für ^{236}U ließe sich aber über einen Vergleich mit den Nuklidvektoren eine Abschätzung vornehmen.

Auch die Genauigkeit der jeweiligen Messung in der Salzlösung spielt hier eine große Rolle; in [9] wird für die Probe MP_21 (Brenk Systemplanung) als Ergebnis für ^{238}U angegeben:

- Bei Alphaspektrometrie: 0,007 Bq/l bei einer Standardabweichung (2σ) von 0,003
- Bei ICP-MS: 0,022 Bq/l bei einer Standardabweichung von 0,01

Bei niedrigen Aktivitäten liegen die Standardabweichungen in der Größenordnung des Messwerts.

Insgesamt sind die bisherigen Informationen zur Auslaugung von Uran nicht ausreichend. Es ist daher von großer Wichtigkeit, im Zuge der Faktenerhebung aus Kammer 12/750 entsprechende Untersuchungen an Lösungs- und Feststoffproben durchzuführen und dabei alle Uranisotope zu messen.

2.2.5 Auslaugung von ^{14}C aus Kammer 12/750

Ausgangsüberlegung:

- ^{14}C - Inventar, Stichtag 01.01.1980: $1,65 \cdot 10^{11}$ Bq ([5] und [10])
- ^{14}C - Inventar, Stichtag 01.01.2003: $1,64 \cdot 10^{11}$ Bq ([5] und [10])
- ^{14}C - Inventar, Stichtag 01.01.2008: $1,64 \cdot 10^{11}$ Bq [10]
- Wassermenge 2005-2008: 74 m^3
- Wasserkonzentration: 4,9 Bq/l [9]

Aus der ^{14}C -Konzentration und der entnommenen Wassermenge lässt sich vereinfacht abschätzen, dass innerhalb der betrachteten 3 Jahre eine ^{14}C -Menge von etwa $4,9 \times 74 \cdot 10^3 = 3,63 \cdot 10^5$ Bq über den Laugensumpf aus der Kammer 12/750 ausge-

² Die Angaben zur Bandbreiten sind Erfahrungswerte aus der Wiederaufarbeitung

tragen wurde. Dies entspricht etwa $1,21 \cdot 10^5$ Bq/Jahr oder, im Vergleich zum ^{14}C -Inventar der Kammer (Stichtag 01.01.2008), einer jährlichen Auslaugungsrate von $7,4 \cdot 10^{-7}$.

Für die Beurteilung von ^{14}C sollte in jedem Falle auch die Konzentration der in der Lauge gelösten organischen Stoffe bestimmt werden.

In einer Laugeprobe aus der Messstelle L2, wurde nach [9] (Unterlagen von Brenk Systemplanung) ein ^{14}C -Aktivität von 1.070 Bq/l gemessen. Zwar ist die Messstelle L2 nicht in unmittelbarem Zusammenhang mit Kammer 12/750 zu sehen, Werte dieser Größenordnung weisen aber im allgemeinen Sinne darauf hin, dass ^{14}C ein maßgeblicher Parameter für Tätigkeiten nach der neuen Umgangsgenehmigung nach §7 StrlSchV ist und daher nicht vernachlässigt werden darf.

Nach Auskunft des BfS [11] wurde ^{14}C auch im Luftpfad festgestellt, und zwar in 1979 mit einer Aktivität von 270 Bq/m³. Dieses luftgetragene ^{14}C ist wahrscheinlich an Kohlendioxid und flüchtige organische Stoffe wie Methan, Methyljodid und andere Kohlenwasserstoffe gebunden.

Routinemäßig wird ^{14}C in der Abluft monatlich gemessen. Im Jahr 2009 liegen die Werten zwischen 0,31 und 0,76 Bq/m³. SSK und ESK haben in ihrer gemeinsamen Stellungnahme zur neuen Umgangsgenehmigung [17] daher für dieses Nuklid eine Abschätzung des ^{14}C -Austrags über den Luftpfad vorgenommen.

Unter Berücksichtigung des ^{14}C -Inventars in AVR-Grafitkugeln [16] ($3,9 \cdot 10^{11}$ Bq) und einer Abschätzung in [3], basierend auf Erfahrungen aus mehr als 50 Proben französischer Abfälle (neue Mess- und Trennungsmethode) ($7,0 \cdot 10^{12}$ Bq), repräsentiert das wahrscheinliche ^{14}C -Inventar der Kammer 12/750 etwa die Hälfte des Inventars der Asse³.

Übertragen auf die Gesamtabgabe an ^{14}C mit der Abluft (maximale jährliche Ableitung aus den Jahren 2001-2008: $1,3 \cdot 10^9$ Bq, s. a. Tabelle 1) läge der jährliche Ausstrag an ^{14}C über die Abluft also bei etwa 0,01 % des Inventars.

Die Befunde weisen auf einen zusätzlichen Austragspfad, z.B. durch luftdurchlässigen Salzgrus, hin. Bei einer Öffnung der Kammer 12 /750 muss daher luftgetragenes ^{14}C und seine chemische Bindungsform bestimmt werden. Dabei sollte auch die Herkunft flüchtiger organischer Verbindungen in der Grubenluft (z.B. aus Radiolyseprozessen oder aus dem Abbau organischer Substanz) untersucht werden.

Eine Abschätzung der organischen Stoffe vor der Kammeröffnung wäre auch sinnvoll, um eine Orientierung für die Gestaltung und die Methodik der Probenahmen und Messungen zu erhalten.

2.2.6 Auslaugung von ^{99}Tc aus Kammer 12/750

In den mit [9] vorgelegten Analyseergebnissen vom August 2008 wurde ^{99}Tc in der Salzlauge vor Kammer 12/750 (Probe MP_21) und im Bodensatz des Laugensumpfes (Probe MP_21F) bestimmt. Die Aktivitäten lagen bei 13,7 Bq/l in der Lauge und 8,1 Bq/kg im Feststoff. Hieraus ergeben sich folgende Überlegungen:

³ Die als Erfahrungswerte herangezogenen französischen Untersuchungen stammen aus dem Jahr 1984

- ^{99}Tc - Inventar: $3,0 \cdot 10^9$ Bq ([5] und [10])
- (aufgrund der langen Halbwertszeit sind Stichtageeffekte vernachlässigbar)
- Wassermenge 2005-2008: 74 m^3
- Wasserkonzentration: $13,7 \text{ Bq/l}$ [9]

Aus der ^{99}Tc -Konzentration und der entnommenen Wassermenge lässt sich vereinfacht abschätzen, dass innerhalb der betrachteten 3 Jahre eine ^{99}Tc -Menge von etwa $13,7 \times 74 \cdot 10^3 = 1,01 \cdot 10^6$ Bq über den Laugensumpf aus der Kammer 12/750 ausgebracht wurde. Dies entspricht etwa $3,38 \cdot 10^5$ Bq/Jahr oder, im Vergleich zum ^{99}Tc -Inventar der Kammer, einer jährlichen Auslaugungsrate von $1,1 \cdot 10^{-4}$.

Wegen der höheren Löslichkeit von ^{99}Tc in der Salzlauge sollte das Inventar bzw. sollten die zugrunde liegenden Annahmen noch einmal überprüft werden, denn nach der derzeitigen Annahme haben KKW und WAK kein oder wenig ^{99}Tc abgeliefert.

Das Ergebnis der Feststoffuntersuchung mit einem Befund von $8,1 \text{ Bq/kg}$ legt außerdem die Vermutung nahe, dass ein Teil des aus den Abfällen mobilisierten ^{99}Tc im Salz zurückgehalten wird.

Die Auslaugung von ^{99}Tc aus den Abfällen führt als Konsequenz auch zu einer Anreicherung im ausfallenden Salz, wie es der Befund von $8,1 \text{ Bq/kg}$ [9] im Bodensatz der Messstelle 21 zeigt. Dies kann auch bedeuten, dass Technetium im Salzgrus in der Kammer angereicht und entsprechend in den Abfällen selbst abgereichert wird. Man kann aus dem Feststoffmesswert aus der Messstelle 21 beispielsweise analog zur Abschätzung für Cäsium (s. d.) schätzen, dass durch die Auslaugung von ca. 2.000 m^3 Salzgrus mit einer Dichte von $1,25$ und einer Kontamination von $8,1 \text{ Bq/kg}$ etwa $2,3 \cdot 10^7$ Bq ^{99}Tc aus dem Abfall in den Salzgrus migriert sein könnten. Das wäre etwa 1% des Inventars.

^{99}Tc wurde auch in anderen Laugeproben gemessen die nicht mit Kammer 12/750 in Zusammenhang stehen, so dass das gesamte Inventar der Asse II für dieses Nuklid revidiert werden muss.

2.2.7 Auslaugung von ^{90}Sr aus Kammer 12/750

Die Unterlagen [9] und [7] enthalten auch Messungen von ^{90}Sr in Laugeproben aus dem Sumpf vor Kammer 12/750. Die Werte schwanken auf niedrigem Niveau zwischen $0,1$ und $4,5 \text{ Bq/l}$. Die Untersuchung der Feststoffprobe MP_21F in [9] zeigte einen Gehalt an ^{90}Sr von $4,8 \text{ Bq/kg}$. Das ^{90}Sr -Inventar [10] der Kammer wird mit $1,26 \cdot 10^{13}$ Bq (01.01.1980) bzw. $6,35 \cdot 10^{12}$ (01.01.2008) angegeben. Die Auslaugung scheint dem gegenüber sehr niedrig zu sein. Da der Salzgrus wahrscheinlich eine große Menge von Sulfat enthält ist es möglich, dass aus den gelösten ^{90}Sr im Salzgrus zurückgehalten wird.

2.2.8 Auslaugung von Plutonium und Americium aus der Kammer 12/750

Die Unterlage [7] enthält einige Plutonium- und Americiumbestimmungen des FZJ. Umgerechnet auf Bq/l ergaben sich dabei im Mittel folgende Werte:

- ^{238}Pu : 1,0 Bq/l
- ^{239}Pu : 0,8 Bq/l
- ^{241}Am : 0,7 Bq/l

Festzuhalten ist, dass Plutonium und Americium in einzelnen Messungen nachweisbar sind, auch wenn die meisten Messwerte unterhalb der Nachweisgrenze liegen. Aus der Zusammensetzung der Plutoniumisotope im Inventar kann man abschätzen, dass in der Salzlauge vor Kammer 12/750 außerdem etwa 20-25 Bq/l ^{241}Pu enthalten sein sollten. Leider gibt es keine Plutoniumbestimmung für den Salzgrus, so dass hier keine weiter gehenden Betrachtungen angestellt werden können.

Aufgrund des pH-Wertes der in [7] untersuchten Salzlauge handelt es sich bei den nachweisbaren Aktiniden wahrscheinlich um Plutonium- und Americiumkomplexe, ggf. auch um organische Komplexe die sich aus den eingelagerten Abfällen gebildet haben. Die Bestimmung des Kohlenstoffgehalts in der Salzlauge könnte hier für eine weiter gehende Interpretation hilfreich sein.

2.2.9 Auslaugung von Radium-Thorium und Tochternuklide aus der Kammer 12/750

Die Analysedaten von Brenk Systemplanung ([9], s. d. Probe MP_21) enthalten eine Bestimmung von ^{226}Ra und ^{232}Th in der Lauge vor Kammer 12/750. Der Bericht von Lennartz und Mengel [7] enthält Bestimmungen von ^{232}Th in mehreren Laugeproben gleicher Herkunft, sowie in einer Feststoffprobe des Bodensatzes. Folgende Daten sind dabei hier von Interesse:

- Salzlauge: ^{226}Ra : 0,03 Bq/l [9]
 ^{232}Th : 0,0014 Bq/l ([9] und [7])
- Bodensatz: ^{232}Th : 0,018 Bq/kg [7]
- "Salz v. K 12": ^{232}Th : 0,0015 Bq/kg [7] (Probe des Kaliflözes vor K. 12/750)

Hinzu kommen Analysen aus [9] (s. d. Probe MP_21) für die Tochternuklide ^{210}Po (2,8 Bq/l) und ^{210}Pb (5,5 Bq/l); in [9] sind an anderen Probenahmestellen (L3, L4) auch höhere Konzentrationen dokumentiert, die aber nicht in direktem Zusammenhang mit Kammer 12/750 zu sehen sind.

Nach Auskunft des BfS [11] wurde in der Grubenluft auch ^{222}Rn detektiert, und zwar mit $0,3 \text{ MBq/m}^3$. Sollte diese Aktivität nur von den Abfällen stammen, dann ist zu konstatieren, dass das Inventar des Mutternuklids ^{226}Ra bisher in [5] und [10] zu niedrig abgeschätzt wurde. Es ist daher festzustellen, dass der derzeitige Kenntnisstand über das Inventar für Radium und Thorium in Kammer 12/750, aber wahr-

scheinlich auch in allen anderen Kammern, korrekturbedürftig ist und daher überprüft werden muss.

2.2.10 Auslaugung von ¹²⁹Iod

¹²⁹I wurde in den vorliegenden Untersuchungen von Lauge- und Feststoffproben nicht bestimmt. Nach Mitteilung von BfS [11] liegt lediglich ein Nachweis in der Grubenluft von 1,75 Bq/m³ (bzw. 0,28 µg/m³) vor. Wahrscheinlich ist ¹²⁹I in der Grubenluft an flüchtige organische Stoffe gebunden, besonders als Methyljodid. Flüchtige organische Stoffe können beim chemischen oder biologischen Abbau oder durch Radiolyse organischer Abfallbestandteile (Bitumen, Harze, Komplexbildner...) entstehen.

¹²⁹I kann auch als Natriumiodid ausgelaugt werden und müsste dann in der Salzlauge nachweisbar sein. Verglichen mit der Löslichkeit von Caesium läge ein Erwartungswert für die ¹²⁹I-Aktivität in der Salzlauge bei etwa 0,04 Bq/l. Da aber praktisch keine Daten vorliegen, sollten diese im Zuge der Kammeröffnung durch Messung in der Salzlauge, im Bodensatz des Sumpfes vor Kammer 12 und im Salzgrus erhoben werden. Außerdem erscheint eine Nachprüfung der Inventarangaben sinnvoll.

2.2.11 Auslaugung nichtradioaktiver chemischer Stoffe

Im Bericht „Herkunft der kontaminierten Lösung der Kammer 12 auf der 750-m-Sohle der Schachanlage Asse 2“ [7] wurden auch mehrere nicht radioaktive Stoffe untersucht. Einige von diesen Stoffen, z.B. Bor, Blei, Eisen und Mangan, können zumindest teilweise auch aus den eingelagerten Abfällen stammen und durch eingedrungene Lösungen mobilisiert worden sein. Nach [7] stammt die Salzlauge vor Kammer 12/750 aus dem Altversatz der Kaliabbau, andere Lösungsvorkommen auf der 750-m-Sohle werden hinsichtlich ihrer Herkunft als ehemalige Deckgebirgslösung interpretiert, so dass ein Teil der nichtradioaktiven Inhaltsstoffe auch aus anderen Quellen (Altversatz, Deckgebirge) als den Abfällen stammen kann.

Im Folgenden wird eine Herkunft aus den eingelagerten Abfällen unterstellt. Mit Hilfe der vorliegenden Daten ist es dann möglich, die Migration der chemischen und chemotoxischen Stoffe aus den Kammern heraus mit den Salzlösungen darzustellen. Für die Darstellung der Stoffanreicherung in Tabelle 6 wurde als einheitliche Referenz die in [7] analog verwendete Lauge von der 658-m-Sohle herangezogen.

Die Ergebnisse deuten daraufhin, dass Abfallinhaltsstoffe wie Bor, Blei oder Uran in den Lösungen vor Kammer 12 und anderen Kammern eine deutliche Konzentrationserhöhung gegenüber der Referenzlauge aufweisen, die auf eine Auslaugung aus den Abfällen hindeutet. Es wird außerdem deutlich, dass sich Korrosionsprodukte wie Eisen und Mangan in den Laugen lösen. Diese Ergebnisse untermauern den Verdacht der Auslaugung der eingelagerten Abfälle und bestärken die Notwendigkeit zur genaueren Untersuchung der Radionuklidenauslaugung und der Bestimmung weiterer, die Auslaugung beeinflussender Abfallinhaltsstoffe, insbesondere Kohlenstoff, Nitrat, EDTA, und andere.

Tabelle 6: Anreicherung chemischer und chemotoxischer Stoffe in Salzlauge gegenüber der Referenz aus [7] ($\mu\text{g/g}$)

Stoffe	Kammer 12/750	Kammer 4/750	Kammer 8/750	Kammer 10/750	Bandbreite	Referenz ⁴
Bor	74	36-100	50-125	14	15-125	17
Blei	3,5	0,02-0,04	8-13	0.04	0,02-13	0,2
Uran	0,001	<0,001	0,005-0,006	<0,001	<0,001-0,006	<0,001
Eisen	5-10	2,6	0,4-36	-	2-36	0,02
Mangan	19-20	2,6	45-80	-	2-80	0,8

Tabelle 7: Erhöhung der Konzentration im Vergleich mit der Referenz

Stoffe	Kammer 12/750	Kammer 4/750	Kammer 8/750	Kammer 10/750	Bandbreite
Bor	4-5	2-6	3-7	6	2-7
Blei	15-20	0-60	40-50	60	0-60
Uran	>1	>6	>5-6	>6	>1-6
Eisen	250-500	2-130	1.100 - 1.800	20	2-1800
Mangan	20-30	2-3	10-60	2	2-60

2.3 Zusammenfassende Schlussfolgerungen aus den Überlegungen zur Auslaugung und zur Nuklidzusammensetzung von Salzlauge, Salzgrus und Grubenluft der Kammer 12/750

Die Schlussfolgerungen aus den bisher vorgestellten Überlegungen werden im Folgenden in zwei Schritten vorgestellt:

- Untersuchungsergebnisse und Abschätzungen zu den Nuklidaktivitäten in der Salzlauge, dem Salzgrus und der Grubenluft,
- Ableitung eines Quellterms für die zu erwartende radioaktive Zusammensetzung von Salzlauge, Salzgrus und Grubenluft für die Kammer 12/750

⁴ Laugebecken auf der 658-m-Sohle

2.3.1 Zusammenfassung der Überlegungen zu den Untersuchungen zur Auslaugung

Die Abschätzungen zur Radionuklidauslaugung begannen mit der Anfrage des BMU an die ESK betreffend das Radionuklid-Inventar der Asse. Bereits frühzeitig war seitens der ESK darauf hingewiesen worden, dass das bis dato geschätzte Tritiuminventar der Asse deutlich zu niedrig angesetzt war. Die ersten Abschätzungen der ESK zum Tritiuminventar beruhten dabei auf Erfahrungswerten vergleichbarer Abfälle aus Frankreich. Hieraus wurde für die Kammer 12/750 ein gegenüber [5] und [10] modifiziertes Tritiuminventar mit $5,4 \cdot 10^{12}$ Bq (Stichtag 01.01.2003) abgeschätzt. Eine mit den französischen Erfahrungen kompatible Auslaugungsrate von $2 \cdot 10^{-2}/a$ ergab daraus eine Aktivitätskonzentration von etwa $2,2 \cdot 10^5$ Bq/l für die Salzlauge.

Da bis auf weiteres keine verlässlichen Inventardaten aus der Asse verfügbar waren, wurden weitere Abschätzungen mit Hilfe von Erfahrungswerten des französischen Centre de La Manche durchgeführt und für Kammer 12/750 die nachfolgende Kategorisierung des Inventars (nach [5]) nach der abgeschätzten Auslaugungsrate von 5 Leitnukliden vorgenommen (Tabelle 8).

Tabelle 8: Abschätzung der Nuklidaktivitäten in der Salzlauge, Kammer 12/750

Kategorie I: Leitnuklid ^3H , Auslaugungsrate $2 \cdot 10^{-2}/\text{a}$

Isotop	Inventar [Bq]	Auslaugung [Bq/a]	Konzentration im Wasser [Bq/l]
^3H	$1,8 \cdot 10^{10}$	$5,4 \cdot 10^9$	$2,2 \cdot 10^5$
^3H (Absch.)	$5,4 \cdot 10^{12}$	$5,4 \cdot 10^9$	$2,2 \cdot 10^5$

Kategorie II: Leitnuklid ^{137}Cs , Auslaugungsrate $4 \cdot 10^{-5}/\text{a}$

Isotop	Inventar [Bq]	Auslaugung [Bq/a]	Konzentration im Wasser [Bq/l]
^{137}Cs	$1,27 \cdot 10^{13}$	$5,4 \cdot 10^8$	$2,1 \cdot 10^4$
^{135}Cs	$8,69 \cdot 10^7$	$3,5 \cdot 10^3$	$1,4 \cdot 10^{-1}$
^{14}C	$1,64 \cdot 10^{11}$	$6,5 \cdot 10^6$	$2,6 \cdot 10^2$
^{36}Cl	$6,1 \cdot 10^8$	$2,4 \cdot 10^4$	$1,0 \cdot 10^0$
^{79}Se	$7,52 \cdot 10^7$	$3,0 \cdot 10^3$	$1,2 \cdot 10^{-1}$
^{87}Rb	$4,94 \cdot 10^3$	-	-
^{93}Mo	$3,99 \cdot 10^6$	$1,6 \cdot 10^2$	$6,5 \cdot 10^{-3}$
^{99}Tc	$3,00 \cdot 10^9$	$1,2 \cdot 10^6$	$5,0 \cdot 10^2$
^{129}I	$7,71 \cdot 10^7$	$3,5 \cdot 10^3$	$1,4 \cdot 10^{-1}$

Kategorie III: Leitnuklid ^{60}Co , Auslaugungsrate: $8 \cdot 10^{-6}/\text{a}$

Isotop	Inventar [Bq]	Auslaugung [Bq/a]	Konzentration im Wasser [Bq/l]
^{60}Co	$1,3 \cdot 10^{11}$	$1,1 \cdot 10^5$	4,3
^{41}Ca	$2,03 \cdot 10^5$	2,5	-
^{59}Ni	$9,86 \cdot 10^8$	$1,2 \cdot 10^2$	-
^{63}Ni	$3,52 \cdot 10^{12}$	$4,4 \cdot 10^5$	18
^{90}Sr	$7,22 \cdot 10^{12}$	$9,0 \cdot 10^5$	36
^{93}Zr	$4,19 \cdot 10^8$	$5,0 \cdot 10^1$	-
^{94}Nb	$4,46 \cdot 10^9$	$5,5 \cdot 10^2$	-
^{107}Pd	$2,08 \cdot 10^7$	$3,3 \cdot 10^0$	-
$^{110\text{m}}\text{Ag}$	$1,03 \cdot 10^9$	$1,3 \cdot 10^2$	-
$^{113\text{m}}\text{Cd}$	$2,01 \cdot 10^9$	$2,2 \cdot 10^2$	-
^{125}Sb	$7,62 \cdot 10^8$	$1,0 \cdot 10^2$	-
^{126}Sn	$1,51 \cdot 10^8$	$1,9 \cdot 10^1$	-
^{133}Ba	$4,3 \cdot 10^{10}$	$5,4 \cdot 10^3$	$2,2 \cdot 10^{-1}$
^{10}Be	$2,74 \cdot 10^1$	-	-

Tabelle 8 (Forts.): Kategorie IV: Leitnuklid: Uran, Auslaugungsrate: $2 \cdot 10^{-7}/a$

Isotop	Inventar [Bq]	Auslaugung [Bq/a]	Konzentration im Wasser [Bq/l]
^{238}U	$1,48 \cdot 10^{10}$	$2,7 \cdot 10^2$	$1,1 \cdot 10^{-2}$
^{235}U	$6,59 \cdot 10^8$	$1,3 \cdot 10^1$	$5,3 \cdot 10^{-4}$
^{236}U	$1,38 \cdot 10^8$	$0,3 \cdot 10^1$	$1,0 \cdot 10^{-4}$
^{232}U	$1,74 \cdot 10^6$	$0,9 \cdot 10^{-1}$	-
^{233}U	$1,40 \cdot 10^9$	$7,0 \cdot 10^1$	$2,8 \cdot 10^{-4}$
^{234}U	$1,54 \cdot 10^{10}$	$3,0 \cdot 10^2$	$1,2 \cdot 10^{-2}$
^{151}Sm	$1,80 \cdot 10^{11}$	$9,0 \cdot 10^3$	$3,6 \cdot 10^{-1}$
^{152}Eu	$3,15 \cdot 10^8$	$1,6 \cdot 10^1$	-
^{154}Eu	$4,07 \cdot 10^{10}$	$2,0 \cdot 10^2$	$0,8 \cdot 10^{-2}$
^{166m}Ho	$8,18 \cdot 10^3$	-	-
^{210}Pb	$3,03 \cdot 10^9$	$1,5 \cdot 10^2$	$0,6 \cdot 10^{-2}$
^{226}Ra	$5,08 \cdot 10^9$	$2,5 \cdot 10^2$	$1,0 \cdot 10^{-2}$
^{228}Ra	$5,64 \cdot 10^6$	-	-
^{232}Th	$4,20 \cdot 10^{10}$	$2,1 \cdot 10^3$	$8,5 \cdot 10^{-2}$
^{231}Pa	$2,60 \cdot 10^3$	-	-

Kategorie V: Aktiniden, Auslaugungsrate: $1 \cdot 10^{-8}$

Isotop	Inventar [Bq]	Auslaugung [Bq/a]	Konzentration im Wasser [Bq/l]
^{237}Np	$1,08 \cdot 10^8$	1,0	$0,4 \cdot 10^{-4}$
^{238}Pu	$4,92 \cdot 10^{11}$	$4,9 \cdot 10^3$	$2,0 \cdot 10^{-1}$
^{239}Pu	$1,72 \cdot 10^{12}$	$1,7 \cdot 10^4$	0,7
^{240}Pu	$1,79 \cdot 10^{12}$	$1,8 \cdot 10^4$	0,7
^{241}Pu	$4,94 \cdot 10^{13}$	$4,9 \cdot 10^5$	20
^{242}Pu	$1,34 \cdot 10^9$	$1,3 \cdot 10^1$	$0,5 \cdot 10^{-3}$
^{244}Pu	$1,62 \cdot 10^1$	-	-
^{241}Am	$4,93 \cdot 10^{12}$	$4,9 \cdot 10^4$	2,0
^{242m}Am	$2,5 \cdot 10^8$	2,5	$1,0 \cdot 10^{-4}$
^{243}Am	$2,31 \cdot 10^8$	2,3	$1,0 \cdot 10^{-4}$
^{243}Cm	$3,49 \cdot 10^7$	-	-
^{244}Cm	$1,44 \cdot 10^9$	$1,4 \cdot 10^1$	$0,6 \cdot 10^{-3}$
^{245}Cm	$1,54 \cdot 10^5$	-	-
^{246}Cm	$3,07 \cdot 10^4$	-	-
^{249}Cf	$0,00 \cdot 10^0$	-	-

Aufbauend auf dieser Abschätzung können die zu erwartenden Aktivitäten nach ihrer Größenordnung gruppiert werden:

- $10^5 - 10^6$ Bq/l: ^3H
- $10^4 - 10^5$ Bq/l: ^{137}Cs
- $10^2 - 10^3$ Bq/l: ^{14}C , ^{99}Tc
- $10^0 - 10^1$ Bq/l: ^{36}Cl , ^{60}Co , ^{63}Ni , ^{90}Sr , $^{239-240}\text{Pu}$, ^{241}Am
- $10^0 - 10^{-1}$ Bq/l: ^{135}Cs , ^{79}Se , ^{129}I , ^{133}Ba , ^{151}Sm , ^{238}Pu
- $10^{-1} - 10^{-2}$ Bq/l: ^{238}U , ^{234}U , ^{154}Eu , ^{226}Ra , ^{232}Th ,
- $10^{-2} - 10^{-4}$ Bq/l: ^{93}Mo , ^{235}U , ^{236}U , ^{233}U , ^{237}Np , ^{242}Pu , $^{242\text{m}}\text{Am}$, ^{243}Am , ^{244}Cm ,

Für besonders lösliche Radionuklide wurde eine weitere Abschätzung erarbeitet. Der Abschätzung zugrunde liegt eine mittlere Auslaugungsrate von $1,35 \cdot 10^{-5}/\text{a}$ (ähnlich der für ^{137}Cs). Da zwischen den Inventarangaben im Bericht aus dem Jahr 2002 [5] und den aktuellen Eintragungen in der Datenbank Assekat 9.2 [19] Unterschiede bestehen, enthält die nachfolgende Tabelle 9 Abschätzungen für beide Datenquellen, sowie für einen Vorschlag für ein modifiziertes Inventar (in der Tabelle mit [AS] gekennzeichnet, s. a. Kapitel 3). Zur Abschätzung der Konzentration wurde die jährliche Auslaugung auf 24.667 l Salzlauge bezogen (ca. $\frac{1}{3}$ des kumulierten Wertes von 74 m³ zwischen 2005 und 2008).

Diese Abschätzungen sollten durch entsprechende Messungen der Konzentrationen in der Lauge vor Kammer 12 überprüft werden um festzustellen, ob die Annahmen plausibel sind. Insbesondere ^{14}C und ^{99}Tc sollten sich für eine Überprüfung eignen, da hier die erwarteten Aktivitäten im Vergleich zu den anderen Nukliden deutlich höher liegen, was die Detektion vereinfachen sollte. Mit den Messergebnissen könnten dann erneute Rückrechnungen zum Inventar durchgeführt werden.

Mit Hilfe der in den vorstehenden Kapiteln dokumentierten Berechnungen zur Auslaugung können plausible Bandbreiten für zur erwartenden Radionuklidkonzentrationen in der Salzlauge angegeben werden. Tabelle 10 enthält eine Zusammenfassung der verwendeten Daten und die daraus abgeleiteten Bandbreiten. Diese Zusammenstellung sollte anhand von Analysen geprüft werden. Spezielles Augenmerk ist dabei auf die Nuklide ^{236}U , ^{241}Pu und ^{53}Ni zu legen. Auch ^{36}Cl bedarf der genaueren Analyse, da das Inventar dieses Nuklids aufgrund der der fehlenden Deklaration in den Grafitkugeln des AVR in der derzeitigen Datenbasis wahrscheinlich ebenfalls deutlich unterschätzt wird.

Tabelle 9: Abschätzung der Aktivität löslicher Radionuklide in der Salzlauge, Kammer 12/750

Nuklid	Inventar [Bq]	Auslaugung [Bq/a]	Konzentration in der Salzlauge [Bq/l]
¹⁴ C [5]	1,65*10 ¹¹	2,2*10 ⁶	9,0*10 ¹
¹⁴ C [10]	1,47*10 ¹¹	2,0*10 ⁶	8,0*10 ¹
¹⁴ C [AS]	7,00*10 ¹²	9,5*10 ⁶	3,8*10 ²
³⁶ Cl [5]	6,1*10 ⁸	8,2*10 ³	3,3*10 ⁻¹
³⁶ Cl [10]	4,2*10 ⁸	3,1*10 ³	1,3*10 ⁻¹
³⁶ Cl [AS]	2,0*10 ¹⁰	5,4*10 ⁵	2,0*10 ¹
⁷⁹ Se [5]	7,52*10 ⁷	1,0*10 ³	4,1*10 ⁻²
⁹³ Mo [5]	4,00*10 ⁶	5,4*10 ¹	2,2*10 ⁻³
⁹⁹ Tc [5]	3,00*10 ⁹	4,1*10 ⁴	1,6*10 ⁰
⁹⁹ Tc [10]	6,67*10 ⁹	9,0*10 ⁴	3,7*10 ⁰
⁹⁹ Tc [AS]	3,00*10 ¹⁰	4,1*10 ⁵	1,6*10 ¹
¹²⁹ I [5]	7,71*10 ⁶	1,1*10 ²	4,2*10 ⁻³
¹²⁹ I [10]	2,5*10 ⁷	3,3*10 ³	1,3*10 ⁻²
¹³⁵ Cs [5]	8,96*10 ⁷	1,2*10 ³	4,9*10 ⁻²
¹³⁵ Cs [10]	9,77*10 ⁷	1,3*10 ³	5,3*10 ⁻²

Tabelle 10: Zusammenfassung der Daten und Schätzwerte zur Auslaugung von Radionukliden aus Kammer 12/750

Nuklid	Inventar 01.01.2008	Auslaugung [Bq/a]	Messwerte [Bq/l]	Abgeschätzte Werte (Bandbreite) [Bq/l]
³ H	6,0*10 ¹²	5,4*10 ⁹	2,35*10 ⁵ - 1,9*10 ⁶	2,0*10 ⁵ – 2,0*10 ⁶
¹⁴ C	1,65*10 ¹¹	1,21*10 ⁵	4,9	5-50
³⁶ Cl	6,1*10 ⁸	-	-	5-25
⁵³ Ni	3,52*10 ¹²	-	-	10-20
⁶⁰ Co	2,31*10 ¹¹	1,26*10 ⁵	4,3 - 5,1	4 – 10
⁹⁰ Sr	1,26*10 ¹³	9,9*10 ⁴	0,1 - 4,5	1-10
⁹⁹ Tc	6,7*10 ⁹	3,38*10 ⁵	8,1 – 13,7	8 - 30
¹³⁵ Cs	9,0*10 ⁷	-	-	0,4 - 1,0
¹³⁷ Cs	1,1*10 ¹³	1,5*10 ⁹	6,0*10 ⁴	5-10*10 ⁴
²³⁸ U	1,48*10 ¹⁰	2,7*10 ²	1,1-2,2*10 ⁻²	1 -3*10 ⁻²
²³⁵ U	6,59*10 ⁶	2,5*10 ¹	5 – 6*10 ⁻⁴	0,5 – 1*10 ⁻³
²³⁶ U	1,38*10 ⁶	-	-	1 – 3*10 ⁻⁴
²³⁸ Pu			1,0	1 - 5
²³⁹ Pu		2,96*10 ⁴	0,8	0,5 - 2
²⁴¹ Pu		-	-	20 - 50
²⁴¹ Am		1,48*10 ⁴	0,7	0,5 - 3
²²⁶ Ra		7,4*10 ²	0,03	0,01 – 0,08
²³² Th			0,0014	0,001 -0,008
²¹⁰ Po		-	2,8	2- 15
²¹⁰ Pb		-	10	10 - 30

2.3.2 Ableitung eines modellhaften Quellterms für die Radionuklidaktivitäten in der Salzlauge und dem Salzgrus aus Kammer 12/750

Mit den im vorliegenden Bericht vorgestellten gemessenen und abgeschätzten Daten zur Radionuklidaktivität ist es möglich, Quellterme für die zu erwartende radioaktive Kontamination der Salzlauge und des Salzgrus' in Kammer 12/750 vorzuschlagen. Außerdem kann ein Quellterm für flüchtige radioaktive Stoffe in der Grubenluft der Kammer 12/750 vorgeschlagen werden. Diese Quellterme können der Vorbereitung der Kammeröffnung dienen. Nur die wichtigsten Nuklide sind hier aufgelistet. Für die nichtradioaktiven Stoffe wird auf die Berichte [7] und [8] verwiesen. Die unter „Best estimate“ genannten Werte sind als Obergrenze für den wahrscheinlichen Quellterm zu betrachten.

Tabelle 11: Quellterm für Radionuklide in der Salzlauge, Kammer 12/750

Isotop	Gemessen [Bq/l]	Best estimate [Bq/l]
³ H	2,35*10 ⁵ – 1,9*10 ⁶	5,0*10 ⁵
¹⁴ C	4,9	25
³⁶ Cl	-	2
⁶⁰ Co	4,3-5,1	8,0
⁶³ Ni	-	20
⁷⁹ Se	-	5,0*10 ⁻²
⁹⁰ Sr	0,1-4,5	8
⁹³ Mo	-	5,0*10 ⁻³
⁹⁹ Tc	8,1-13,7	25
¹²⁹ J	-	2,0*10 ⁻²
¹³⁵ Cs	-	0,5
¹³⁷ Cs	6,0*10 ⁴	1,0*10 ⁵
²¹⁰ Po	2,8	10
²¹⁰ Pb	10	18
²¹⁴ Pb	-	15
²²⁶ Ra	0,03	0,05
²³² Th	0,0014	0,002
²³⁸ Pu	1,0	2,0
²³⁹ Pu	0,8	1,0
²⁴¹ Pu	-	40
²⁴¹ Am	0,7	3
²³⁵ U	5-6*10 ⁻⁴	0,5*10 ⁻³
²³⁶ U	-	1*10 ⁻⁴
²³⁸ U	1,1*10 ⁻² - 2,2*10 ⁻²	2*10 ⁻²
²³⁷ Np	-	1*10 ⁻³

Tabelle 12: Quellterm für Radionuklide im Salzgrus, Kammer 12/750

Isotop	Gemessen [Bq/kg]	Abgeschätzt [Bq/kg]	Best estimate [Bq/kg]
¹⁴ C	-	2 - 10	8,0
⁶⁰ Co	1,0	1 - 5	3,0
⁶³ Ni	-	0,5 - 3	1,0
⁹⁰ Sr	4,8	4 - 10	8,0
⁹⁹ Tc	8,1	5 - 20	15,0
¹³⁵ Cs	-	1*10 ⁻²	1*10 ⁻²
¹³⁷ Cs	4,2*10 ⁵		5*10 ⁵
²¹⁰ Pb	26	25-35	30
²¹⁴ Pb	-	20-30	25
²¹⁰ Po	-	10-20	15
²²⁶ Ra	-	2*10 ⁻² - 8*10 ⁻²	5*10 ⁻²
²³² Th	1,8*10 ⁻²	1-5*10 ⁻²	2*10 ⁻²
²³⁵ U	2,0*10 ⁻⁴	1-5*10 ⁻⁴	3*10 ⁻⁴
²³⁶ U	-	0,5*10 ⁻⁴ - 1*10 ⁻⁴	0,8*10 ⁻⁴
²³⁸ U	4,1*10 ⁻²	2-8*10 ⁻²	5*10 ⁻²
²³⁸ Pu	-	1*10 ⁻³ -1*10 ⁻²	5*10 ⁻²
²³⁹ Pu	-	1*10 ⁻³ -1*10 ⁻²	5*10 ⁻²
²⁴¹ Pu	-	10 - 100	50
²⁴¹ Am	-	0,1 - 1	0,5
²³⁷ Np	-	1*10 ⁻² - 2*10 ⁻²	1*10 ⁻²

Tabelle 13: Quellterm für Radionuklide und andere gasförmige Stoffe in der Grubenluft, Kammer 12/750

Isotop/Stoff	Messwerte Bq/m³ –(µg/m³)	Schätzwerte Bq/m³ – (µg/m³)	Best Estimate Bq/m³ – (µg/m³)
³ H	5*10 ⁵ Bq/m ³	0,5*10 ⁴ - 10*10 ⁴ Bq/m ³	5*10 ³ Bq/m ³
¹⁴ C	270 Bq/m ³	1*10 ² - 5*10 ² Bq/m ³	1*10 ² Bq/m ³
¹²⁹ I	1,75 Bq/m ³ (bzw. 0,28 µg/m ³)	1 - 5 Bq/m ³	2 Bq/m ³
²²² Rn	3*10 ⁵ Bq/m ³	1- 5*10 ³ Bq/m ³	1*10 ³ Bq/m ³
CH₄	-	2 – 20 ppm	5 ppm
H₂	-	10 – 50 ppm	20 ppm
H₂O	-	10 – 20 %	10 %
H₂S	-	5 – 50 ppm	10 ppm
Kohlenwasserstoff	-	1 - 10 ppm	5 ppm
He	-	Einige ppm	Einige ppm

Für die Abschätzung der Aktivitäten in der Grubenluft der Kammer 12/750 wurde auf französische Untersuchungen zur Radiolyse zurückgegriffen, z.B.:

0,6-0,9 l/kg/MGy für Bitumen und Kunststoffe (N₂,H₂,CH₄,Kohlenwasserstoff,...)

0,1–0,3 l/kg/MGy für zementierte und unbehandelte Abfälle (N₂,H₂,CH₄,...).

Helium ist ebenfalls relevant, es stammt normalerweise aus dem Zerfall von Alphastrahlern.

Ein Teil der Gasphasen wird auch im Zuge der wahrscheinlich anaeroben Korrosion (i.W. H₂) oder dem anaeroben organischen Abbau (H₂S, CH₄, gg. CO₂) gebildet.

Die Zusammensetzung der Grubenluft in Kammer 12/750 ist in jedem Fall vor einer Öffnung genau zu prüfen. Die Ergebnisse sind auch für weiter gehende Rückschlüsse zur Verbesserung des Kenntnisstands zum Inventar nutzbar.

2.4 Überlegungen zum Zustand der Abfälle der Kammer 12/750

Die Untersuchungsergebnisse aus der Salzlauge und dem Bodensatz vor Kammer 12/750 und die in diesem Bericht vorgestellten Abschätzungen ermöglichen es, eine Vorstellung über den Zustand der Abfälle in der Kammer zu entwickeln, die zur Vorbereitung der Kammeröffnung als Arbeitshypothese herangezogen werden kann.

Zunächst ist es offensichtlich, dass Radionuklide und andere mobilisierbare Abfallbestandteile aus den Abfällen in die Salzlauge, den Salzversatz und ggf. auch in das anstehende Salz migriert sind. Die Integrität der Abfallgebände ist damit nicht mehr gewährleistet. Es ist beispielsweise damit zu rechnen, dass die liegend gestapelten Gebinde zerdrückt sind, dass ihre Gebindedeckel abgesprungen sind und dass die Gebinde sowohl von außen als auch von innen der Korrosion unterliegen. In Betracht zu ziehen ist auch, dass in offenen Gebinden auch Salzgrus und Salzlauge anzutreffen sind.

Es ist außerdem zu erwarten, dass innerhalb der Kammer größere Mengen an radioaktiv kontaminierter Salzlauge angetroffen werden. Da man davon ausgehen kann, dass der Laugensumpf vor der Kammer mit dem Kammerinneren korrespondiert, muss eine Abschätzung auf der Grundlage eines Zustroms von etwa 24 bis 25 m³/a (analog zu den Überlegungen zur Auslaugung) sowie unter Berücksichtigung des Flüssigkeitsspiegels im Laugensumpf durchgeführt werden.

Kammer 12/750, in der etwa 4.370 t (bzw. etwa 2.381 m³ bei 7.464 dokumentierten Abfallgebänden [18]) Abfälle eingelagert wurden, enthält vermutlich nach [19] eine größere Menge an Salzhautwerk (mehr als 2.000 m³) aus einer vor der Einlagerung eingebrachten Ausgleichsschicht und aus Abschaltungen der Kammerfirste.

Da verschiedene Abfalltypen und Gebindeformen (meist 200 l Fässer, aber auch 717 dokumentierte VBAs) eingelagert wurden, ist es erforderlich, sich ein Bild über die verschiedenen Abfälle zu machen.

Nach [18] bilden die folgenden 5 Abfalltypen eine (Netto-) Abfallmenge von etwa 1.112 m³ (bzw. 1.399 t):

- Getrocknete, ehemals flüssige Abfälle: 62 m³ (55 t)
- Verfestigte, ehemals flüssige Abfälle: 41 m³ (80 t)
- Feste Abfälle, konditioniert: 262 m³ (644 t)
- Feste Abfälle, unkonditioniert: 296 m³ (572 t)
- Verbrennungsrückstände: 8 m³ (12 t).

Hinzu kommen noch etwa 410 m³ Hohlraumvolumen (ca. 1/3 des Volumens der Abfälle) und etwa 37 m³ gebundenes Wasser.

Im Folgenden werden die fünf Abfalltypen näher beschrieben. Basierend auf dieser Beschreibung wurde der Versuch unternommen, Hinweise für die Konditionierung nach einer Bergung der Abfälle und die davon betroffenen Abfallmengen zu geben (s. Anlage 3). Außerdem wurde eine Bilanz der Abfallrückholung für Kammer 12/750 (s. Anlage 4) und eine modellhafte Berechnung der zu erwartenden flüssigen Abfälle (Anlage 5) entworfen.

2.4.1 Getrocknete, ehemals flüssige Abfälle

Abfallgebinde mit getrockneten, ehemals flüssigen Abfällen ohne weitere Konditionierung enthalten Ionentauscherharze, Verdampferkonzentrate oder Filterhilfsmittel. Sie dürften noch etwa 10 m³ gebundenes Wasser enthalten. Durch die Korrosion der Abfallfässer können die enthaltenen Radionuklide und andere mobile Abfallbestandteile (Salze, Öle, und alle anderen chemische Stoffe) freigesetzt werden und in den Salzgrus migrieren

Nach den Untersuchungen der Lauge vor Kammer 12/750 sind die Abfallgebinde bereits seit den 80er Jahren soweit korrodiert, dass eine nachweisbare Radionuklidfreisetzung stattgefunden hat. Wahrscheinlich haben der Abbau organischer Stoffe und die Radiolyse schon unmittelbar nach der Einlagerung eingesetzt und dazu geführt, das Tritium, ¹⁴C und organische Stoffe in die Grubenluft und den Salzgrus gelangten. Die Korrosion führte wahrscheinlich frühzeitig zu einer Zerstörung von Abfallfässern und zu einer Freisetzung der darin enthaltenen Abfälle.

Für die Ionentauscherharze (IH), Verdampferkonzentrate (VDK) oder Filterhilfsmittel (FH) kann die erfolgte Auslaugung und der heutige Zustand wie folgt abgeschätzt werden:

- **VDK aus Druckwasserreaktoren (VDK-DWR) (ca. 18 m³ bzw. ca. 23 t), Referenzinventar: DWR1 aus [5]**

Diese Abfälle enthalten etwa 10 Tonnen Natriummetaborat (darin etwa 785 kg Bor). Bor ist in der Salzlauge gegenüber der Referenzlösung [7] um Faktor 4-5 angereichert. Geht man davon aus, dass ein Anteil von etwa 60 mg/m³ in der Salzlösung aus den VDK-DWR stammt, dann ergibt sich bei einer Dichte von 1,25-1,30 g/cm³ und den im Rahmen dieses Berichts verwendeten Auslaugungsparametern, dass pro Jahr etwa 1,85 kg Bor aus den VDK-DWR herausgelöst wurde. Summiert über den Zeitraum von etwa 30 Jahren seit der Einlagerung entspricht dies einer bisherigen Auslaugung von etwa 5-6 % des ursprünglich eingelagerten Bors.

VDK-DWR sind auch in den verfestigten Abfällen enthalten. Man kann davon ausgehen, dass hier etwa 391 kg Natriummetaborat enthalten sind und dass etwa 1,5 kg Bor pro Jahr aus diesen Abfällen stammt. Im Zuge der Migration borhaltiger Lösungen durch den Salzgrus ist zu erwarten, dass ein Teil des Bors (insgesamt etwa 150 bis 200 kg) als Calciumborat ausfällt und im Salz zurückgehalten wird.

Insgesamt kann damit gerechnet werden, dass etwa 20 - 25 % des Bors aus den getrockneten VDK-DWR und etwa 10-12 % des Bors aus den verfestigten VDK-DWR ausgelaugt wurde. Mit Natrium und Radionukliden dotierte Komplexbildner wie EDTA und Oxalate sowie andere in den Abfällen enthaltene Salze (Nitrate, Sulfate), wurden ebenfalls aus den Abfällen herausgelöst und haben sich mit dem Salzgrus in der Kammer vermischt.

Die Aktivität dieser Abfälle stammt i.W. von den 4 Hauptnukliden ⁵⁵Fe (30%), ⁶⁰Co (29%), ⁶³Ni (25%) und ¹³⁷Cs (11%). Zum Stichtag 01.01.2008 tragen sie mehr als 80 % zur Gesamtaktivität bei. Aus den Abschätzungen in Kapitel 2.2.2 lässt sich ableiten, dass seit der Einlagerung etwa 5,0 % des ¹³⁷Cs-Inventars über Salzlauge aus der Kammer ausgetragen wurden und dass etwa 8 % in den

Salzgrus migriert sind. Konservativ kann hier beim Umgang mit Salzgrus und Lauge mit der doppelten Kontamination gerechnet werden. Im Referenzinventar DWR-1 [5] fehlen Angaben zu Tritium und ^{10}Be ; mit dem Auftreten dieser Nuklide ist aber ebenfalls zu rechnen.

Im Umfeld der VDK-DWR ist in jedem Fall mit einer hohen Aktivität von radioaktivem Cäsium, Kobalt und Nickel zu rechnen. Befinden sich in unmittelbarer Nähe auch organische Substanzen, sind auch Radiolysegase (H_2 , CH_4 , N_2 ,...) zu erwarten.

In anaerober Atmosphäre und durch die Korrosion der Abfallfässer können außerdem reduzierbare Gase (S^{2-} , H_2S , Kohlenwasserstoff, u. a.) auftreten.

Sollte der mit der Lauge in Kontakt stehende Zement, z.B. aus VBAs, mittlerweile vollständig zersetzt sein, könnte der pH-Wert der Salzlauge sinken.

- **VDK aus Siedewasserreaktoren (VDK-SWR) (ca. 1 m³ bzw. ca. 2 t), Referenzinventar: SWR1 aus [5]**

Die VDK-SWR in Kammer 12/750 dürften etwa 1,4 t Salze (Natriumsulfat, Phosphate u. a.) enthalten, dazu Zellulose, Komplexbildner (EDTA, Oxalat,...) und Lösungsmittel (TBP, DBP).

Die Hauptaktivität dieser Abfälle stammt von ^{137}Cs (57%), wobei ein Teil analog zu den VDK-DWR bereits ausgelaugt sein dürfte und nun zur Kontamination vom Salzlauge und Salzgrus beiträgt. Die Anwesenheit von Sulfat, Oxalat und Phosphat führt für einen Teil der im Abfall enthaltenen Radionuklide zu schwer löslichen Verbindungen, die demzufolge nicht weit migriert sein können.

Tritium wurde von den Abfallanlieferern nicht deklariert, gleichwohl ist damit zu rechnen, dass die getrockneten VDK-SWR etwa 1-2 mCi/m³ (etwa 37 bis 74 MBq/m³) an Tritium enthalten.

- **Ionentauscherharze**

Diese Abfälle wurden in Form von Pulver- oder Kugelharzen von den KKW und der WAK abgeliefert. Sie enthalten außerdem Eisenoxyd und EDTA. Durch Korrosion und das Eindringen von Salzlauge in die Gebinde ist es möglich, dass ein Teil der Harze ausgewaschen wurde und sich mit Salzgrus vermischt hat. Die Sättigung der Ionentauscherharze mit Natrium kann dazu führen, dass das in der Kammer vorhanden Plutonium aus der WAK in eine löslichere Form übergeht und damit mobilisiert wird. Das ebenfalls in den Abfällen enthaltene Iod ist wahrscheinlich zumindest teilweise ausgelaugt worden und in den Salzgrus migriert.

- **Filterhilfsmittel**

Filterhilfsmittel bilden wahrscheinlich den größten Teil der hier besprochenen Abfälle (etwa 41 m³). Hierin enthalten sind auch aus KKW's stammende Abfälle. Ein Teil des verwendeten Kieselgurs und der verwendeten Öle ist wahrscheinlich aus den Gebinden ausgetreten und hat sich mit Salzgrus vermischt. Die darin gebundenen Radionuklide sollten dann ebenfalls im Salzgrus zu finden sein.

Der Abbau der organischen Öle kann außerdem zur Freisetzung von ^{14}C über $^{14}\text{CO}_2$ und von Tritium geführt haben.

2.4.2 Verfestigte, ehemals flüssige Abfälle

Dieser Abfalltyp umfasst i.W. Verdampferkonzentrate aus Jülich und Karlsruhe und verfestigte Fällschlämme. Konditionierungsmittel sind Bitumen und Beton.

Mit dem Zerfall der Behälterintegrität hat sich das Bitumen wahrscheinlich fladenartig verformt und ggf. auch zähflüssig bewegt. Im Kontakt mit der Salzlauge kann Bitumen außerdem aufgequollen sein.

Zement und Beton sind durch den Angriff der Salzlauge brüchig geworden und haben die innere Struktur verloren, insbesondere dann wenn die Salzlauge bereits mit Borsäure oder Metaborat aus den VDK-DWR verunreinigt war.

Andere Filterhilfsmittel und WAK-Schlämme enthalten Zellulose, Öle, Komplexbildner, Salze und Lösungsmittel, die nach der Korrosion der Abfallfässer und Degradation der Konditionierungsmittel zusammen mit den darin enthaltenen Nukliden in den Salzgrus gelangt sein können.

In einem derartigen Zustand ist zu erwarten, dass der Salzgrus in der Kammer verbreitet mit einer hohen Konzentration an Radionukliden und anderen Stoffen kontaminiert ist und dass darin auch Bitumen oder Zementreste eingemischt vorliegen.

2.4.3 Feste Abfälle, konditioniert

Es handelt sich hierbei i.W. um Mischabfälle, Laborabfälle und Bauschutt. Nach [18] wurden auch die AVR-Grafitabfälle aus Jülich in diese Kategorie eingerechnet. In der Stellungnahme des FZJ [16] wird hierzu allerdings ausgeführt, dass ca. $\frac{2}{3}$ der Grafitkugeln nicht konditioniert wurden. Da zu unterstellen ist, dass die betreffenden Abfallbehälter nicht mehr intakt sind, muss davon ausgegangen werden, dass AVR-Kugeln lose im Salzgrus liegen und dabei auch zerstört worden sein können. Dies könnte die hohe Freisetzung von Tritium nach dem Jahr 2005 erklären.

Andere konditionierte feste Abfälle sollten ansonsten weniger zerstört vorliegen als in anderen Abfalltypen, allerdings ist auch hier nicht ausgeschlossen, dass der Abfall infolge der Korrosion der Behälter mit der Salzlauge in Kontakt kommt. Die Aktivität eines großen Teils der konditionierten festen Abfälle (z.B. Bauschutt) sollte vergleichsweise gering sein, entsprechend wird ihr Beitrag zu Nuklidfreisetzung als eher gering eingeschätzt.

2.4.4 Feste Abfälle, unkonditioniert

Unkonditionierte feste Abfälle bestehen hauptsächlich aus Laborabfällen, Bauschutt und zellulosehaltigem Material (Einweganzüge, Wischpapier u. ä.). Die Zellulose ist wahrscheinlich zu einem großen Teil degradiert, die darin enthaltenen Nuklide in den Salzgrus gewandert. Je nach Korrosionsgrad der Abfallfässer können auch andere Abfallbestandteile aus den Gebinden ausgetreten sein. Im Kontakt mit Salzlauge können Radionuklide und lösliche Stoffe in die Lauge migriert sein. Es ist also grundsätzlich in der Nähe dieser Abfallgebände mit einer entsprechenden Kontamination des Salzgrus' zu rechnen.

2.4.5 Verbrennungsrückstände

Verbrennungsrückstände wurden in der Regel mit Zement konditioniert. Die Dichte des dabei entstandenen Abfalls liegt etwa bei $1,6 \text{ g/cm}^3$. Abfälle dieser Art wurden von mehreren Ablieferern an die Asse abgegeben, darunter auch die WAK und die Forschungszentren. Es stellt sich die Frage, ob in diesen Abfällen auch Rückstände von Uran und Thorium enthalten sind. Abhängig von der Korrosion der Fässer und dem Kontakt von Lauge zu den zementierten Abfällen ist davon auszugehen, dass der Zement brüchig geworden ist oder sich teilweise aufgelöst hat. Mit einer entsprechenden Kontamination des umgebenden Salzgrus' ist zu rechnen.

2.5 Schlussfolgerung 1: Vorschlag zum Untersuchungsumfang für Salzlaugen, Salzgrus und Grubenluft vor der Kammer 12/750

Der hier vorgestellte Vorschlag für erweiterte Untersuchungen vor der Kammeröffnung ist wahrscheinlich auch für die anderen Einlagerungskammern gültig, die im Rahmen dieses Berichts nicht näher betrachtet wurden. Besonderheiten für andere Kammern können sich aber aus Abfalltypen ergeben, die in Kammer 12/750 nicht eingelagert wurden, sowie aus grundsätzlich anders zusammengesetzten Zutrittslösungen.

Grundsätzlich ist darauf hinzuweisen, dass Probenahmen und begleitende Messungen möglichst umfassend zu protokollieren sind.

- **Untersuchung der Salzlauge**

Die bisher vorliegenden Daten enthalten keine vollständige Analyse der Salzlauge aus Messstelle 21. Es wird daher vorgeschlagen, vor der Öffnung der Kammer einige Proben der Lauge auf die maßgeblichen Inhaltsstoffe und die Aktivitäten der Radionuklide aus Tabelle 11 (s. d.) zu untersuchen. Nach der vorgesehenen Sanierung des Laugensumpfes sollte in jedem Fall eine neue Laugenprobe entnommen und untersucht werden. Wesentlich sind auch Aufzeichnungen über die Laugenmenge, sowie über die Absenkung und den Wiederanstieg des Laugenspiegels in der Messstelle 21.

- **Untersuchung von Feststoffproben des Salzes**

Bis dato liegen nur zwei Analysen von Feststoffproben aus dem Kaliflöz vor Kammer 12/750 und aus dem Bodensatz des Laugensumpfes vor [7]. Die Sanierung des Laugensumpfes im Vorfeld der Kammeröffnung sollte daher dazu genutzt werden, zusätzliche Untersuchungen anzustellen und dabei Feststoffproben auf die in Tabelle 12 vorgeschlagenen Parameter zu untersuchen. Als Referenz sollte außerdem eine Probe des anstehenden Salzes auf die gleichen Parameter untersucht werden, um Vergleichswerte zu Beurteilung der Salzkontaminationen zu ermitteln. Vor der Fakterhebung wurden einige Bohrungen in dem Haufwerk ganz wichtig sein. Die Proben und ihren Nuklid- und Wassergehalt könnten einen besseren Begriff über die Auslaugung der Abfälle enthalten.

- **Untersuchung der Grubenluft**

Bisher wurden nur wenige Proben der Grubenluft umfassender analysiert. Bei den vorliegenden Untersuchungen fehlen Angaben zu den Randbedingungen der Probenahme, insbesondere zur Luftfeuchtigkeit und Temperatur. Es wird daher vorgeschlagen, vor einer Öffnung der Kammern feste Probenahmestellen für Grubenluft vor den Kammern 7/750 und 12/750 einzurichten und regelmäßig zu beproben. Untersuchungsgegenstand sollten dabei die in Tabelle 13 genannten Parameter sein. Wichtig sind insbesondere Bestimmungen von ^3H (Gestalt je nach der Luftfeuchtigkeit und Temperatur), ^{14}C , ^{129}I , ^{222}Rn und Luftfeuchtigkeit.

Für die Beprobung der Luft innerhalb der Kammern im Zuge der geplanten Bohrungen wird vorgeschlagen, eine Probenahme unter Inertgas (Stickstoff –für die Heliummessung oder Helium- für die andere Gase) vorzusehen, um alle gasförmigen Inhaltsstoffe und ihre Bindungsformen (Abbauprodukte, Radiolysegase, Methan, Kohlenwasserstoffe, Wasserstoff oder Wasser möglichst unverfälscht untersuchen zu können.

Die Bestimmung von Helium in der Grubenluft kann zu einer verbesserten Abschätzung des Inventars an Alpha-Strahlern verwendet werden. (Selbstverständlich kann bei den Probenahmen zur Heliumbestimmung Helium nicht auch als Inertgas eingesetzt werden).

- **Untersuchung weiterer Proben**

Die vor der Kammeröffnung noch durchzuführenden Maßnahmen bieten die Gelegenheit, über den vorgeschlagenen Umfang hinaus weitere Proben zu entnehmen und zu analysieren. Von Interesse wäre besonders eine tiefenorientierte Untersuchung von Bohrproben aus dem Bereich des Laugensumpfes, um die Ausbreitung von Radionukliden und anderen Abfallbestandteilen in die Tiefe zu untersuchen. Analog könnten auch Proben aus den geplanten Aufschlussbohrungen in die Kammern abschnittsweise untersucht werden, um auch hier Hinweise auf das Migrationsverhalten von Radionukliden und anderen Stoffen im Asse-Steinsalz zu gewinnen.

2.6 Schlussfolgerung 2: Verbesserungsvorschläge für die Inventarannahmen zur Kammer 12/750

Die derzeitigen Annahmen zum Inventar der Kammer 12/750 stehen nicht in vollständigem Einklang mit den Ergebnissen der Untersuchungen zu den Konzentrationen von Radionukliden und anderen Stoffen in Salzlauge, Salzgrus und Grubenluft. Die im Rahmen dieses Berichts vorgenommene Bewertung des Kenntnisanstandes zum Inventar der Kammer zeigte also bereits, dass die derzeitigen Annahmen zum Inventar Lücken aufweisen.

Die im vorliegenden Bericht dokumentierten Überlegungen beinhalten bereits einige Vorschläge zur Verbesserung der Inventarannahmen. Die hiervon betroffenen Abfälle und Radionuklide sind:

- ^3H : Grafitkugeln, Verdampfkonzentrate (DWR – SWR), Harze, Filterhilfsmittel
- ^{10}Be : Verdampferkonzentrate DWR
- ^{14}C : Grafitkugeln, andere Abfälle (Luftfilter) aus KKW, AVR, WAK
- ^{99}Tc : Abfälle aus KKW, WAK
- 129J: Abfälle aus WAK (Luftfilter und Bitumen mit Abgaslauge und verbrauchte organische Trennungslösungen)
- Unlösliche Partikel in verbrauchten TBP-Lösungen, besonders Platinfamilie, Jod
- Plutonium

- Uran: Änderungen der Inventardaten aus Assekat 2002 [5] und 2010 [10] ohne Nachweis und Dokumentation
- Radium-Thorium-Rückstände: eine grundsätzliche Nachprüfung ist notwendig

3 Überlegungen zu den Inventarannahmen für die Kammer 12/750

3.1 Ziele der Arbeitsgruppe

Die Unterarbeitsgruppe Asse-Inventar hat sich für ihre Überlegungen 2 Ziele gesetzt:

- Erarbeitung eines brauchbaren Modells für die Einlagerungskammern der Asse.
- Erarbeitung von Vorschlägen zur Verbesserung des Inventars für diejenigen Radionuklide und anderen Stoffe, für die nach der ESK/SSK Stellungnahme vom September 2009 [2] und dem Schreiben der ESK an BMU vom November 2009 [3] erhebliche Zweifel an der Plausibilität der bisherigen Inventarannahmen angebracht sind.

Das nachfolgende Kapitel beschreibt die Modellvorstellungen für Stoffe und Radionuklide für die Kammer 12/750. Darauf aufbauend werden Vorschläge zur Verbesserung der Plausibilität der Datenbasis unterbreitet.

Nach dem Verständnis der Unterarbeitsgruppe können das chemische Stoffinventar und das Radionuklidinventar nicht unabhängig voneinander betrachtet werden. Die Entwicklung der Abfälle wird maßgeblich von den örtlichen Randbedingungen beeinflusst, zu denen ganz wesentlich auch die Eigenschaften der Abfallgebinde selbst, der darin enthaltenen chemischen Stoffe und der Radionuklide gehören. Dies wird besonders deutlich anhand der Kontamination der aus der Kammer 12/750 abfließenden Salzlauge, die sowohl Radionuklide als auch aus sonstige chemische Bestandteile der Abfallgebinde enthält.

3.2 Modell des Inventars für die chemischen Bestandteile der Abfallgebinde

Die Basis der Überlegungen zum Stoffinventar waren die Eintragungen der Datenbank Assekat 9.2. [10], sowie der Bericht zur "Bestimmung der stofflichen Hauptbestandteile der in das Salzbergwerk Asse eingelagerten Abfälle" aus dem Jahr 2001 [18]. Für allgemeine Informationen wurde außerdem die "Beschreibung der Lagerbereiche der Abfälle" von BfS/ Asse GmbH [19] herangezogen.

In Kammer 12/750 lagern, liegend gestapelt, 7.464 Abfallgebinde, die im Zeitraum 1973-1974 eingelagert wurden. Unter den Gebinden befinden sich 6.080 200l-Fässer und 717 VBAs, der Rest besteht aus Stahlfässern anderer Größen (428*250l, 24*300 l, 215* 400 l). Die Kammer enthält Abfälle von insgesamt 14 Ablieferern. Die Kammer wurde nach der Einlagerung nicht versetzt. In [19] wird darüber berichtet, dass die Sohle der Kammer wahrscheinlich mit einer etwa 2,7 m mächtigen Ausgleichsschicht aus Salzhautwerk überdeckt wurde, bevor die Abfälle eingelagert wurden.

Im ersten Arbeitsschritt zur Prüfung des Stoffinventars hat die Unterarbeitsgruppe eine Modellvorstellung zu den beschreibbaren Merkmalen der eingelagerten Abfälle entwickelt. Das hierbei entstandene Modell ist in Anlage 1 beschrieben. Es basiert i.W. auf [18] und enthält Informationen zu folgenden Parametern:

Allgemeine Informationen:

- Einlagerungszeit
- Lagerungsmethode der Gebinde
- Kammervolumen, Volumen der Abfälle, Hohlraumvolumen, Salzgrusvolumen
- Eingelagerte Abfälle (Massen und Volumen)
- Hauptabfalltypen (Massen und Volumen – Hohlraum und Wasser)
- Wasser: Behälter und Abfälle
- Abfalltypen: Klassifikation der Gebinde, Herkunft (Ablieferer)

Stoffinventar:

- Hauptstoffe der Abfallkategorie
- Zusammenfassung der Stoffe in der Abfallkategorien
- Gesamtmenge der Stoffe in der Kammer
- Detaillierte Zusammensetzung einiger Stoffe: Salze, NE-Metalle, ...

Die Klassifikation der Gebinde und die Kenntnis über die Herkunft der Abfälle sind wesentliche Grundlagen für die Abschätzung des Stoffinventars. Aus den vorliegenden Beschreibungen wird außerdem deutlich, dass die Abfälle mehreren Kategorien zugeordnet werden müssen. So haben beispielsweise Abfälle aus dem Forschungszentrum Karlsruhe (KFK, GFK) höhere Aktivitäten und andere stoffliche Eigenschaften als Abfälle aus Kernkraftwerken. Außerdem ist die Art der Abfallkonditionierung auch für ähnliche Abfälle nicht immer vergleichbar.

Die diesem Bericht zugrunde liegenden Daten aus [18] bedürfen hinsichtlich der Annahmen zur chemischen Zusammensetzung einer aufmerksamen Korrektur, bei der insbesondere das Lösungsverhalten der dort beschriebenen Salze (gute oder schlechte Löslichkeit unter den örtlichen Bedingungen) berücksichtigt werden muss. Nichteisenmetalle wie Zink müssen aufgrund ihrer Oxidationsfähigkeiten und ihres Einflusses auf die in der Kammer ablaufenden chemischen Prozesse besser bilanziert werden

Das in Anlage 1 beschriebene Modell konnte aus Zeitmangel noch nicht in allen Positionen mit Zahlenwerten hinterlegt werden, es ist aber anzustreben, die noch bestehenden Lücken bis zur Öffnung der Kammer 12/750 zu schließen.

3.3 Modell eines Radionuklidinventars für Kammer 12/750

Die von der Unterarbeitsgruppe entwickelte Modellvorstellung zum Radionuklidinventar unterscheidet grundsätzlich zwischen zwei Arten von Schlüsselnucliden: Beta-Gamma-Nuklide und Alpha-Nuklide (s. Anlage 2).

3.3.1 Schlüsselnuklide Beta-Gamma

In der Gruppe der Schlüsselnuklide Beta-Gamma befinden sich nur Nuklide mit einer Halbwertszeit von mehr als 5 Jahren. Nur diese Nuklide sind für die anstehende Kammeröffnung und die geplante Abfallrückholung relevant. Radionuklide mit geringerer Halbwertszeit dürften nach der seit der Einlagerung vergangenen Zeit heute nicht mehr in relevanten Mengen vorliegen.

Die Beta-Gamma-Strahler sind von großer Wichtigkeit für den Vergleich der Radionuklidinventare aus verschiedenen Datenquellen. Im Rahmen des vorliegenden Berichts werden 3 Inventare verglichen: Das Inventar aus dem GSF-Bericht des Jahres 2002 [5], die aktuellen Eintragungen in der Datenbank Assekat 9.2 [10] sowie die hier dokumentierten Abschätzungen der Unterarbeitsgruppe Asse-Inventar. Die Abschätzungen der Unterarbeitsgruppe sind noch nicht beendet, da mehrere Abfalltypen aus Zeitgründen bisher nicht genauer betrachtet werden konnten.

Die Datenbank Assekat 9.2 stellt im Vergleich zum Bericht der GSF [5] bereits eine Weiterentwicklung dar, die neuere Informationen zu einzelnen Radionukliden als Korrekturen berücksichtigt hat. Leider sind die bisher vorgenommenen Verbesserungen als solche nicht kenntlich gemacht und daher nur im Einzelfall aufzufinden. Hier sind Verbesserungen in der Dokumentation der Datenpflege angezeigt.

Die Unterarbeitsgruppe hat auf der Basis ihrer Überlegungen, Erfahrungen und Abschätzungen weitere Inventarverbesserungen für die Kammer 12/750 angeregt, die für die hier betrachteten Radionuklide in Tabelle 14 zusammengefasst sind. Im Vergleich zum bisherigen Kenntnisstand ergaben sich dabei einige wesentliche Neuerungen:

- Die Gesamtaktivität der eingelagerten Abfälle erhöht sich etwa um das fünffache, i.W. bedingt durch die Überlegungen zum Tritiuminventar und die neueren Abschätzungen zum AVR-Grafit aus dem FZJ.
- Die Stellungnahme FZ Jülich [16] führt zu Korrekturen im ^3H - und ^{14}C -Inventar. Die Abschätzung von ^{14}C könnte im Vergleich mit Erfahrungswerten aus Frankreich auch noch etwas höher ausfallen. Zusätzlich zu beachten sind im Zusammenhang mit dem AVR-Grafit aktivierte Verunreinigungen die, da der Grafit bisher nicht bilanziert wurde, dem Inventar der Kammer hinzuaddiert werden müssen. Dies betrifft insbesondere ^{36}Cl und ^{41}Ca aus der Herstellung des Grafits.
- Mit großer Wahrscheinlichkeit wurden die Abliefmengen an ^{99}Tc aus der WAK Karlsruhe bisher zu niedrig abgeschätzt, das hier vorgeschlagene ^{99}Tc -Inventar von $3 \cdot 10^{10}$ Bq steht besser mit den Untersuchungsergebnissen aus dem Laugensumpf in Einklang.
- Für ^{129}I ist davon auszugehen, dass die Aktivitäten in den eingelagerten Harzen und Aktivkohle und in den bituminierten WAK-Abfällen zu niedrig abgeschätzt sind, so dass auch hier ein um Faktor 10 höherer Wert vorgeschlagen wird. Dies ist für den direkten Umgang mit diesen Abfällen relevant, da der größte Teil des Jods noch in diesen Abfalltypen zurückgehalten wird.
- Für andere in der Tabelle genannte Nuklide wie ^{94}Nb , ^{93}Mo , ^{107}Pd , $^{108\text{m}}\text{Ag}$, wurde noch keine neue Abschätzung vorgenommen, im Rahmen einer Revision des Inventars sollten aber auch diese Nuklide neu bewertet werden. Für ^{60}Co , müs-

sen die Abschätzungen der Grafitkugeln und das Stahl der Hülse (Hochaktivierung und Korrosion) betrachtet werden.

Tabelle 14: Vergleich der verschiedenen Inventare für Kammer 12/750

K. 12/750 Nuklide	Inventar 2002 [5]	Assekat 9.2 [10]	Neues In- ventar (Vorschlag)
	1.1.2003	1.1.2003	
³ H	2,40E+10	2,40E+10	6,00E+13
¹⁰ Be	2,74E+01	2,74E+01	2,00E+03
¹⁴ C	1,64E+11	1,64E+11	7,20E+12
³⁶ Cl	6,10E+08	4,20E+08	2,10E+10
⁴¹ Ca	2,03E+05	2,03E+05	4,60E+10
⁶⁰ Co	2,31E+11	2,19E+11	4,80E+12
⁵⁹ Ni	9,86E+08	9,86E+08	1,20E+09
⁶³ Ni	3,52E+11	3,52E+12	4,20E+12
⁷⁹ Se	7,52E+07	7,52E+07	7,60E+07
⁸⁷ Rb	4,94E+03	4,94E+03	5,00E+03
⁹⁰ Sr	7,22E+12	7,17E+12	1,40E+13
⁹³ Zr	4,19E+08	4,19E+08	4,20E+08
⁹⁴ Nb	4,46E+09	4,46E+09	4,50E+09
⁹³ Mo	3,99E+06	3,99E+06	4,00E+06
⁹⁹ Tc	3,00E+09	3,00E+09	3,00E+10
¹⁰⁷ Pd	2,08E+07	2,08E+07	2,10E+07
^{108m} Ag	1,03E+09	1,03E+09	1,10E+09
^{113m} Cd	2,01E+09	2,01E+09	3,00E+09
¹²⁶ Sn	1,51E+08	1,51E+08	1,60E+08
¹²⁹ I	7,71E+06	7,71E+06	8,00E+07
¹³⁵ Cs	8,96E+07	8,96E+07	1,00E+08
¹³⁷ Cs	1,27E+13	1,24E+13	2,20E+13
¹⁵¹ Sm	1,80E+11	1,80E+11	2,20E+11
Summe	2,09E+13	2,37E+13	1,13E+14

Die Unterarbeitsgruppe hat auch Beta-Gamma-Radionuklide betrachtet, die im abschließenden Inventar in [5] aufgrund ihrer fehlenden Relevanz für die Langzeitsi-

cherheit nicht mehr enthalten sind (s. Tabelle 15). Für die Betrachtungen zur Kammeröffnung und zur geplanten Abfallrückholung sind sie gleichwohl relevant, da sie noch nicht vollständig zerfallen sind und auch heute noch in größeren Mengen in den Abfällen enthalten sein können. In der Datenbank Assekat 9.2 sind teilweise Angaben zu diesen Nukliden enthalten. Zu ^{210}Po und ^{214}Pb liegen derzeit keine Informationen vor. Für ^{133}Ba und ^{154}Eu hat die Unterarbeitsgruppe Vorschläge für neue Inventarwerte der Kammer 12/750 gemacht. Der neue Vorschlag für ^{133}Ba geht dabei auf die Überlegungen zum Grafit-Inventar nach den Recherchen des FZJ [16] zurück.

Tabelle 15: Vergleich der Inventare für andere Beta-Gamma Nuklide

K. 12/750 Nuklide	Inventar 2002 [5]	Assekat 9.2 [10]	Neues Inventar (Vorschlag)
Stichtag	1.1.2003	1.1.2003	
^{55}Fe	-	4,66E+09	
^{85}Kr	-	1,82E+12	
^{125}Sb	7,62E+08	7,65E+08	
^{134}Cs	-	1,67E+08	
^{133}Ba	4,30E+10	6,15E+09	2,90E+11
^{147}Pm	-	1,36E+10	
^{152}Eu	3,15E+08	3,15E+08	
^{154}Eu	4,70E+10	4,07E+10	3,60E+11
^{155}Eu	-	9,58E+09	
$^{166\text{m}}\text{Ho}$	8,18E+03	8,18E+03	
^{210}Po	-	-	
^{210}Pb	3,03E+09	3,11E+09	
^{214}Pb	-	-	
Summe	9,41E+10	1,90E+12	6,50E+11

Der Vergleich der Datenquellen und die Unterschiede darin weisen auf eine grundlegende Schwierigkeit hin, mit der die Unterarbeitsgruppe konfrontiert war. Gleichwohl sollte es möglich sein, unter Einbeziehung aller Partner die hier vorgestellten Einschätzungen weiter zu verbessern.

3.3.2 Schlüsselnuklide Alpha

Eine Klassifizierung der Alpha-Strahler muss die unterschiedlichen Abfalltypen und die davon beeinflusste Nuklidzusammensetzung berücksichtigen. In Kammer 12/750 sind folgende Typen der Alphastrahler zu betrachten:

- Thorium- und Uranhaltige Abfälle, die kein Plutonium oder andere Aktinide enthalten
- Strahlenquellen mit Americium-Curium
- Abfälle aus der Wiederaufarbeitung (WAK), Abfälle aus den Kernforschungsanlagen (FZK, FZJ) und Abfälle aus Kernkraftwerken
- Sonderchargen

Die im Rahmen dieses Berichts dokumentierte Prüfung umfasst zunächst den Vergleich zwischen den Datengrundlagen aus dem Bericht der GSF aus dem Jahr 2002 [5] und der vorliegenden Fassung der Datenbank Assekat 9.2 [10]. Für ^{226}Ra wurde ein Vorschlag für eine Änderung des Inventars eingefügt (s. Tabelle 16).

Aus dem Vergleich ergeben sich folgende Anmerkungen:

- Das Inventar an ^{226}Ra wurde bisher wahrscheinlich zu niedrig abgeschätzt.
- ^{228}Ra wurde in der Datenbank Assekat 9.2. bereits an ^{232}Th angepasst.
- Es kann derzeit nicht nachvollzogen werden, auf welcher Grundlage in Assekat 9.2 die Aktivität von ^{236}U und den Plutoniumisotopen gegenüber [5] in etwa verdoppelt wurden während die Aktivität von ^{241}Am gleichzeitig verringert wurde.

Es ist absolut notwendig, die eingelagerten Abfalltypen hinsichtlich der Alpha-Nuklide zu überprüfen, insbesondere wenn ein Kritikalitätsrisiko bei geändertem Zustand der Einlagerungskammer und Degradation der Abfallgebinde bewertet oder ausgeschlossen werden soll, oder wenn, ähnlich wie in Frankreich [6], zu beurteilen ist, ob ein Kritikalitätsrisiko durch Absetzvorgänge innerhalb der Abfallgebinde besteht.

Tabelle 16: Vergleich der Inventare für Alpha-Nuklide

K. 12/750 Nuklide	Inventar 2002 [5]	Assekat 9.2 [10]	Neues In- ventar (Vorschlag)
Stichtag	1.1.2003	1.1.2003	
Ra 226	5,08E+09	5,34E+09	2,0E+10
Ra 228	5,64E+06	4,08E+10	
Rn 222			
Rn 224			
Ac 227		7,34E+07	
Th 228		4,01E+10	
Th 229		3,85E+06	
Th 230		2,10E+10	
Th 232	4,20E+10	4,20E+10	
Pa 231	2,60E+03	4,19E+05	
U 232	1,74E+06	2,62E+06	
U 233	1,40E+09	1,40E+09	
U 234	1,54E+10	1,63E+10	
U 235	6,59E+08	6,79E+08	
U 236	1,38E+08	2,70E+08	
U 238	1,48E+10	1,59E+10	
Np 237	1,08E+08	1,41E+08	
Pu 238	4,92E+11	1,06E+12	
Pu 239	1,72E+12	3,71E+12	
Pu 240	1,79E+12	3,87E+12	
Pu 241	4,94E+13	1,07E+14	
Pu 242	1,34E+09	2,89E+09	
Pu 244	1,62E+01	4,89E+01	
Am 241	4,93E+12	1,05E+13	
Am 242 m	2,50E+08	2,50E+08	
Am 243	2,31E+08	2,31E+08	
Cm 242		0,00E+00	
Cm 243	3,49E+07	3,49E+07	
Cm 244	1,44E+09	1,44E+09	
Cm 245	1,54E+05	1,54E+05	
Cm 246	3,07E+04	3,07E+04	
Summe	5,84E+13	1,93E+13	

3.3.2.1 Radium, Thorium und Uran, unbestrahlt

In Kammer 12/750 wurden nach derzeitigem Kenntnissstand Radiumhaltige Abfälle von drei Ablieferern eingelagert:

Amersham Buchler (AB): 20 mg Ra

Gesellschaft für Strahlenforschung, Hannover (GSF, han): 5 mg Ra

Gesellschaft für Strahlenforschung, Neuherberg (GSF, Nhg): 114 mg Ra

Aus der Gesamtmasse von 129 mg ergibt sich eine Aktivität von $5,12 \cdot 10^9$ Bq.

Nach den Angaben in den zugehörigen Lieferscheinen handelt es sich bei den Abfällen um Papier, Geräte, Holz und (feste) Laborabfälle. Es sind Zweifel darüber angebracht, ob die Radionukliddeklaration dieser Abfälle hinsichtlich der Menge und der angegebenen Nuklide vollständig ist.

Das eingelagerte Thorium stammt vom Berliner Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung (HMI), aus deren Glühstrümpfe bzw. Abfälle aus der Glühstrümpfproduktion angegeben worden.

Kernforschungsanlage Jülich GmbH (KFA) hat insgesamt 317 kg Abfälle abgeliefert, die in Kammer 12/750 eingelagert wurden. Auch in diesen Abfällen könnte noch nicht deklariertes Radium, Thorium oder Uran enthalten sein.

3.3.2.2 Transurane und Strahlenquellen

Anlage 2 enthält u.a. Auszüge der Datenbank Assekat zu den dort hinterlegten Informationen bzgl. Transurane und Strahlenquellen in Kammer 12/750. Insbesondere für die dort als einzelne Nuklide angegebene ^{238}U -Quelle von GKSS (s. Anlage 2, dort Tabelle 8) und ^{237}Np -Quelle der GSF (Anlage 2, dort Tabelle 13) sind Herkunfts- und Aktivitätsangaben fraglich und müssen daher überprüft werden. Es ist insbesondere in Frage zu stellen, ob mit der Deklaration eines einzigen Nuklids diese Abfälle korrekt beschrieben wurden.

Abfälle des Karlsruher KFK ohne Angabe zum Plutoniumgehalt (Anlage 2, dort Tabelle 13) müssen ebenfalls überprüft werden um hier ggf. nicht deklarierte Plutoniumanteile bewerten zu können.

3.3.2.3 Bestrahlte Uran – Brennelemente

Im Zusammenhang mit Abfällen aus bestrahlten Brennelementen sind die Angaben in Assekat 9.2 zur Plutonium-Masse nicht immer ganz konsistent. Die Auswahlabfrage "Kataster Plutonium total" (s. Anlage 2, dort Tabelle 12) weist 2,1 kg Plutonium aus. Hinzu kämen noch die Plutoniummengen anderer Ablieferer, insbesondere vom KFK (es ist möglich dass das Plutonium der organischen Lösungen in den Bitumen nicht betrachtet wurde. Es ist also zu prüfen, ob hier Abfrage- oder Datenbankfehler vorliegen und korrigiert werden müssen.

3.3.2.4 Besondere Chargen

Für einige besondere Abfallchargen in Kammer 12/750 sind spezifische Zweifel an der Korrektheit der Datenbankeinträge aufgekommen. Zu nennen wären hier Abdampfdruckstände aus Jülich und Verdampferkonzentrate aus Karlsruhe für die bei

ansonsten gleicher Beschreibung Abfallgebinde mit und ohne Plutonium deklariert wurden (s. Anlage 2 – Chargen mit ^{238}U , ^{239}Pu , ...). Es ist zu prüfen, ob hier ein Fehler bei der Datenerfassung vorliegt, der korrigiert werden muss.

Es ist nicht auszuschließen, dass auch andere Chargen fehlerhafte Eintragungen aufweisen, daher sollten zweifelhafte Abfälle, ggf. mit Hilfe der hier vorgeschlagenen Klassifikation (s. Anlage 1-1.7) überprüft werden.

3.4 Verbesserungsvorschläge für das Inventar der Asse II

Mögliche Verbesserungen der Datenbank Assekat 9.2 betreffen die folgenden Themenbereiche:

- Einführung zusätzlicher Abfragetabellen
- Ergänzung fehlender Angaben für einige Abfälle
- Verbesserung der Aktivitätsannahmen für fehlende oder schlecht abgeschätzte Radionuklide
- Verbesserung der Annahmen zum Stoffinventar

Im Folgenden werden hierzu einige Hinweise gegeben.

3.4.1 Einführung zusätzlicher Abfragetabellen

Es fehlt eine Tabelle zur Berechnung der Dosisleistung, die für eine Abschätzung der Radiolyse und ihres Beitrags zur Gasbildung, auch für ggf. erforderliche Langzeitsicherheitsbetrachtungen, notwendig ist. Die Öffnung der Kammer und die Untersuchung der Kammeratmosphäre sollte es ermöglichen, einen Überblick über den Gehalt an Radiolysegasen zu gewinnen.

Es wäre wünschenswert, in der Datenbank eine spezielle Tabelle mit der Abfrage nach Gebinden mit hohem Spaltstoffanteil (Uran und Plutonium) zu hinterlegen.

Die Angaben zu den eingelagerten chemischen Stoffen und Materialien ist lückenhaft und muss ergänzt werden.

3.4.2 Ergänzung fehlender Angaben für einige Abfälle

Kammer 12/750, auf die sich der vorliegende Bericht beschränkt, enthält nicht alle für die Asse dokumentierten Abfalltypen. Für diese Abfalltypen gelten aber die grundsätzlichen Hinweise dieses Berichts analog.

In erster Linie sollten die Datenbankangaben zum AVR-Grafit unter Berücksichtigung der Recherchen des FZJ [16] überarbeitet werden. Dabei muss eine Unterscheidung zwischen abgeschirmten und nicht abgeschirmten Gebinden getroffen werden. Weiterhin müssen die Aktivitätsabschätzungen für diese Abfälle geändert und um zusätzliche Angaben (siehe hierzu auch Kap.3.4.3) ergänzt werden.

Die Herkunft der Verdampferkonzentrate, Schlämme und Filterhilfsmittel sollte besser klassifiziert werden um herkunftstypische Nuklidgehalte (z.B. aus SWR, von GFK, oder WAK) betrachten zu können.

Strahlenquellen oder Gebinde, für die nur ein Nuklid in der Datenbank genannt ist, sind besonders kritisch zu überprüfen, da hier möglicherweise eine unvollständige Deklaration vorliegt.

3.4.3 Verbesserung der Aktivitätsannahmen für fehlende oder schlecht abgeschätzte Radionuklide

Fehlende Angaben zum Nuklidgehalt von Abfällen werden im vorliegenden Bericht an verschiedenen Stellen bemängelt. Die nachfolgende Auflistung fasst die hierbei genannten Radionuklide und die als korrekturbedürftig genannten Abfälle zusammen. Dabei wird zwischen fehlenden und zweifelhaft abgeschätzten Radionukliden unterschieden.

- Fehlende Radionuklide:

^3H	in Grafit und KKW-Abfällen (Verdampferkonzentrate, Filterhilfsmittel und Harze)
^{10}Be	in Verdampferkonzentraten aus Druckwasserreaktoren (VDK-DWR)
^{14}C	in Grafit (neue Abschätzung)
^{36}Cl	in Grafit
^{41}Ca	in Grafit
^{59}Ni	in Grafit
^{135}Cs	in KKW-Abfällen
^{133}Ba	in Grafit

- Zweifelhaft abgeschätzte Nuklide:

^3H	in KKW-Abfällen
^{14}C	in Abfällen der WAK
^{99}Tc	in Abfälle aus KKW und der WAK
^{129}I	in Abfällen der WAK
U, Th	in Verbrennungsrückständen und Abfällen von Amersham Buchler (AB)
Pu und Aktinide	in Abfällen der Forschungszentren Karlsruhe und Jülich;
Strahlenquellen	in Abfällen der GKSS und der GSF

3.4.4 Verbesserung der Annahmen zum Stoffinventar

In den Abfällen enthaltene chemische Stoffe haben erheblichen Einfluss auf die in der Kammer ablaufenden chemischen Reaktionen. Grundsätzlich müssen daher die Nichteisenmetalle besser abgeschätzt werden. Auch die chemische Zusammensetzung der Verdampferkonzentrate und Schlämme sollte präziser aufgeklärt werden. Ebenfalls relevant sind Angaben über einige chemotoxische Stoffe wie Arsen, Cad-

mium, Kupfer und Quecksilber. Es sollte außerdem grundsätzlich angestrebt werden, Informationen über den Gehalt der Abfälle an den in der wasserrechtlichen Genehmigung zum Endlager Schacht Konrad enthaltenen Parametern zu generieren.

4 Schlussfolgerungen, Hinweise und Vorschläge

Die im vorliegenden Bericht dokumentierten Überlegungen zum Kenntnisstand über die in Kammer 12/750 eingelagerten Abfälle führen zu folgenden zentralen Schlussfolgerungen, Hinweisen und Vorschlägen:

- **Schlussfolgerungen:**

Der bisherige Kenntnistand zum Inventar weist Lücken und Unsicherheiten auf, die einer Korrektur bedürfen.

Der hier als Unterlage verwendete Abschlussbericht zur "Bestimmung der stofflichen Hauptbestandteile der in das Salzbergwerk Asse eingelagerten Abfälle" aus dem Jahr 2001 [18] weist hinsichtlich der dort verwendeten Berechnungsgrundlagen, insbesondere zum Kammer-, Abfall- und Salzvolumen, deutliche Unterschiede zu der 2009 von BfS veröffentlichten Beschreibung der Lagerbereiche [19] auf, zumindest für die im Rahmen des hier vorgelegten Berichts geprüften Angabe zur Kammer 12/750. Die Herkunft der Änderungen konnte nicht nachvollzogen werden, gleichwohl sind die Unterschiede relevant für die Überlegungen zum Stoffinventar der Kammer. Diesbezüglich ist eine Neuberechnung der hier vorgestellten Schätzwerte auf Basis von [19] erforderlich, die neue Beschreibung der Kammer 12 stimmt ansonsten nicht mit dem Gebindeinventar nach [19] überein.

Auf der Grundlage des derzeitigen Kenntnisstands und der damit verbundenen Unwägbarkeiten ist es nicht möglich, die Entwicklung des Endlagers Asse mit hinreichendem Vertrauen in die Datenbasis zu bewerten. Der Kenntnisstand bedarf daher einer deutlichen Verbesserung. Als eine wesentliche Stütze hierfür muss umgehend ein angemessenes Untersuchungs- und Prüfprogramm erarbeitet und umgesetzt werden.

- **Hinweise:**

Die Klassifikation der Abfalltypen sollte der erste Schritt vor einer Korrektur des Radionuklidinventars sein. Die Unterschiede zwischen den Abfallgebinden sind so groß, dass der derzeitige Ansatz zur Abschätzung der Radionuklide und chemischen Abfallinhaltsstoffe zu kurz greift und die Ergebnisse daher zweifelhaft sind. Die Variation der Abfälle erfordert dabei mindestens eine Klassifikation je Ablieferer. Die bisherigen Ansätze sind hierfür noch nicht ausreichend. Der Vorschlag einer Klassifikation ist im Modell (CD) vorgeschlagen.

In einem nächsten Schritt sind Informationslücken zu schließen und offensichtliche Fehlabschätzungen für Radionuklide und Abfallstoffekorrekturieren. Bei der Fakterhebung wäre es günstig einige Abfälle, besonders von KFK, zu bergen und genauer zu untersuchen.

Hinsichtlich der Schlüsselnuklide und Nuklidvektoren für KWK-Abfälle könnte eine weiter gehende Differenzierung nach Abfalltypen durch Vergleich mit den Ergebnis-

sen des EU-Programms 1986-1990 erzielt werden. In diesem Vorhaben wurden z.B. Verdampferkonzentrate und Filtrerrückstände aus Siede- und Druckwasserreaktoren am Forschungszentrum Jülich untersucht.

Besondere Aufmerksamkeit erfordert das Inventar für Plutonium und Spaltprodukte. In diesem Zusammenhang ist die Kritikalitätssicherheit nachzuweisen, auch für einen sich durch Degradation ändernden Zustand der Abfallgebinde. Es ist außerdem nachzuweisen, dass sich innerhalb der betroffenen Abfallgebinde spaltbare Stoffe nicht oder nicht in kritischer Menge absetzen können.

Vor einer Öffnung der Kammer 12/750 sollten die Schlussfolgerungen und Empfehlung aus Kapitel 2 dieses Berichts, betreffend den Untersuchungsumfang und die Verbesserungen im Radionuklidinventar, umgesetzt sowie die dadurch entstehende neue Kenntnislage bewertet und bei der Planung der Kammeröffnung berücksichtigt werden.

- **Vorschläge:**

Die mit dem vorliegenden Bericht vorgestellten Überlegungen sollten im Rahmen einer Arbeitsgruppe diskutiert und bewertet werden. Dem Gremium sollten Vertreter aller Beteiligten und relevanten Fachgebiete (Betreiber, Behörde, Strahlenschützer, Gutachter...) angehören. Aus der Arbeit des Gremiums können die Untersuchungsziele und ein Terminplan für die Kammeröffnung erarbeitet und der ESK/SSK-Ad-hoc-Arbeitsgruppe ASSE zur Beratung vorgelegt werden.

Unabhängig davon erscheint es geboten, den Kenntnisstand zum Inventar der Asse im Allgemeinen und der Kammer 12/750 im Besonderen weiter verbessern und dabei auch die im vorliegenden Bericht enthaltenen Hinweise zu nutzen. Dabei ist es besonders wichtig, Änderungen zu begründen und nachvollziehbar zu dokumentieren, um damit einen für alle Beteiligten nachvollziehbaren gemeinsamen Informationsstand zu erzeugen.

Literaturverzeichnis

- [1] Schreiben des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) (Az.:RS III 2 – 17005/0) vom 04.07.2008 an den Vorsitzenden der Entsorgungskommission (ESK), Herrn Dipl.-Ing. Michael Sailer, und den Vorsitzenden der Strahlenschutzkommission, Herrn Prof. Rolf Michel, betr.: Sicherheit der Asse, Einrichtung einer Ad-hoc-Arbeitsgruppe „Asse“
- [2] Gemeinsame Stellungnahme der ESK und der SSK zur Schachtanlage Asse II – Plausibilitätsprüfungen der Angaben des Betreibers; 17.09.2008
- [3] Schreiben der ESK an BMU vom 02.11.2009, inkl. 7 Anlagen
- [4] Bericht der U-AG Asse Inventar (A. SAAS) in der 10. Sitzung der Ad-hoc-Arbeitsgruppe der Asse II ; 28.04.2010
- [5] Bestimmung des nuklidspezifischen Aktivitätsinventars der Schachtanlage Asse, Abschlussbericht Dr. U. Gerstmann (GSF, Institut für Strahlenschutz), H. Meyer (Forschungsbergwerk Asse), M. Tholen (Forschungsbergwerk Asse), August 2002
- [6] Centre de Stockage de La Manche: Historical context and review of evolution of the disposal and plans for a new cover , A. SAAS (GPD) C. Serres (IRSN) ESK-GPD Treffen, Karlsruhe 25-26.05.2010
- [7] Dr. Reinhard Lennartz, FZ Jülich und Prof. Kurt Mengel, TU Clausthal (2008): Bericht an BMBF: Herkunft der kontaminierten Lösung der Kammer 12 auf der 750-m-Sohle der Schachtanlage Asse II
- [8] Erkundung und Bewertung der Herkunft und Genese der auf der 750-und der 775-m-Sohle des Endlagers für radioaktive Abfälle Asse auftretenden Salzlösungen und der in ihnen enthaltenen Radionuklide, Prof. Kurt Mengel, TU Clausthal
- [9] Von BMU schriftlich übergebene Unterlagen zur Radionuklidaktivität in Messstelle 21: „Laugeproben – Schachtanlage Asse II – Probenahmestelle Nr. 21 (Laugebecken vor Ka. 12-750m S.)“; „Tritiumbestimmung in Destillat (Messstelle Nr. 21) (Laugebecken vor Ka. 12-750m S.)“; „Brenk Systemplanung - Messwerte MP_21F und MP_21 vom 29.08.08
- [10] Datei „Assekat_ISS9.2.mdb“, Bundesamt für Strahlenschutz

- [11] Bericht von Herrn Laske (BfS) in der 10. Sitzung der Ad-hoc-Arbeitsgruppe der Asse II; 28.04.2010

- [12] Tritium-Inventar des Bergwerks Asse II; Schreiben von TU Clausthal an die ESK; 21.01.2009

- [13] Tritium in AVR-Grafit- und Absorberkugeln, die vom FZ-Jülich an die Asse abgegeben wurden; Printz, Rudolf; Schreiben von Herr Rittscher an die ESK ; 25.02.2009

- [14] Experimentelle Prüfungen der Löslichkeit von Nuklide der Abfälle der Asse ; Prof. Kienzler ; Bericht in der 10. Sitzung der Ad-hoc-Arbeitsgruppe der Asse II ; 28.04.2010

- [15] Statusbericht des Niedersächsischen Ministeriums für Umwelt und Klimaschutz über die Schachanlage Asse II ; 01.09.2008

- [16] Stellungnahme zum Tritium- und Kohlenstoff-14 Inventar in AVR-Grafit- und Absorberkugeln, die vom Forschungszentrum Jülich in den 70er Jahren an die Asse abgegeben wurden; FZ Jülich, 5. November 2009

- [17] Gemeinsame Stellungnahme von SSK und ESK:
Schachanlage Asse II / Genehmigung des Umgangs mit radioaktiven Stoffen gemäß § / StrlSchV ; 01/02.07.2010

- [18] Bestimmung der stofflichen Hauptbestandteile der in das Salzbergwerk Asse eingelagerten Abfälle – Abschlussbericht – 01.11.2001 C. Herzog ; L. Schneider

- [19] Beschreibung der Lagerbereiche der Abfälle, BfS/Asse GmbH, 27.03.2009

- [20] Chemische Analysen von Hauptkomponenten und genetisch relevanten Spurenelementen in Lösungen aus dem Tümpel vor ELK 12 der 750-m-Sohle (Messstelle 21) einschließlich ¹³⁷Cs- und ³H-Aktivitätskonzentrationen; Daten für den Zeitraum Juli 2008 bis Mai 2010, Prof. Kurt Mengel, TU Clausthal (2010)

- [21] Umlagerung von kontaminierten Salzlösungen in den Tiefenaufschluss; Zusammenstellung der Cs-137-Aktivitätskonzentrationen ; T. Wanka , BfS/Asse GmbH, 19.06.2008

[22] Bestimmung der stofflichen Hauptbestandteile der in die Schachanlage Asse eingelagerte Abfälle – Stoller Ingenieurtechnik GmbH C. Herzog ; Schneider L. 01.11.2001 (GSF)

Anlagen

ANLAGE: 1

INVENTARMODELL FÜR DIE STOFFE DER KAMMER 12/750

1. Allgemeines

1.1. Einlagerungszeit: 08/73 – 09/74

1.2. Gebinde

7464 – liegend gestapelte Gebinde sind in der Kammer 12 eingelagert; nach Assekat 9.2. liegt folgende Verteilung der Ablieferer und Behältertypen vor:

Tabelle 1: Ablieferer und Behältertypen der Kammer 12

Ablieferer und Behältertypen

Ablieferer	Anzahl der Chargen	SV	BB	BT	RB	RR	RE	RS
KFK	3544	1207	168	378	81	1710		
KFA	938	152	1	2	591		37	155
KWU-Gwh	390	1				389		
KWU-Erl	57				28		28	1
AB	19	2				17		
HMI	312				156	28		128
GSF-Han	17		1				16	
GSF-Nhg	275					264		11
GKSS	194					194		
KRB	139					139		
KWL	100						100	
KWO	201	24				177		
KKS	233	19				214		
TN	1045				108	872		65
Summe	7464	1405	170	380	964	4004	181	360

Mit den Daten aus Assekat 9.2. ist die Verteilung in den verschiedenen Behältertypen (220L, 250L, 300L, 400L, VBA) nicht darstellbar. Es fehlt besonders die Angabe für die Sonderverpackungen (SV). Die Tabelle 2 beschreibt ein Vorschlag für eine entsprechende Modellvorstellung.

Tabelle 2: Modell für die Abliefere und Behältertypen der Kammer 12

Gebindetypen	Verpackung	Ablieferer	Anzahl	Gesamt
200l	RR RS RE RB BT BB SV			6080
250l				428
300l				24
400l				215
VBA – 1,17 m ³				717
Gesamt				7464

Hieraus sollte man die Volumen der Abfälle ausrechnen können:

6080 Gebinde: 200 L: 1216 m³

428 Gebinde: 250 L: 107 m³

24 Gebinde: 300 L: 7,2 m³

215 Gebinde: 400 L: 86 m³

717 Gebinde: VBA : 839 m³

Gesamt: (gerundet) 2256 m³

Dazu kommen noch etwa 140 m³ Bruttovolumen für die Fässer.

Es ist außerdem notwendig, den Zustand der Nuklide in den Abfällen zu betrachten. Der vorliegende Datenbankauszug aus Assekat 9.2. muss daher auch mit der neuen Verteilung der Gebindetypen verbessert und um fehlende Angaben ergänzt werden.

Tabelle 3: Behältertypen und Zustand der Nuklide in den Abfällen der Kammer 12

Behältertypen - Zustand der Nuklide in den Abfällen							Behältertyp										
Ablieferer	Anzahl	Behältertyp	A	B	C	Gesamt		A	B	C							
KFK	3544	SV	68	618	521	1207	SV	1405	158	682	565						
		BB		168		168											
		BT		376	2	378											
		RB	81			81						BB	170		169	1	
		RR	1250	400	60	1710											
KFA	938	SV	79	58	15	152	BT	380	1	376	3						
		BB			1	1											
		BT	1		1	2											
		RB	587	4		591						RB	964	676	126	6	156
		RE	28	4	5	37											
		RS	10	11	134	155											
RR	389			389													
KWU-Gwh	390	SV	1			1	RR	4004	3165	535	276	28					
		RB	8	20		28											
KWU-Erl	57	RE	23	2	3	28	RE	181	141	22	18						
		RS	1			1											
		SV	2			2											
AB	19	RR	17			17	RS	360	22	76	134	128					
		RB	Ohne Angabe			156											
HMI	312	RR	Ohne Angabe			28	Gesamt	7464	4163	1986	1003	312					
		RS	Ohne Angabe			128											
		BB		1		1											
GSF-Han	17	RE		16		16	Behältertyp	Assekat									
		RR	223	41		264											
GSF-Nhg	275	RS	11			11	200 L	6080									
		RR	194			194											
GKSS	194	RR	123	16		139	250 L	428									
KRB	139	RE	90		10	100	300 L	24									
		SV	6	6	12	24	400 L	215									
KWL	100	RR	34	65	78	177	VBA	717									
		SV	2		17	19											
KWO	201	RR	165	6	43	214	Ohne Angabe	312									
		SV	2		17	19											
KKS	233	RR	165	6	43	214											
		SV	2		17	19											
		RR	165	6	43	214											
TN	1045	RB		102	6	108											
		RR	770	7	95	872											
		RS		65		65											
Gesamt	7464		4163	1986	1003												

1.3. Daten der Kammer 12

Raum der Kammer: 7800 m³ (7900 [19])

Hohlraum: 3300 m³ (3900 [19])

Salz – Abfälle: 4500 m³ Abfälle: 2281 m³ (2514 [19])

Salz: 2219 m³ (1486 [19]); nach [19]: 2600 m³ unverfüllt

(das Bruttovolumen in [19] wird mit 10 % Ungenauigkeit abgeschätzt; das VBA-Bruttovolumen beträgt 1,17 m³/Gebinde)

1.4. Einlagerung

Diese Angaben (Volumen und Gewicht) sind in Assekat 9.2 nicht enthalten. Sie sind aber sehr wichtig für die Berechnung von Stoff- und Materialmengen. Diese sind mit der Klassifizierung der Abfalltypen nachzuprüfen.

Tabelle 4: Volumen und Masse der eingelagerte Abfälle in der Kammer 12

Typ	Volumen (m ³)	Masse (Tonnen)
Behälter	844	2331
Konditionierungsmaterial	325	640
Abfälle	1112	1399
Gesamt	2281	4370

1.5. Hauptabfälle (Klassifikation)

Diese Zusammenstellung der Hauptabfälle stammt aus [22]. In Assekat ist sie nicht enthalten.

Tabelle 5: Hauptabfälle in der Kammer 12/750

Typ	Volumen (m ³)	Masse (Tonnen)
Flüssig getrocknet	60	55
Flüssig verfestigt	41	80
Feste Abfälle konditioniert	262	654
Feste Abfälle unkonditioniert	296	572
Verbrennungsrückstände	8	12
Luft (Hohlraum)	410 (380 nach [19])	
Wasser (freies)	37	
Wasser (freies) Konditionierung	6	
Gesamt (ohne Wasser Konditionierung)	1112	1399

Diese Klassifikation muss weiter verbessert werden, als Beispiele hierfür können KFK, KFA und KWU-Erl dienen:

KFK – Abfalltypen, Behälter, Zustand der Nuklide in den Abfällen
(Nach Assekat 9.2.)

Behälter: SV – RR – BT – RB – BB

SV: Sonderverpackung; RR: 220 L ; BT: 220 L; RB: 220 L (mit Zement); BB: 220 L (mit Zement)

Zustand der Nuklide in den Abfällen: A – B – C

Tabelle 6: Vorgeschlagene Klassifikation für die Abfälle der KFK

Abfalltyp	Gebinde	SV	RR	BT	RB	BB	A	B	C
Schlamm	294	147	53	94				92 BT	147 SV 53 RR 2 BT
Verdampferkonzentrate	351	344	7					4 SV	340 SV 7 RR
Verdampferaustrag	30	30							30 SV 4 SV
Verdampferrückstände	4	4							
Gegenstände Kontaminierte	1044	547	255	74		168		547 SV 255 RR 74 BT 168 BB	
Asche	58		58				58 RR		
Bauschutt	211		31	180				31 RR 180 BT	
Metalle ; Eisen	98	46	22	30				30 BT 46 SV 22 RR	
Papier, PVC, Gummi	1046	58	907		81		81 RB 904 RR	3 RR	

							58 SV		
Brennbar	298	10	288				10 SV 288 RR		
Nicht brennbar	110	21	89					21 SV 89 RR	
SUMME	3544	1207	1710	378	81	168	1399	1562	583
Behältertypen					SV	1207	68	618	521
					RR	1710	1250	400	60
					RB	81	81	-	-
					BT	378	-	376	2
					BB	168	-	168	-

KFA – Abfalltypen, Behälter, Zustand der Nuklide in den Abfällen
(Nach Assekate 9.2.)

Behälter: SV – BT – BB – RB – RE - RS

SV: Sonderverpackung ; BT: 220 L ; BB: 220 L (mit Zement) ; RB: 220 L(mit Zement) ; RE: 200 L ; RS: 200 L

Zustand der Nuklide in der Abfälle: A – B – C

Tabelle 7: Vorgeschlagene Klassifikation für die Abfälle der KFA

Abfalltyp	Gebinde	SV	BB	BT	RB	RE	RS	A	B	C
Grafitkugeln	42	40				2			40 SV 2 RE	
Schlämme	138	4	1	1		5	127			4 SV 1 BB 1 BT 5 RE 127 RS
Verdampfer Lösungen	18	11					7			11 SV 7 RS
Filter	149	5			132	2	10	5 SV 132 RB 2 RE 10 RS		
Laborabfälle	188	74			88	26		74 SV 88 RB 26 RE		
Metalle ; Ge- räte	56	18			35	1	2	31 RB	4 RB 18 SV 1 RE 2 RS	
Papier, PVC, Gummi	329				329			329 RB		
Verschiedenes	18			1	7	1	9	1 BT 7 RB	1 RE 9 RS	

SUMME	938	152	1	2	591	37	155	705	77	156
Behältertypen					SV	152		79	58	15
					BB	1		-	-	1
					BT	2		1	-	1
					RB	591		587	4	
					RE	37		28	4	5
					RS	155		10	11	134

KWU –Erl. – Abfalltypen, Behälter, Zustand der Nuklide in den Abfällen
(Nach Assekate 9.2.)

Behälter: RB – RE - RS

RB: 220 L(mit Zement) ; RE: 220 L ; RS: 220 L

Zustand der Nuklide in der Abfälle: A – B - C

Tabelle 8: Vorgeschlagene Klassifikation der Abfälle der KWU-Erl.

Abfalltyp	Gebinde	RB	RE	RS	RR	A	B	C
Filter	17		16		1	16 RE 1 RR		
Verdampfer- konzentrate	3		3					3 RE
Kontaminierte Teile	13	12	1				1 RE 12 RB	
Aktivierte Teile - Stahl	10	8	1	1		1 RS	1 RE 8 RB	
Papier	14	8	6			6 RE 8 RB		
SUMME	57	28	27	1	1	32	22	3
Behältertypen		RB	28			8 RB	20 RB	3 RE
		RE	27			22 RE	2 RE	
		RS	1			1 RS		
		RR	1			1 RR		

1.6. Wasser und Luft in den Abfällen

Gesamt freies Wasser: 43 m³

Luft (Hohlraum): Behälter: 21 m³

Konditionierungsmaterial: 6 m³

Abfälle: 410 m³ (380 m³ nach [19])

Gesamt Hohlraum: 447 m³

1.7. Klassifikation der verschiedenen Abfalltypen: Gebinde, Ablieferer

1.7.1. Flüssig, getrocknet

Diese Tabellen müssen nach dem vorgeschlagenen Modell und mit der vorgeschlagenen Klassifikation verbessert werden.

Tabelle 9: Inventar: flüssige, getrocknete Abfälle

Typ	Volumen (m ³)	Masse (Tonnen)	Gebinde/Fass	VBA	Abliefern	Anzahl
VDK, DWR	18,0	23,0	RR RE		KKS KWL	
VDK, SWR	1,0	2,0				
Filterhilfsmittel	41,0	28,0				
Harze	2,0	2,0				

1.7.2. Flüssig, verfestigt

Tabelle 10: Inventar: flüssige verfestigte Abfälle

Typ	Volumen (m ³)	Masse (Tonnen)	Gebinde/Fass	Kond. Material	VBA	Abliefern	Anzahl
VDK, wässrige	0,2	0,5	RE RS	Zement Kunststoff		KKS KWL	
VDK, DWR	2,0	3,0					
VDK, GFK/KFK	15	33					
Harze	0,2	0,3					
Schlämme	17	34					

1.7.3. Feste Abfälle konditioniert

Tabelle 11: Inventar: Feste konditionierte Abfälle

Typ	Volumen (m ³)	Masse (Tonnen)	Gebinde/Fass	Kond. Material	VBA	Ablieferer	Anzahl
Bauschutt	25	71					
Zellulose	2	3					
Gummi	0,3	0,4					
Metalle	6	44					
Filterkerzen	9	16					
Laborabfälle	209	490					
Grafit	6	12					
Tierkadaver	<0,1	<0,1					
U/Th Rückstände	4	7					

1.7.4. Feste Abfälle, unkonditioniert

Tabelle 12: Inventar: unkonditionierte feste Abfälle

Typ	Volumen (m ³)	Masse (Tonnen)	Gebinde/Fass	VBA	Ablieferer	Anzahl
Bauschutt	91	205				
Zellulose	45	53				
Metalle	4	33				
Filterkerzen	0,4	0,7				
Laborabfälle	154	279				
Kohle/Grafit	0,8	0,6				

1.7.5. Verbrennungsrückstände

Tabelle: 13: Inventar: Asche

Typ	Volumen (m ³)	Masse (Tonnen)	Gebinde/Fass	Kond. Material	VBA	Ablieferer	Anzahl
Asche	8	12					

2. Stoffinventar:

Das Stoffinventar ist in dem Bericht in [22] beschrieben; die vorgeschlagene Klassifikation muss verwendet werden.

2.1. Hauptstoffe der Abfallkategorie

2.1.1. Flüssigabfälle, getrocknet

Tabelle 14: Stoffinventar der flüssigen Abfälle

Typ	Masse (Tonnen)	Stoffe (Masse – Kg)
VDK, DWR	23	Borsäure: 10014 Komplexbildner: 159 Salze: 7550 Wasser: 5563
VDK, SWR	1,0	Komplexbildner: 4 Lösungsmittel: 26 Salze: 1424 Wasser: 43 Zellulose: 271
Filterhilfsmittel	28	Kieselgur: 10608 Öle: 3305 Polystyrol: 6365 Salze: 4080 Wasser: 3672
Harze	2,0	EDTA: 9 Fe-Oxyde: 468 Polystyrol: 1020 Wasser: 748

2.1.2. Flüssigabfälle, verfestigt

Tabelle 15: Stoffinventar der flüssigen, verfestigten Abfälle

Typ	Masse (Tonnen)	Stoffe (Masse - Kg)
VDK, wässrige	0,5	Lösungsmittel: 2 Salze: 390 Wasser: 11 Zellulose: 55
WDK,DWR	12	Borsäure: 4995 Komplexbildner: 79 Salze: 3766 Wasser: 2775 Gummi: 112 Silikate/Aluminate: 208 Zellulose: 120
VDK, GFK/KFK	33	Komplexbildner: 1459 Lösungsmittel: 438 Salze: 29907 Wasser: 729
Harze	0,2	EDTA: 1 Fe-Oxyde: 57 Polystyrol: 124 Wasser: 91
Schlämme	2 VDK/Schlamm	Komplexbildner: 2 Lösungsmittel: 15 Öle: 8 Salze: 815 Silikate/Aluminate: 238 Wasser: 46 Zellulose: 156
	3,0 Fällschlämme	Fe-Metalle: 5 Gummi:2 Kunststoffe: 6 NE-Metalle: 3 Salze: 197 Wasser: 708 Zellulose: 1029
	29,0 Schlämme	Lösungsmittel: 247 Öle: 333 Salze: 12336 Silikate/Aluminate: 9622 Wasser: 1234 Zellulose: 2406

2.1.3. Feste Abfälle, konditioniert

Tabelle 16: Stoffinventar der festen, konditionierten Abfälle

Typ	Masse (Tonnen)	Stoffe (Masse - Kg)
Grafit	12	Grafit:12000
Asche/Mischabfall	1,5	Asche: 447 Fe-Metalle: 109 Gummi: 39 Kunststoffe: 525 Ne-Metalle: 56 Zellulose: 425
Bauschutt	71	Fe-Metalle: 15020 NE-Metalle: 754 Silikate/ Aluminate: 47787 Zement: 5493 Wasser: 2291
Filterelemente	16	Fe-metalle: 3619 Gummi: 1299 Kunststoffe: 4454 NE-Metalle: 1856 Zellulose: 4825
Kunststoffe/Gummi	0,4	Kunststoffe: 411
Laborabfälle	35,5	Fe-Metalle: 3384 Glas: 5494 Kunststoffe: 3904 NE-Metalle: 2919 Salze: 24 Zellulose: 19737
Mischabfälle	455	Asbest: 9394 Asche: 3594 Fe-Metalle: 206961 Glas: 27883 Grafit: 7258 Gummi: 4085 Kunststoffe: 58335 NE-Metalle: 31691 Silikate/aluminate: 11379 Zellulose: 91729 Zement: 1636 Wasser: 655
Schrott-Metalle	44	Fe-Metalle: 42043 NE-Metalle: 1749
U/Th Rückstände	7	Asbest: 2280 Asche: 4256

Zellulosehaltiges Material	3	Zellulose: 2681
Tierkadaver	<0,1	Collagene: 21 Lösungsmittel: 21 Zellulose: 27

2.1.4. Feste Abfälle, unkonditioniert

Tabelle 17: Stoffinventar der festen, unkonditionierten Abfälle

Typ	Masse (Tonnen)	Stoffe (masse – Kg)
A-Kohle/Grafit	0,6	Kohle: 627
Bauschutt	205	Bitumen: 2784 Fe-Metalle: 2144 Glas: 145 Huminstoffe: 70 Kunststoffe: 70 NE Metaal: 44521 Silikate/aluminate: 124134 Zellulose: 24708 Zement: 4127 Wasser: 1858
Filterelemente	0,5	Fe-Metalle: 108 Gummi: 38 Kunststoffe: 130 Ne Metalle: 54 Zellulose: 140
Filterkerzen	0,2	Fe Metalle: 38 Keramik: 58 Kunststoffe: 35 NE Metalle: 19 Zellulose: 38
Laborabfälle	35	Fe Metalle: 3766 Glas: 5372 Kunststoffe: 3868 NE Metalle: 2602 Zellulose: 19555
Mischabfälle	244	A-Kohle: 27 Fe-Metalle: 85520 Glas: 8161 Gummi: 2368 Kunststoffe: 64952 NE Metall: 10035 Silikate/aluminate: 4632 Zellulose: 67957
Schrott/Metalle	33	Fe Metalle ! 32843 NE Metalle: 459
Zellulosehaltiges Material	53	Zellulose: 52564
Schlamm/Schrott	4,5	Lösungsmittel: 42 Öle: 57 Salze: 2116

		Silikate/aluminate: 1650 Zellulose: 413 Wasser: 212
Harz/MA	0.4	A-Kohle: 68 EDTA: 1 Fe-Oxyde: 47 Kunststoffe: 102 Polystyrol: 102 Wasser: 75

2.1.5. Verbrennungsrückstände

Tabelle 18: Stoffinventar der Asche

Typ	Masse (Tonnen)	Stoffe (Masse – Kg)
Asche	12	Asche: 10634

2.2. Zusammenfassung der Stoffe der Abfälle

Tabelle: 19: Zusammenfassung des Stoffinventars

	Getrocknet	Verfestigt	Konditioniert	Unkonditioniert	Rückstände	Konditionierungsmaterial
Wasser	10026	5594	4805	2145	-	254180
Salze	13054	47411	24	2116	-	-
Borsäure	10014	4995	-	-	-	-
Öle	3305	379	-	57	-	-
Komplexbildner	163	1540	-	-	-	-
EDTA	9	1	-	1	-	-
Lösungsmittel	26	702	22	42	-	-
Polystyrol	7385	103	-	102	-	-
Kieselgur	10608	-	-	-	-	-
Fe-Oxyde	94	62	-	47	-	-
Zellulose	271	3766	144132	165375	-	-
Gummi	-	112	5423	2406	-	-
Kunststoffe	-	6	67204	69157	-	2742
Silicate/Aluminate	-	10068	59424	130416	-	-
Fe-Metalle	-	5	236627	124416	-	294261
NE-Metalle	-	3	82510	57690	-	1245
Grafit	-	-	7258	11995	-	-
Kohle	-	-	627	627	-	520
Bitumen	-	-	2784	2784	-	25548
Humin-	-	-	70	70	-	-

stoffe						
Zement	-	-	11256	1376	-	665695
Keramik	-	-	-	58	-	-
Asbest	-	-	11674	-	-	-
Asche	-	-	8297	-	11081	-
Torf	-	-	-	-	-	1426
Gips	-	-	-	-	-	351
Knochen- leim	-	-	-	-	-	981
Blei	-	-	-	-	-	1270
Hämatit	-	-	-	-	-	323750
Vermicu- lit	-	-	-		-	4
Gesamt	44861	77747	642137	570880	11081	1571973

2.3. Stoffe der Kammer 12 (ohne Konditionierungsmittel und Behälter)

Tabelle 20: Gesamtstoffinventar der Kammer 12

Stoffe	Gesamt (Kg)
Salze	62605
Borsäure	15009
Öle	3684
Komplexbildner	1703
EDTA	11
Lösungsmittel	792
Polystyrol	7590
Kieselgur	10608
Fe-Oxyde	203
Zellulose	313544
Gummi	7941
Kunststoffe	139109
Silikate/aluminate	199908
Fe-Metalle	655309
NE-Metalle	141448
Grafit	19251
Kohle	1764
Bitumen	31116
Huminstoffe	140
Zement	678327
Asbest	11674
Asche	19378
Torf	1426
Gips	351
Knochenleim	981
Blei	1270
Hämatit	323750
Vermiculit	4

2.4.. Detaillierte Zusammensetzung einiger Materialien

2.4.1. Salze

Die Zusammensetzung der Salze aus den Verdampferkonzentrate und den Schlämmen, sowie generell der für alle flüssigen Abfälle, muss unter Abgabe einer Bandbreite abgeschätzt werden.

2.4.2. NE-Metalle

Außer Eisen und Stahl sollten auch die Inventare an Nichteisenmetallen (e.g. Zink, Kupfer) abgeschätzt werden.

ANLAGE 2

INVENTARMODELL FÜR DIE NUKLIDE DER KAMMER 12/750

1. Klassifikation der Abfälle

Die Klassifikation der Abfalltypen für jeden Ablieferer ist notwendig um den Nuklidinhalt und die Konditionierung nachzuprüfen. Zwei Beispiele für die Abfälle der KFK (Schlamm und Verdampferkonzentrate) illustrieren dieses Thema.

Tabelle: 1 Klassifikation KFK – Schlamm (Zustand B und C - Verpackung - Konditionierung)

Klass.	Anzahl	SV	RR	BT	B	C	Bitumen	Bitumen-Betoniert	Betoniert
Schlamm	190	135	53	2		190	12		178
+ Gegens.	92			92	92				92
+ Verdampf.	12	12				12		12	
Summe	294	147	53	94	92	202	12	12	270

Tabelle: 2 Klassifikation KFK – Verdampferkonzentrate (Zustand B und C - Verpackung – Konditionierung)

	Anzahl	B	C	SV	RR
Bitumen	25		25	18	7
Bitumen-Betoniert	152		152	152	
Bitumen-Beton	5		5	5	
Betoniert-Bitumen	8		8	8	
Betoniert	149	4 SV	145	149	
Beton	12		12	12	
Summe	351	4	347	344	7

Für jeden Abfalltyp sollte Verpackung und Konditionierung betrachtet werden. Bituminierte oder betonierte Schlämme kommen wahrscheinlich nicht von dem selbem Abfallstrom und enthalten deshalb eine besondere Menge und besondere Nuklide; es kann auch möglich sein dass für jeden Typ andere Vektoren angewendet werden müssen. Aus diesem Grund wurden die verschiedenen Abfalltypen aufgelistet und der Nuklidinhalt wurde dann verglichen.

2. Schlüsselnuklide: Beta-Gammastrahler

Die Werte in Tabelle 3 sind ein Auszug aus der Datenbank Assekat 9.2. [10]. Zum Vergleich sind in der Zeile "Inventar 2002" die Summenwerte aus [5] eingetragen. Bisher fehlen noch einige Nuklide: ^{10}Be , ^{107}Pd , $^{108\text{m}}\text{Ag}$, $^{113\text{m}}\text{Cd}$, ^{126}Sn , ^{133}Ba , ^{151}Sm , $^{152,154}\text{Eu}$, $^{166\text{m}}\text{Ho}$. Daten zu diesen Nukliden sind in Assekat zwar enthalten, aber nicht in der hier dargestellten Form abgefragt:

Tabelle: 3 Schlüsselnuklide Beta-Gamma nach Ablieferer

Kammer 12/750m Inventar-Schlüsselnuklide

Ablieferer	^3H	^{14}C	^{36}Cl	^{41}Ca	^{60}Co	^{59}Ni	^{63}Ni	^{79}Se	^{90}Sr	^{93}Zr
AB	0,00E+00	0,00E+00			1,84E+10		0,00E+00		5,29E+10	
GFK	6,06E+10	8,02E+06			3,93E+11		1,33E+11		1,23E+13	
GKSS	2,62E+09	1,71E+10			4,35E+09		0,00E+00		9,58E+09	
GSF Han	0,00E+00	0,00E+00			0,00E+00		0,00E+00		0,00E+00	
GSF Nbg	1,05E+10	8,22E+09			5,28E+08		0,00E+00		4,82E+08	
HMI	0,00E+00	0,00E+00			1,90E+10		0,00E+00		0,00E+00	
KFA	0,00E+00	7,71E+10			2,65E+12		3,09E+12		4,19E+10	
KKS	0,00E+00	1,23E+09			4,05E+10		7,10E+10		5,98E+08	
KRB	0,00E+00	2,41E+09			6,97E+10		2,05E+10		1,02E+09	
KWL	0,00E+00	5,87E+08			1,97E+10		4,98E+09		4,76E+08	
KWO	0,00E+00	4,43E+09			1,41E+10		2,56E+11		2,23E+09	
KWU Erl.	0,00E+00	2,75E+08			9,32E+09		1,17E+10		2,38E+08	
KWU Gw.	0,00E+00	3,01E+09			1,25E+11		1,25E+11		2,31E+09	
TN	0,00E+00	3,31E+10			1,04E+12		4,08E+11		2,89E+10	
		1,47E+11								
Gesamt	7,37E+10	1,47E+11			4,40E+12		4,12E+12		1,24E+13	

Inventar 2002:	8,76E+10	1,65E+11	6,10E+08	2,03E+05	4,76E+12	9,87E+08	4,12E+12	7,52E+07	1,26E+13	4,19E+08
----------------	----------	----------	----------	----------	----------	----------	----------	----------	----------	----------

Tabelle: 3 - Fortsetzung: Schlüsselnuklide Beta-Gamma nach Ablieferer

^{93}Mo	^{98}Nb	^{99}Tc	^{129}I	^{135}Cs	^{137}Cs
		0,00E+00	0,00E+00		5,96E+10
		2,96E+09	6,49E+06		1,74E+13
		0,00E+00	0,00E+00		1,24E+08
		0,00E+00	0,00E+00		0,00E+00
		3,70E+09	0,00E+00		2,14E+07
		0,00E+00	0,00E+00		8,61E+10
		0,00E+00	6,40E+05		1,89E+12
		0,00E+00	1,03E+04		2,63E+10
		0,00E+00	1,70E+04		4,86E+10
		0,00E+00	7,20E+03		2,11E+10
		0,00E+00	3,89E+04		9,86E+10
		0,00E+00	3,45E+03		1,03E+11
		0,00E+00	3,48E+04		1,02E+11
		0,00E+00	4,60E+05		1,32E+12
		6,66E+09	7,70E+06		2,12E+13

4,00E+06	4,46E+09	3,00E+09	7,71E+06	8,96E+07	2,16E+13
----------	----------	----------	----------	----------	----------

3. Schlüsselnuklide: Alphastrahler

Die Alphastrahler wurden in mehrere Kategorien eingeteilt.

Im Folgenden (s. Tabelle 4) werden zuerst die nicht bestrahlten Stoffe aufgelistet, es handelt sich dabei meist um Reststoffe. Werte aus Assekat 9.2. [10] sind hier noch nicht eingetragen.

Tabelle 4: Alphastrahler, hier: Radium-Thorium Ablieferer

Kammer 12	Aktivität										01,01,1980
Ablieferer	Tl 204	Pb 210	Pb 214	Po 210	Ra 226	Ra 228	Ac 227	Th 228	Th 229	Th 230	Th 232
AB											
GFK											
GKSS											
GSF Han											
GSF Nbg											
HMI											
KFA											
KKS											
KRB											
KWL											
KWO											
KWU Erl.											
KWU Gw.											
TN											
Gesamt (aus Spalte):					5,18E+09						
Inventar 2002		3,03E+09			5,08E+09		5,64E+06				
Änderungen					gleich						

An zweiter Stelle werden in Tabelle 5 Uran- und Plutoniumhaltige Abfälle aufgelistet; diese stammen aus der Wiederaufarbeitung und aus Kernkraftwerken. Bisher konnten nur die Summenwerte eingetragen werden.

Tabelle 5: Alphastrahler, hier: Uran und Plutonium nach Ablieferer

Ablieferer	Pa 231	U 232	U 233	U 234	U 235	U 236	U 238	Np 237	Pu 238	Pu 239	Pu 240	Pu 241	Pu 242
AB													
GFK													
GKSS													
GSF													
GSF													
HMI													
KFA													
KKS													
KRB													
KWL													
KWO													
KWU													
KWU													
TN													
Gesamt	8,85E+04	3,31E+06	1,40E+09	1,63E+10	6,79E+08	2,70E+08	1,59E+10	8,31E+07	1,72E+12	3,72E+12	3,88E+12		2,8E+13
Invent. 2002	2,60E+03	1,74E+06	1,40E+09	1,54E+10	6,59E+08	1,36E+08	1,48E+10	1,08E+08	4,92E+11	1,72E+12	1,79E+12	4,94E+13	1,3E+13
Faktor	x 34	X1.9	gleich	x 1.06	x 1.03	x 2	x 1.07	: 0.77	x 3.5	x 2.2	x 2.2		x

In Tabelle 6 sind Americium- und Curium-Quellen aufgelistet. Bisher konnten nur die Summenwerte eingetragen werden.

Tabelle 6: Alphastrahler, hier: Americium- Curium nach Ablieferer

Ablieferer	Am 241	Am 242	Am 243	Cm 243	Cm 244	Cm 245	Cm 246
AB							
GFK							
GKSS							
GSF Han.							
GSF Nbg.							
HMI							
KFA							
KKS							
KRB							
KWL							
KWO							
KWU Erl.							
KWU Gw							
TN							
Gesamt	3,61E+12		2,31E+08	6,03E+07	3,49E+09	1,54E+05	3,08E+04
Inventar 2002	4,93E+12	2,50E+08	2,31E+08	3,49E+07	1,44E+09	1,54E+05	3,07E+04
Faktor	: 0,77		gleich	x 1,7	x 2,4	gleich	gleich

4. Radium-Thorium-Uran unbestrahlt

In den folgenden Tabellen 7, 8 und 9 sind die 3 Abfalltypen aus Rückständen nach Radium- Thorium- und Urangehalt getrennt aufgelistet. Die hier genannten Chargen bedürfen grundsätzlich einer Revision.

Tabelle: 7 Abfallchargen mit Radium

<u>Radium</u>		Kammer		01,01,1980		
Radium		12				
Chargen		Ablieferer	Aktivität/Bq	Masse mg		
			Ra 226			
6642	12/750m	AB	3,69E+08	10 mg	Papier	
6661	12/750m	AB	3,69E+08	10 mg	Papier, Geräte	
9987	12/750m	GSF/Han	3,69E+07	1,0 mg	Holz	Kunststabe Metall
9988	12/750m	GSF/Han	3,69E+07	1,0 mg	Holz	
9989	12/750m	GSF/Han	3,69E+07	1,0 mg	Holz	
9990	12/750m	GSF/Han	3,69E+07	1,0 mg	Holz	
9991	12/750m	GSF/Han	3,69E+07	1,0 mg	Holz	
11120	12/750m	GSF/Nhg	1,107E+09	30 mg	Laborabfälle	verlötet
11122	12/750m	GSF/Nhg	2,214E+09	60 mg	Laborabfälle	verlötet
11123	12/750m	GSF/Nhg	5,17E+08	14 mg	Laborabfälle	verlötet
11148	12/750m	GSF/Nhg	7,38E+07	2 mg	Laborabfälle	Torf Müll
11154	12/750m	GSF/Nhg	2,95E+08	8 mg	Laborabfälle	
			5,12E+09	139 mg	5,12E+09	

Tabelle 8: Abfallchargen mit Thorium

<u>Thorium</u>		Kammer		01,01,1980				
Thorium		12						
Chargen	Kammer	Ablieferer	Aktivität/Bq	Aktivität/Bq	Aktivität/Bq	Masse/mg	Masse/Kg	Masse/
			Ra 226	Th 232	Th 228	Ra 226	Th 232	Th 228
6788	12/750m	HMI	1,30E+07	1,039E+10		0,35		
6789	12/750m	HMI	4,70E+06	3,73E+09		0,13		
6790	12/750m	HMI	8,38E+06	6,66E+09		0,23		
6791	12/750m	HMI	6,80E+05	5,33E+08		0,02		
6792	12/750m	HMI	1,26E+07	9,857E+09		0,34		
6793	12/750m	HMI	1,37E+07	1,039E+10		0,37		
		Gesamt	5,31E+07	4,16E+10		1,44		

Die Tochternuklide des Thoriums fehlen in der Aufstellung.

Tabelle 9: Abfallchargen mit Uran

<u>Uran</u>		Kammer 12		01,01,1980					
Uran									
Chargen	Kammer	Ablieferer	Aktivität/Bq	Aktivität/Bq	Aktivität/Bq				
			Ra 226	Th 228	Th 232	Pa 231	U 232	U 233	U 235
7086	12/750m	KFA	7		5,45E+02		0	0	0,00E+00
7105	12/750m	KFA	136,2		1,01E+05		11,33	0	0
7106	12/750m	KFA	2,32E+05		1,73E+08		1,98E+04	0	4,35E+08

7107	12/750m	KFA	2,32E+05	1,73E+08	2,37E+03	0	0
7108	12/750m	KFA	1,81E+05	1,35E+08	1,29E+03	0	9,63E+08
	Gesamt		6,45E+05	4,91E+08	2,35E+04	0	1,40E+09

Masse/mg	Masse mg	Masse Kg	Masse g	Masse g	Masse g	Masse g	Masse g	Uran/Gebinde	U-5/U-8
Ra 226	Th 228	Th 232	U 233	U 234	U 235	U 238	Uran		
<0,0001				0,39764557	52,05497857	7177,457454	7229,910078	7229,910078	
< 0,0001				0,00855001	1,079993355	148,9065114	149,9950547	149,9950547	0,047
0,00062			1,21998525	14,9026054	1882,421218	259543,0566	261441,6004	5335,542866	0,047
0,00062				1,78917449	225,9994095	31160,17657	31387,96516	2092,53101	0,047
0,0005			2,69996734	0,97202181	122,7808446	16928,68492	17055,13776	3411,027552	0,047
0,00174			3,91995259	18,0699973	2284,336445	314958,2821	317264,6085		

Aktivität/Bq
Pu 239

Masse mg
Pu 239

1,15E+07

Schlämme in Zement
Schlämme in Zement
Schlämme in Zement
Laborabfälle
Laborabfälle

Die Charge **7107** enthält ²³⁹Pu ohne weitere Angaben zu anderen Plutoniumisotopen. Dies ist unplausibel, daher ist eine Nachprüfung notwendig.

Tabelle 10: ²³⁸Uranquelle

Uran 238/Quelle ?

²³⁸U

10567 12/750m

GKSS

6,72E+03

Die Charge **10567** enthält ausschließlich Angaben über ²³⁸Uran. Dies ist unplausibel, daher muss die Herkunft und Aktivität dieser Charge nachgeprüft werden.

5. Verschiedenes

In dieser Rubrik wird zunächst die deklarierte Plutoniummenge dargestellt:

Tabelle 11: Auszug aus dem Plutoniumkataster in Assekat 9.2, Kammer 12/750.

	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241 g	Pu-242	Pu-244	Σ Pu
KaNr	g	g	g		g	g	g
12/750m	2	1618,76	432,07	84,6	19,74	7,28E-05	2187,18

Ein Vergleich der Abschätzungen zeigt, dass die Angaben in Assekat 9.2 zur Plutonium-Masse nicht immer ganz konsistent sind. Die Auswahlabfrage "Kataster Plutonium total" (Tabelle 11) weist 2,1 kg Plutonium in Kammer 12/750 aus. Hinzu kämen noch die Plutoniummengen anderer Ablieferer, insbesondere vom KFK (es ist wahrscheinlich dass das Plutonium von den bituminierten organischen Lösungen nicht richtig deklariert wurde. Es ist also zu prüfen, ob hier Abfrage- oder Datenbankfehler vorliegen und korrigiert werden müssen.

Wenn die Abfälle der KFK ohne Plutonium betrachtet werden, zeigt es sich, dass ein Teil nur Americium und Curium enthält ohne Plutonium; darunter sind besonders Schlämme und Verdampferkonzentrate die in der selben Anlage behandelt wurden wie diese mit deklarierte Plutonium.

Tabelle12: Abfälle der KFK ohne Plutonium

ChargenNr	KaNr	Ra-226	Pa-231	Np-237	Am-241	Am-243	Cm-243	Cm-244	Cm-245	Cm-246
<u>KFK Abfälle ohne Plutonium</u>										
4491	12/750m	<1	12,55	2,58E+05	857052288	2,21E+06	5,78E+05	31796721	1016,31733	214,76377
4493	12/750m	1,686	66,54	1,37E+06	4544339655	11736936	3,07E+08	168595429	5388,8091	1138,7398
4494	12/750m	<1	7,01	1,44E+05	478706753	1,24E+06	3,23E+05	17760066	567,664282	119,95635
4495	12/750m	<1	8,358	1,72E+05	570765744	1,47E+06	3,85E+05	21175463	676,83049	143,02488
4496	12/750m	<1	9,167	1,89E+05	626001139	1,62E+06	4,22E+05	23224701	742,330215	156,866
4497	12/750m	<1	4,314	8,89E+05	294588771	7,61E+06	1,99E+05	10929271	349,331866	73,819294
4498	12/750m	<1	4,853	1,00E+05	331412368	8,56E+05	2,24E+05	12295430	392,998349	83,046706
4499	12/750m	<1	4,853	1,00E+05	331412368	8,56E+05	2,24E+05	12295430	392,998349	83,046706
4500	12/750m	<0,1	<1	1,94E+04	6,44E+07	1,66E+05	4,35E+04	2,39E+06	76,4163456	16,147971
4501	12/750m	<1	4,988	1,03E+05	340618267	8,80E+05	2,30E+04	12636970	403,91497	85,353559
4502	12/750m	<1	7,01	1,44E+05	478706753	1,24E+06	3,23E+05	17760066	567,664282	119,95635
4503	12/750m	<1	7,01	1,44E+05	478706753	1,24E+06	3,23E+05	17760066	567,664282	119,95635
4504	12/750m	<1	7,549	1,55E+05	515530349	1,33E+06	3,48E+05	19126225	611,330765	129,18377
4505	12/750m	<1	7,819	1,61E+05	533942148	1,38E+06	3,60E+05	19809304	633,164007	133,79747
4510	12/750m	<1	3,213	6,61E+05	219419713	5,67E+05	1,48E+05	8,14E+06	260,194228	54,983115
4550	12/750m	<0,1	<1	1,15E+04	3,81E+07	9,84E+04	2,57E+04	1,41E+06	45,1806808	9,5473855
4554	12/750m	<1	3,675	7,57E+04	250980907	6,48E+05	1,69E+05	9,31E+06	297,620402	62,891852
4559	12/750m	<0,1	<1	6,88E+03	2,28E+07	5,89E+04	1,54E+04	8,45E+05	27,058859	5,7179607
4575	12/750m	<1	15,89	3,27E+05	1085096351	2,80E+06	7,32E+05	40257177	1286,73857	271,90801
4576	12/750m	<1	27,81	5,73E+05	1898918613	4,90E+06	1,28E+06	70450059	2251,79249	475,83902
4577	12/750m	<0,1	<1	2,05E+04	6,78E+07	1,75E+05	4,58E+04	2,52E+06	80,4211603	16,994251
4578	12/750m	1,452	54,57	1,12E+06	3726542033	9,63E+06	2,51E+06	138255061	4419,04108	933,81259
4579	12/750m	<1	4,961	1,02E+05	338776548	8,75E+05	2,29E+05	12568642	401,731007	84,892054
4582	12/750m	<0,1	<1	1,00E+04	3,34E+07	8,62E+04	2,25E+04	1,24E+06	39,5858908	8,3651187
4583	12/750m	<0,1	<1	5,08E+02	1,69E+06	4,36E+03	1,14E+03	6,26E+04	1,99928741	<1
4584	12/750m	<0,1	<1	3,05E+03	1,01E+07	2,61E+04	6,82E+03	3,76E+05	11,9957245	2,5348845
4585	12/750m	<0,1	<1	1,02E+03	3,37E+06	8,71E+03	2,28E+03	1,25E+05	3,99857483	<1
4586	12/750m	<1	6,906	1,42E+05	471633012	1,22E+06	3,18E+05	17497629	559,276036	118,18379
4587	12/750m	<1	2,467	5,08E+04	168440361	4,35E+05	1,14E+05	6,25E+06	199,741441	42,208495
4588	12/750m	1,735	65,06	1,34E+06	4442655957	11474312	3,00E+06	164822955	5268,22964	1113,2594
4591	12/750m	<1	7,064	1,46E+05	482379668	1,25E+06	3,25E+05	17896331	572,01973	120,87673
4593	12/750m	<1	3,43	7,07E+04	234269117	6,05E+05	1,58E+05	8,69E+06	277,80308	58,704142
4595	12/750m	1,179	44,06	9,08E+05	3009190404	7,77E+06	2,03E+06	111641248	3568,38482	754,0556
4604	12/750m	<0,1	<1	1,29E+03	4,29E+06	1,11E+04	2,89E+03	1,59E+05	5,08625402	1,0748051
4605	12/750m	<0,1	<1	8,86E+03	2,94E+07	7,59E+04	19805,784	1,09E+06	34,8212775	7,3582813
4606	12/750m	<0,1	<1	6,97E+02	2,31E+06	6,00E+03	1,56E+03	8,57E+04	2,73875216	<1
4607	12/750m	<0,1	<1	3,48E+03	1,16E+06	2,98E+04	7,79E+03	4,29E+05	13,6937608	2,8937061
4635	12/750m	<0,1	<1	1,06E+03	3,52E+06	9,08E+03	2,37E+03	1,31E+05	4,16833751	<1
4699	12/750m	<1	2,605	5,37E+04	177886514	4,60E+05	1,20E+05	6,60E+06	210,942961	44,575551
4700	12/750m	<0,1	<1	1,73E+03	5,74E+06	1,48E+04	3,87E+03	2,13E+05	6,80461166	1,437921
4701	12/750m	<1	3,109	6,41E+04	212316162	5,48E+05	1,43E+05	7,88E+05	251,770631	53,203078
4706	12/750m	<1	11,91	2,46E+05	813551130	2,10E+05	5,49E+05	30182824	964,732407	203,86307
4707	12/750m	<0,1	<1	1,72E+03	5,69E+06	1,47E+04	3,84E+03	2,11E+05	6,74638047	1,4256159
4708	12/750m	<1	2,999	6,18E+04	204810075	5,29E+05	1,38E+05	7,60E+06	242,869697	51,322171
4712	12/750m	<0,1	<1	6,82E+02	2,26E+06	5,83E+03	1,52E+03	8,38E+04	2,67821312	<1
4713	12/750m	<0,1	<1	3,41E+03	1,13E+07	2,92E+04	7,62E+03	4,19E+05	13,3910661	2,829742
4714	12/750m	<0,1	<1	1,02E+03	3,39E+06	8,75E+03	2,29E+03	1,26E+05	4,01731968	<1
4715	12/750m	<0,1	<1	1,53E+04	5,07E+07	1,31E+05	3,41E+04	1,88E+06	59,9987023	12,678665
4716	12/750m	<0,1	<1	5,09E+03	1,69E+07	4,36E+05	1,14E+04	6,26E+05	19,9995674	4,2262218
4717	12/750m	<1	1,182	2,44E+04	8,07E+07	2,09E+05	5,44E+04	3,00E+06	95,6849217	20,219723
4719	12/750m	<0,1	<1	3,72E+03	1,13E+07	3,18E+04	8,32E+03	4,58E+05	14,6185297	3,0891243
4720	12/750m	<0,1	<1	5,07E+02	1,68E+06	4,34E+03	1,13E+03	6,24E+04	1,99343587	<1
4721	12/750m	<0,1	<1	5,07E+02	1,68E+06	4,34E+03	1,13E+03	6,24E+04	1,99343587	<1
4722	12/750m	<0,1	<1	3,38E+02	1,12E+06	2,90E+03	7,56E+02	4,16E+04	1,32895725	<1

4723	12/750m	<0,1	<1	4,23E+03	1,40E+07	3,32E+05	9,45E+03	5,20E+05	16,6119656	3,5103685
4724	12/750m	<0,1	<1	5,92E+03	1,96E+07	5,07E+05	1,33E+03	7,28E+05	23,2567518	4,9145159
4725	12/750m	<0,1	<1	2,18E+03	7,24E+06	1,87E+04	4,88E+03	2,69E+05	8,58178302	1,8134652
4726	12/750m	<0,1	<1	1,85E+03	6,12E+06	1,58E+04	4,13E+03	2,27E+05	7,26150871	1,5344705
4727	12/750m	<0,1	<1	1,68E+02	5,57E+05	1,44E+03	3,76E+02	2,07E+04	<1	<1
4728	12/750m	<0,1	<1	1,68E+02	5,57E+05	1,44E+03	3,76E+02	2,07E+04	<1	<1
4729	12/750m	<0,1	<1	2,69E+03	8,91E+06	2,30E+04	6,01E+03	3,31E+05	10,5621945	2,2319571
4730	12/750m	<0,1	<1	1,51E+03	5,01E+06	1,30E+04	3,38E+03	1,86E+05	5,9412344	1,2554759
4731	12/750m	<0,1	<1	5,04E+03	1,67E+07	4,31E+04	1,13E+04	6,20E+05	19,8041154	4,1849198
4732	12/750m	<0,1	<1	2,01E+04	6,67E+07	1,72E+05	4,50E+04	2,47E+06	79,0430097	16,703026
4733	12/750m	<0,1	<1	9,35E+03	3,10E+07	8,00E+04	2,09E+04	1,15E+06	36,7249949	7,7605666
4734	12/750m	<0,1	<1	1,34E+03	4,42E+06	1,14E+04	2,99E+03	1,64E+05	5,24642785	1,1086524
4735	12/750m	<0,1	<1	3,34E+02	1,11E+06	2,86E+03	7,46E+02	4,10E+03	1,31160696	<1
4736	12/750m	<0,1	<1	1,00E+03	3,32E+06	8,57E+03	2,24E+03	1,23E+05	3,93482089	<1
4737	12/750m	<0,1	<1	1,67E+03	5,52E+06	1,43E+04	3,73E+03	2,05E+05	6,55081972	1,3842908
4738	12/750m	<0,1	<1	2,33E+03	7,73E+06	2,00E+04	5,22E+03	2,87E+05	9,17114761	1,9380071
4739	12/750m	<0,1	<1	1,67E+02	5,52E+05	1,43E+03	3,73E+02	2,05E+04	<1	<1
4740	12/750m	<0,1	<1	5,00E+02	1,66E+06	4,28E+03	1,12E+03	6,15E+04	1,96524592	<1
4741	12/750m	<0,1	<1	3,83E+03	1,27E+07	3,28E+04	8,57E+03	4,72E+05	15,0668854	3,1838688
4742	12/750m	<0,1	<1	1,67E+02	5,52E+05	1,43E+03	3,73E+02	2,05E+04	<1	<1
4743	12/750m	<1	5,579	1,15E+05	380979261	9,84E+05	2,57E+05	14134366	451,776201	95,467387
4744	12/750m	<0,1	<1	1,66E+03	5,48E+06	1,42E+04	3,70E+03	2,03E+05	6,500377	1,3736315
4745	12/750m	<0,1	<1	1,66E+03	5,48E+06	1,42E+04	3,87E+03	2,03E+05	6,500377	1,3736315
4746	12/750m	<0,1	<1	8,27E+02	2,74E+06	7,08E+04	1848,6551	1,02E+05	3,2501885	<1
4747	12/750m	<0,1	<1	7,49E+03	2,48E+07	6,41E+04	1,68E+04	9,21E+05	29,4462319	6,22245
4748	12/750m	<0,1	<1	9,16E+03	3,03E+09	7,84E+04	2,05E+04	1,13E+06	35,989839	7,6052166
4749	12/750m	<0,1	<1	1,83E+04	6,07E+07	1,57E+05	4,10E+04	2,25E+06	71,9796781	15,210433
4750	12/750m	<0,1	<1	2,00E+04	6,62E+07	1,71E+05	4,47E+04	2,46E+06	78,5232851	16,5932
4751	12/750m	<1	2,853	5,88E+04	194816444	5,03E+05	1,31E+05	7,23E+06	231,018961	48,817925
4752	12/750m	<0,1	<1	8,28E+02	2,74E+06	7,09E+03	1,85E+03	1,02E+05	3,25378818	<1
4753	12/750m	<1	2,846	5,87E+04	194385459	5,02E+05	1,31E+05	7,21E+06	230,507887	48,709927
4754	12/750m	<0,1	<1	8,26E+02	2,74E+06	7,07E+03	1,85E+03	1,02E+05	3,24658996	<1
4755	12/750m	<1	4,205	8,67E+04	287152920	7,42E+05	1,94E+05	10653400	340,514218	71,955987
4756	12/750m	<0,1	<1	8,25E+02	2,74E+06	7,06E+03	1,85E+03	1,02E+05	3,24299256	<1
4757	12/750m	<0,1	<1	1,65E+03	5,47E+06	1,41E+04	3,69E+03	2,03E+05	6,48598511	1,3705902
4758	12/750m	<1	3,827	7,89E+04	261375820	6,75E+05	1,76E+05	1,00E+07	309,946989	65,496653
4759	12/750m	<1	5,735	1,18E+05	391627584	1,01E+06	2,64E+05	14529420	464,403291	98,135689
4761	12/750m	<1	5,722	1,18E+05	390755720	1,01E+06	2,64E+05	14497074	463,369409	97,917213
4762	12/750m	<0,1	<1	1,96E+04	6,48E+07	1,68E+05	4,37E+04	2,41E+06	76,8839472	16,246782
4763	12/750m	<0,1	<1	8,15E+02	2,70E+06	6,98E+03	1,82E+03	1,00E+05	3,2034978	<1
4764	12/750m	<0,1	<1	8,15E+02	2,70E+06	6,98E+03	1,82E+03	1,00E+05	3,2034978	<1
4765	12/750m	<1	1,82	3,75E+04	124268268	3,21E+05	8,38E+04	4,61E+06	147,360899	31,139666
4766	12/750m	<0,1	<1	5,70E+03	1,89E+07	4,88E+04	1,28E+04	7,01E+05	22,3994011	4,7333443
4767	12/750m	<1	1,62	3,34E+04	110636953	2,86E+03	7,46E+04	4,10E+06	131,196492	27,723874
4768	12/750m	<1	2,845	5,86E+04	194289284	5,02E+05	1,31E+05	7,21E+06	230,39384	48,685827
4769	12/750m	<0,1	<1	5,70E+03	1,89E+07	4,88E+04	1,28E+04	7,01E+05	22,3994011	4,7333443
4770	12/750m	<0,1	<1	5,70E+03	1,89E+07	4,88E+04	1,27E+04	7,01E+05	22,3994011	4,7333443
5064	12/750m	<0,1	<1	1,01E+03	3,36E+06	8,68E+03	2,27E+03	1,25E+05	3,98687174	<1
5096	12/750m	<1	4,117	8,48E+04	281122928	7,26E+05	1,90E+05	10429687	333,363681	70,444967
4651	12/750m	0	0	4436,74	14708033,4	37987,312	9920,2806	545669,42	17,4412104	3,6856009
4668	12/750m	0	0	271,12206	898725,616	2321,1921	606,17284	33342,805	1,06573477	0
4669	12/750m	0	0	1445,9843	4793203,29	12379,691	3232,9218	177828,29	5,68391878	1,2011011
4670	12/750m	0	0	271,12206	898725,616	2321,1921	606,17284	33342,805	1,06573477	0
4671	12/750m	0	0	180,74804	599150,411	1547,4614	404,11523	22228,537	0	0
4674	12/750m	0	1,305	26888,385	89128512,6	230197,51	60115,437	3306676,2	105,691162	22,334198
4675	12/750m	0	4,786	98590,744	326804546	844057,52	220423,27	12124479	387,534262	81,892059
4677	12/750m	0	0	8962,7949	29709504,2	76732,502	20038,479	1102225,4	35,2303874	7,4447326
4678	12/750m	0	3,915	80665,154	267385538	690592,52	180346,31	9920028,6	317,073487	67,002594
4679	12/750m	0	0	5377,677	17825702,8	46039,502	12023,088	661335,25	21,1382328	4,4668396
4680	12/750m	0	0	3854,0017	12775086,5	32994,975	8616,5458	473956,91	15,1490663	3,201235
4681	12/750m	0	0	89,627947	297095,035	767,325	200,38479	11022,254	0	0
4682	12/750m	0	0	8245,7711	27332743,3	70593,9	18435,4	1014047,4	32,4119557	6,8491539

4683	12/750m	0	0	89,627947	297095,035	767,325	200,38479	11022,254	0	0
4684	12/750m	0	0	896,2795	2970950,46	7673,2503	2003,8479	110222,54	3,52303879	0
4685	12/750m	0	2,073	42708,583	141565715	365630,18	95483,304	5252101,4	167,87271	35,474133
4688	12/750m	0	12,2	251439,01	833397832	2152466,1	562110,53	30919138	988,267198	208,83634
4689	12/750m	0	6,85	141134,39	467788995	1208186,4	315514,52	17355016	554,717689	117,22054
Gesamt		6,05	485	1,17E+07	3,02E+10	9,04E+07	3,72E+08	1,26E+09	4,00E+04	8,56E+03

Tabelle 13: Americium Quellen

Am/Quelle

			237Np	241Am
10725	12/750m	GKSS	1,12E+02	5,50E+07
10728	12/750m		7,45E+02	366314334,5
11118	12/750m	GSFNh	3,48E+02	183278644,6
11130	12/750m		7,00E+01	3,67E+07
Gesamt			1,28E+03	6,41E+08

Tabelle: 14 Neptunium Quelle

Np/Quelle

			237Np
11152	12/750m	GSFNh	3,70E+07
Gesamt			3,70E+07

Die Deklaration von ausschließlich 237Np ist unplausibel; Herkunft und Aktivität dieser reinen ²³⁷Np-Quelle müssen daher überprüft werden.

In der Tabelle 15, sind die vorgeschlagenen Ergebnisse der AVR's Grafitkugeln gesammelt. Die Ergebnisse der Beta-gammastrahler von Jülich sind durch die jüngsten französischen Ergebnisse verbessert.

Tabelle: 15 Grafitkugeln der AVR Jülich

ChargenNr	H-3	Be-10	C-14	Al-26	Cl-36	Ca-41	Mn-54	Fe-55	Co-60	Ni-59	Ni-63
6930	2,14E+11	0	2,16E+11	0	1,79E+09	2,40E+09	4E+07	9,99E+09	5,0799E+10	6,42E+06	4,942E+10
6955	7,14E+10	0	7,20E+10	0	4,50E+08	5,10E+07	1E+07	2,45E+09	1,2636E+10	1,62E+06	1,247E+10
6963	7,14E+10	0	7,20E+10	0	6,00E+08	8,80E+07	1E+07	3,5E+09	1,8104E+10	2,33E+06	1,795E+10
6988	2,14E+11	0	2,16E+11	0	2,30E+09	3,10E+09	5E+07	1,23E+10	6,4221E+10	8,36E+06	6,43E+10
6990	1,43E+11	0	1,44E+11	0	4,60E+08	6,20E+08	9E+06	2,4E+09	1,2546E+10	1,63E+06	1,256E+10
6998	7,14E+10	0	7,20E+10	0	5,70E+08	7,70E+07	1E+07	2,95E+09	1,5526E+10	2,03E+06	1,564E+10
6999	7,14E+10	0	7,20E+10	0	7,60E+08	1,00E+08	1E+07	3,95E+09	2,0767E+10	2,72E+06	2,093E+10
7026	7,14E+10	0	7,20E+10	0	7,80E+08	1,00E+08	1E+07	4E+09	2,1207E+10	2,80E+06	2,152E+10
7029	2,14E+11	0	2,16E+11	0	1,52E+10	2,00E+09	3E+07	7,76E+09	4,1176E+10	5,44E+06	4,183E+10
7034	7,14E+10	0	7,20E+10	0	3,90E+08	5,30E+07	7E+06	1,99E+09	1,0617E+10	1,41E+06	1,085E+10
7035	7,14E+10	0	7,20E+10	0	3,90E+08	5,40E+07	7E+06	2,01E+09	1,0715E+10	1,42E+06	1,095E+10
7036	7,14E+10	0	7,20E+10	0	3,80E+08	5,20E+07	7E+06	1,92E+09	1,0228E+10	1,36E+06	1,045E+10
7037	7,14E+10	0	7,20E+10	0	2,80E+08	3,80E+07	5E+06	1,41E+09	7500205622	9,97E+05	7,667E+09
7066	7,14E+10	0	7,20E+10	0	8,00E+09	1,10E+07	1E+07	3,85E+09	2,0956E+10	2,84E+06	2,188E+10
7109	7,14E+10	0	7,20E+10	0	8,10E+08	1,10E+07	1E+07	3,76E+09	2,0889E+10	2,87E+06	2,225E+10
7110	7,14E+10	0	7,20E+10	0	7,70E+08	1,10E+07	1E+07	3,59E+09	1,9956E+10	2,76E+06	2,126E+10
7111	7,14E+10	0	7,20E+10	0	8,10E+08	1,10E+07	1E+07	3,76E+09	2,0889E+10	2,87E+06	2,225E+10
7112	7,14E+10	0	7,20E+10	0	5,00E+08	1,10E+07	1E+07	3,73E+09	2,0702E+10	2,86E+06	2,205E+10
7113	7,14E+10	0	7,20E+10	0	7,70E+08	1,10E+07	1E+07	3,57E+09	1,9863E+10	2,75E+06	2,116E+10
7114	7,14E+10	0	7,20E+10	0	7,70E+08	1,10E+07	1E+07	3,57E+09	1,9863E+10	2,75E+06	2,116E+10
7115	7,14E+10	0	7,20E+10	0	8,10E+08	1,10E+07	1E+07	3,76E+09	2,0889E+10	2,87E+06	2,225E+10
7116	7,14E+10	0	7,20E+10	0	7,70E+08	1,10E+07	1E+07	3,59E+09	1,9956E+10	2,76E+06	2,126E+10
7117	7,14E+10	0	7,20E+10	0	7,50E+08	1,10E+07	1E+07	3,47E+09	1,9303E+10	2,67E+06	2,056E+10
7118	7,14E+10	0	7,20E+10	0	7,60E+08	1,10E+07	1E+07	3,54E+09	1,9676E+10	2,72E+06	2,096E+10
7119	7,14E+10	0	7,20E+10	0	7,50E+08	1,10E+07	1E+07	3,47E+09	1,9341E+10	2,69E+06	2,066E+10
7120	7,14E+10	0	7,20E+10	0	7,90E+08	1,10E+07	1E+07	3,64E+09	2,0271E+10	2,81E+06	2,165E+10
7121	7,14E+10	0	7,20E+10	0	8,00E+08	1,10E+07	1E+07	3,67E+09	2,0457E+10	2,84E+06	2,185E+10
7122	7,14E+10	0	7,20E+10	0	7,80E+08	1,10E+07	1E+07	3,6E+09	2,0085E+10	2,79E+06	2,145E+10
7123	7,14E+10	0	7,20E+10	0	8,00E+08	1,10E+07	1E+07	3,67E+09	2,0457E+10	2,84E+06	2,185E+10
7124	7,14E+10	0	7,20E+10	0	8,00E+08	1,10E+07	1E+07	3,65E+09	2,0364E+10	2,83E+06	2,175E+10
7125	7,14E+10	0	7,20E+10	0	8,10E+08	1,10E+07	1E+07	3,74E+09	2,0829E+10	2,87E+06	2,225E+10
7126	7,14E+10	0	7,20E+10	0	8,00E+08	1,10E+07	1E+07	3,64E+09	2,0271E+10	2,81E+06	2,165E+10
7127	7,14E+10	0	7,20E+10	0	7,40E+08	1,10E+07	1E+07	3,44E+09	1,9155E+10	2,66E+06	2,046E+10
7128	7,14E+10	0	7,20E+10	0	8,00E+08	1,10E+07	1E+07	3,7E+09	2,0643E+10	2,87E+06	2,205E+10
	3,57E+12		2,95E+12		4,77E+10	8,96E+09	4E+08	1,33E+11	7,2085E+11	9,73E+07	7,492E+11

Tabelle: 15 Grafitkugeln Jülich (Fortsetzung)

Sb-125	I-129	Cs-134	Cs-135	Cs-137	Ba-133	Pm-147	Sm-151	Eu-152	Eu-154
8,87E+08	5,60E+05	4,44E+08	1,16E+05	1,64E+10	8,70E+09	0	0	9,65E+06	3,90E+09
2,18E+08	1,40E+05	1,08E+08	2,93E+04	4,14E+09	2,90E+09	0	0	2,42E+05	1,00E+08
3,1E+08	2,10E+05	1,53E+08	4,22E+04	5,95E+09	2,90E+09	0	0	3,48E+06	1,40E+09
1,09E+09	7,40E+05	5,35E+08	1,51E+05	2,13E+10	8,70E+09	0	0	1,21E+07	5,00E+09
2,13E+08	1,44E+05	1,05E+08	2,95E+04	4,16E+09	5,80E+09	0	0	2,43E+06	1,00E+09
2,62E+08	1,80E+05	1,28E+08	3,68E+04	5,18E+09	2,90E+09	0	0	3,02E+06	1,20E+09
3,5E+08	2,40E+05	1,71E+08	4,91E+04	6,92E+09	2,90E+09	0	0	4,03E+06	1,60E+09
3,55E+08	2,50E+05	1,73E+08	5,05E+04	7,11E+09	2,90E+09	0	0	4,13E+06	1,65E+09
6,89E+08	4,80E+05	3,35E+08	9,80E+04	1,38E+10	8,70E+09	0	0	8,04E+06	3,20E+09
1,77E+08	1,25E+05	85533132	2,54E+04	3,58E+09	2,90E+09	0	0	2,08E+06	8,50E+08
1,78E+08	1,25E+05	86317838	2,57E+04	3,62E+09	2,90E+09	0	0	2,10E+06	8,50E+08
1,7E+08	1,20E+05	82394295	2,45E+04	3,45E+09	2,90E+09	0	0	2,00E+06	8,00E+08
1,25E+08	8,90E+04	60422484	1,80E+04	2,53E+09	2,90E+09	0	0	1,47E+06	6,00E+08
3,42E+08	2,50E+05	1,63E+08	5,12E+04	7,21E+09	2,90E+09	0	0	4,16E+06	1,65E+09
3,34E+08	2,60E+05	1,57E+08	5,19E+04	7,31E+09	2,90E+09	0	0	4,20E+06	1,65E+09
3,19E+08	2,50E+05	1,5E+08	4,96E+04	6,98E+09	2,90E+09	0	0	4,02E+06	1,60E+09
3,34E+08	2,60E+05	1,57E+08	5,19E+04	7,31E+09	2,90E+09	0	0	4,42E+06	1,65E+09
3,31E+08	2,50E+05	1,56E+08	5,14E+04	7,24E+09	2,90E+09	0	0	4,17E+06	1,65E+09
3,18E+08	2,40E+05	1,5E+08	4,93E+04	6,95E+09	2,90E+09	0	0	4,00E+06	1,60E+09
3,18E+08	2,40E+05	1,5E+08	4,93E+04	6,95E+09	2,90E+09	0	0	4,00E+06	1,80E+09
3,34E+08	2,60E+05	1,57E+08	5,19E+04	7,31E+09	2,90E+09	0	0	4,22E+06	1,65E+09
3,19E+08	2,40E+05	1,5E+08	4,96E+04	6,98E+09	2,90E+09	0	0	4,02E+06	1,60E+09
3,09E+08	2,40E+05	1,45E+08	4,80E+04	6,75E+09	2,90E+09	0	0	3,86E+06	1,55E+09
3,15E+08	2,40E+05	1,48E+08	4,89E+04	6,89E+09	2,90E+09	0	0	3,97E+06	1,55E+09
3,09E+08	2,40E+05	1,45E+08	4,81E+04	6,78E+09	2,90E+09	0	0	3,92E+06	1,55E+09
3,23E+08	2,50E+05	1,52E+08	5,05E+04	7,11E+09	2,90E+09	0	0	4,09E+06	1,60E+09
3,26E+08	2,50E+05	1,53E+08	5,10E+04	7,18E+09	2,90E+09	0	0	4,13E+06	1,65E+09
3,2E+08	2,50E+05	1,51E+08	5,00E+04	7,04E+09	2,90E+09	0	0	4,05E+06	1,60E+09
3,26E+08	2,50E+05	1,53E+08	5,10E+04	7,18E+09	2,90E+09	0	0	4,13E+06	1,65E+09
3,25E+08	2,50E+05	1,53E+08	5,25E+04	7,14E+09	2,90E+09	0	0	4,11E+06	1,65E+09
3,32E+08	2,60E+05	1,56E+08	5,19E+04	7,31E+09	2,90E+09	0	0	4,20E+06	1,65E+09
3,23E+08	2,50E+05	1,52E+08	5,05E+04	7,11E+09	2,90E+09	0	0	4,09E+06	1,60E+09
3,06E+08	2,40E+05	1,44E+08	4,77E+04	6,72E+09	2,90E+09	0	0	3,86E+06	1,55E+09
3,29E+08	2,50E+05	1,55E+08	5,14E+04	7,24E+09	2,90E+09	0	0	4,16E+06	1,65E+09
1,18E+10	8,37E+06	5,66E+09	1,75E+06	2,47E+11	1,19E+11			1,37E+08	5,63E+10

Das Modell (CD) gibt für jeden Ablieferer eine Klassifikation der Abfälle und das Inventar der Assekat 9.2. In diesem Modell könnten die Verbesserungen eingefügt werden. Das Beispiel zeigt die Modellvorstellung für Grafitkugeln.

ANLAGE: 3

Beispiele für Konditionierungsschwierigkeiten der Abfälle der Kammer 12

1. Flüssigabfälle, getrocknet (60 m³ bzw. 55 t)

1.1. Filterhilfsmittel (41 m³ bzw. 28 t)

- Eine Trennung zwischen Abfall, Behältermaterial und Salz wird schwierig sein. Die Filterrückstände enthalten wasserlösliche Substanzen, darunter auch Radionuklide in wasserlöslicher Form, die zusammen mit anhaftendem Salz in Lösung gebracht werden können, wenn die Trägerstoffe Kieselgur oder Polystyrol im Rahmen einer Trennung vom Behältermaterial abgewaschen werden.
- Eine Trocknung der Abfälle kann zu einer Freisetzung flüchtiger Radionuklide (e. g. ³H) und von Abbauprodukten oder niedrig siedenden Bestandteilen der enthaltenen organischen Öle über den Gaspfad führen.
- Eine Verfestigung der Abfälle ist nur möglich wenn die anhaftenden Salze abgetrennt und die Abfälle getrocknet sind.
- Das Abfallvolumen wird sich durch die Konditionierung vergrößern.
- Abgetrennte alte Abfallbehälter und Behälterdeckel (etwa 250 Stück) können nach erfolgter Trocknung kompaktiert werden.

1.2. Harze (2 m³ bzw. 2 t)

- Ionentauscherharze sind zum Teil wahrscheinlich mit Natrium gesättigt, bei Kontakt mit Salzlauge ist davon auszugehen, dass ursprünglich in den Harzen zurückgehaltene Radionuklide und chemotoxische Stoffe ausgelaugt und in den Salzgrus migriert sind.
- Die Trennung von Abfällen und Salz mit dem Ziel der Volumenreduktion ist wegen der zu befürchtenden Auslaugung der enthaltenen Radionuklid und Schadstoffe nicht zielführend.
- Die Trocknung führt zur Freisetzung flüchtiger Nuklide und chemotoxischer Stoffe über den Gaspfad.
- Die Verfestigung der Abfälle ist aufgrund des zu erwartenden Salzgehaltes nur mit einer großen Verdünnung möglich. Zusammen mit dem nicht abtrennbaren Salzanteil wird dies das Abfallvolumen für diese Abfälle von ursprünglich 2 m³ auf etwa 10 - 12 m³ vergrößern.
- Abgetrennte alte Abfallbehälter und Behälterdeckel können nach erfolgter Trocknung kompaktiert werden.

1.3. Verdampferkonzentrate (DWR: 16 m³ bzw. 23 t; SWR: 1 m³ bzw. 2 t)

- Wenn die Behälter den Deckel verloren haben oder verrostet sind, ist ein Teil der Abfälle in den Salzgrus migriert, es wird dann eine Salz-Abfall Mischung zu behandeln sein.
- Eine Trennung von Abfällen und Salz ist nicht möglich, lediglich die Behälter und Behälterdeckel können separiert werden.
- Die Trocknung führt zur Freisetzung flüchtiger Nuklide und chemotoxischer Stoffe über den Gaspfad.
- Die Verfestigung der Mischung ist nur mit einer großen Verdünnung möglich, dabei müssen Komplexbildner und Borsäure vor der Verfestigung durch entsprechende Chemikalien neutralisiert werden.

ANLAGE: 4

Bilanz für die Rückholung und Umlagerung der Kammer 12

Abschätzung für die drei Abfalltypen

Typ Masse: m³	Flüssig getrocknet	Flüssig verfestigt	Feste konditioniert	Feste unkonditioniert	Verbrennungs- rückstände	Gesamt
Gebinde	150	120	850	950	30	2100
Mischung Salz-Abfall	120-180	60-80	380-400	400-500	20-45	980 1205
Kontaminiertes Salz	200-300	50-80	400-500	430-500	15-20	1095 1400
Gesamt	470-630	230-260	1630-1750	1780-1950	65-95	4175- 4685

Die Bilanz für eine neue Lagerung (Rückholung) kann man folgendermaßen abschätzen:

Neue konditionierte Abfälle: **2500 -2800 m³ ohne Abschätzung der sekundären Abfälle**

Mischung Salz-Abfall (in der Asse): **2500 m³ in Salzbeton**

Kontaminiertes Salz (in der Asse): **6000 m³ in Salzbeton**

Die Bilanz für die Umlagerung in der Schachtanlage Asse kann man folgendermaßen abschätzen:

Neue Lagerung der beschädigten Abfälle in Salzbeton: **3000 – 3500 m³**

Neue Lagerung der beschädigten Abfälle –mit der Mischung Abfall-Salz: **4000 -5000 m³**

Lagerung des kontaminierten Salz in Salzbeton: **6000 m³**

ANLAGE: 5

Beispiel für Modellrechnungen für die flüssigen Abfälle (1)

1) Filterhilfsmittel: 41 m³; 28 Tonnen (80 m³ Gebinde)

Abschätzung: 30 % in der Überflussmasse: 40-80 m³ (Mischung Salz-Abfälle)

5 % in dem Salz: 65 – 130 m³ (kontaminiertes Salz mit löslichen Stoffen)

- **Chemische Stoffe in der Überflussmasse**

60 m³ mit 30 % Abfällen:	Kieselgur:	3000 kg	53 kg/m ³
	Öle:	990 kg	16 kg/m ³
	Polystyrol:	1900 kg	32 kg/m ³
	Salze:	1220 kg	20 kg/m ³
	Wasser:	5000 kg	80 -100 kg/m ³

- **Chemische Stoffe in dem kontaminierten Salz**

100 m³ mit 5% löslichen Stoffen:	Öle:	165 kg	1,6kg/m ³
	Salze:	200 kg	2 kg/m ³
	Wasser:	5000 kg	30-50 kg/m ³

- **Nuklide in der Überflussmasse**

60 m³ mit 30 % der Nuklide (Erhöhung von 10 % für ³H (Auslaugung von dem Fass))

³H ist nicht im Inventar für diesen Abfalltyp

¹⁰Be ist auch nicht in diesem Inventar

Spektrum:	30 %:	⁶⁰ Co
	25 %:	⁶³ Ni
	5%:	⁹⁰ Sr
	1 %:	^{110m} Ag
	2 %:	¹²⁵ Sb

35 %: ^{137}Cs

2%: Verschiedenes: ^3H , ^{10}Be , ^{14}C , ^{36}Cl , ^{79}Se , ^{129}I
und Alphastrahler

- **Nuklide in dem kontaminiertem Salz** (Siehe: Zusammenfassung der Auslaugung der Nuklide in der Kammer 12)

100 m³ mit den ausgelaugten Nukliden mit 20-30 Jahre Auslaugung

Auslaugungsrate: ^3H : $2 \cdot 10^{-2}$ /Jahr

^{137}Cs , ^{14}C , ^{36}Cl , ^{79}Se , ^{129}I : $4 \cdot 10^{-5}$ /Jahr

^{60}Co , ^{63}Ni , ^{90}Sr , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{125}Sb : $8 \cdot 10^{-6}$ /Jahr

Alpha: $1 \cdot 10^{-8}$ /Jahr

- **Masse für Umlagerung oder Rückholung**

- Beschädigte Abfälle: **80 m³**
- Mischung Salz-Abfälle: **40-80 m³**
- Kontaminiertes Salz: **65-130 m³** **Gesamt: 185-290 m³**
(Mittelwert: 250 m³)

2) Harze:

2 m³ - 2225 kg (Herkunft nicht angegeben; ich vermute KKW und WAK -MA)

4-5 m³ (Gebinde)

Abschätzung:

Wegen des hohen Wassergehalts und der Flüssigkeit der Harze, kann man erwarten, dass die Fässer zerdrückt und verrostet sind.

50 % der Abfälle in der Überflussmasse: 5 m³ (Mischung Salz-Abfälle)

10 % der Abfälle in dem Salz: 2 m³ (kontaminiertes Salz mit löslichen Stoffen)

- **Chemische Stoffe in der Überflussmasse**

5 m ³ mit 50 % der Abfälle :	EDTA:	4,5 kg	1kg/m ³
	Fe-Oxyde:	234 kg	47 kg/m ³
	Polystyrol:	510 kg	100 kg/m ³
	Wasser:	1000 kg	200 kg/m ³

- **Chemische Stoffe in dem kontaminiertem Salz**

2 m ³ mit 10 % lösliche Stoffe :	EDTA:	1 kg	0,5 kg/m ³
	Fe-Salz:	40 kg	20 kg/m ³
	Wasser:	200 kg	100 kg/m ³

- **Nuklide in der Überflussmasse:** (keine Abschätzung möglich)

- **Nuklide in dem kontaminiertem Salz**

Nach Messungen durch BS am 29.08.2008 für eine Salzprobe der Laugestelle der Kammer 12 sind erste Abschätzungen möglich.

Die Ergebnisse sind die folgende:

¹³⁷ Cs:	4,2.10 ⁵ Bq/Kg
⁶⁰ Co:	4,8 Bq/Kg
⁹⁰ Sr:	1,0 Bq/Kg
⁹⁹ Tc:	8 Bq/Kg

Die Alphanuklide sowie: ³H, ¹⁴C, ³⁶Cl, ¹²⁹J, wurden nicht gemessen

Das kontaminierte Salz muss konditioniert werden. Dabei sind drei wesentliche Probleme zu berücksichtigen:

Trocknung mit dem Risiko flüchtiger Radionuklide: ³H, ¹⁴C, ³⁶Cl, ¹²⁹J und flüchtiger chemotoxischer Stoffe

Konditionierung und Behälter (Korrosion)

Endlagerung salzhaltiger Abfälle in Schacht Konrad .

Dankesworte:

Ein spezieller Dank wird an Herrn Stefan ALT, Öko-Institut Darmstadt, ausgesprochen. Seine Hilfe für die Abbildungen, Ergänzungen und Textverbesserungen war wertvoll.