

Informationsveranstaltung des GSF - FB Asse am 24.10.2002 in Remlingen

Vortrag

Das Radionuklidinventar in der Schachtanlage Asse

H. Meyer

Einleitung

Im Rahmen von Forschungs- und Entwicklungsvorhaben wurden in den Jahren von 1967 bis 1978 über sechs Einlagerungsphasen insgesamt ca. 126.000 Gebinde mit schwach- und mittelradioaktiven Abfällen in ehemalige Abbaukammern der Schachtanlage Asse eingelagert. Die Einlagerung erfolgte auf der Grundlage der erteilten Umgangsgenehmigungen und unter Beachtung der jeweils gültigen Bedingungen über die Einlagerung von radioaktiven Abfällen in die Schachtanlage Asse.

Bis Juli 1971 wurden schwachradioaktive Abfälle (LAW) in geringer Anzahl und Gesamtaktivität über die ersten vier Einlagerungsphasen eingelagert. Angaben über die in dieser Zeit eingelagerten Abfälle sind in Standardfragebögen dokumentiert, die vom jeweiligen Ablieferer vor der Anlieferung der Abfälle ausgefüllt wurden. Ab November 1971 erfolgte die Einlagerung der LAW-Gebinde im technischen Maßstab nach den jeweils gültigen Annahmebedingungen. Die Einlagerung der mittelradioaktiven Abfälle (MAW) erfolgte nach den Annahmebedingungen von September 1972. Nuklidspezifische Aktivitätsangaben, mit Ausnahme der Kernbrennstoffe und einiger weniger Alpha-Strahler, wurden damals nicht für notwendig angesehen und deshalb auch nicht von den Ablieferern abgefordert.

Im Rahmen der Schließung der Schachtanlage Asse ist aus der vorliegenden Dokumentation und dem bekannten Gesamtaktivitätsinventar ein nuklidspezifisches Aktivitätsinventar je Einlagerungskammer ermittelt worden, das für den Nachweis der Langzeitsicherheit der Schachtanlage Asse herangezogen werden kann. Die Bearbeitung dieser Aufgabe erfolgte in zwei Schritten. Im ersten Schritt wurden alle vorliegenden Informationen über die eingelagerten Abfälle in einer Datenbank erfasst. Im zweiten Schritt wurden aus den Daten typische Abfallströme ermittelt und mit entsprechenden Nuklidvektoren verknüpft. Während das erste Arbeitspaket am FB Asse bearbeitet wurde, erfolgte die Bestimmung des nuklidspezifischen Aktivitätsinventars durch das GSF-Institut für Strahlenschutz in München.

Erstellung einer Datenbank über eingelagerte Abfälle

Das Ziel war, eine Datenbank zu erstellen, die möglichst viele auswertbare Angaben aus den vorliegenden Dokumenten über die eingelagerten Abfälle enthält. Um die Vielzahl der Informationen richtig einzuordnen, war eine systematische Sichtung der papiergebundenen Einlagerungsdokumente unumgänglich. Die hierbei festgestellten Abfallmerkmale prägen maßgeblich die Struktur der Datenbank. Die umfangreichsten Informationen über die eingelagerten radioaktiven Abfälle liefern die schriftlichen Antworten zu den Fragebögen und den Begleitlisten. Allgemeine Anforderungen bzw. Informationen über eingelagerte Abfälle können aus den Annahmebedingungen entnommen werden.

In der Zeit von April 1967 bis Juli 1971 (Einlagerungsphasen I bis IV) erfolgte die Dokumentation der eingelagerten radioaktiven Abfälle durch schriftliche Beantwortung der Fragebögen. Aufbauend auf den Erfahrungen der Einlagerungsphasen I bis IV wurden in Abstimmung mit den Behörden und Forschungseinrichtungen Annahmebedingungen für die Einlagerung radioaktiver Abfälle in der Schachtanlage Asse erarbeitet. Für LAW- und MAW-Abfälle traten diese Bedingungen erstmalig im Juli 1971 bzw. September 1972 in Kraft. Wesentlicher Bestandteil der Annahmebedingungen sind die jeweiligen Begleitlisten, welche die bis dahin verwendeten Fragebögen ersetzen. Im Anhang A, Abbildung 1, ist beispielhaft eine Begleitliste für schwachradioaktive Abfälle dargestellt.

Bei der Datenübernahme wurden Abfälle gleicher Art, verpackt in Behältern eines Typs, als Charge zusammengefasst. Die allgemeinen Daten der Begleitliste wurden einmalig pro Begleitliste, chargenspezifische Daten für jede Charge getrennt in Tabellen übernommen. Über Beziehungen verschiedener Art können die Datensätze der Tabellen miteinander verknüpft werden. Die Zuordnung der Daten zu den Einlagerungsdokumenten bleibt dadurch erhalten. Im Anhang A, Abbildung 2, ist beispielhaft die Beziehung der Tabellen der Datenbank dargestellt. Durch die Kombination bereits erfasster Daten können durch Auswertungen neue Abfallmerkmale oder modifizierte Daten entstehen. Da einerseits die Ursprungsdaten erhalten bleiben müssen, andererseits für bestimmte Berechnungen ausschließlich modifizierte Daten verwendet werden sollen, wurde festgelegt, dass die Ursprungsdaten und die modifizierten Daten in getrennten Tabellen zu erfassen sind.

Überprüfung des Datenbestandes der Datenbank

Nachdem die Eingabe der Daten aus den Einlagerungsdokumenten abgeschlossen war, wurden Maßnahmen zur Verifikation des Datenbestandes durchgeführt. Die Suche von Übertragungsfehlern und Plausibilitätsprüfungen der Datensätze bildeten dabei den Schwerpunkt. Des Weiteren erfolgte eine Überprüfung der eingegebenen Daten durch den Vergleich mit den früher ermittelten Angaben der GSF. Zu diesem Zweck wurden die Statistiken der früheren Jahre mit den Auswertungen der Datenbank verglichen. Aus der Tabelle 1 können die Ergebnisse des Vergleichs hinsichtlich der eingelagerten Gebinde entnommen werden.

Tabelle 1: Vergleich der früheren Daten über eingelagerte Gebinde mit den Ergebnissen der Datenbank

Abfälle	Frühere Angaben [Stück]	Datenbankauswertung [Stück]
LAW	124.497	124.494
MAW	1.293	1.293
Summe	125.790	125.787

Die Summe der aus der Datenbank ermittelten Gebinde liegt um drei niedriger als die früheren Angaben der GSF. Diese Differenz lässt sich auf betreibereigene Bilanzierungsfehler während der Einlagerungszeit zurückführen.

Eine weitere Methode der Überprüfung bot sich durch den Vergleich der ermittelten Aktivitäten. Die Ergebnisse des Vergleichs sind in der Tabelle 2 dargestellt.

Tabelle 2: Vergleich der ermittelten Aktivitäten zum Zeitpunkt der Einlagerung

Abfälle	Frühere Angaben [Curie]	Datenbankauswertung [Curie]
LAW	72.590	75.189
MAW	134.053	136.181
Summe	206.643	211.370

Die höheren Ergebnisse der Datenbank gegenüber den früher ermittelten Aktivitäten sind darauf zurückzuführen, dass z. B. bei Unstimmigkeiten bei der Dateneingabe stets abdeckende Werte übernommen wurden.

Bestimmung des Nuklidinventars

Da im Rahmen der Schließung der Schachanlage Asse der Nachweis der Langzeitsicherheit der eingelagerten radioaktiven Abfälle zu erbringen ist, wurde hinsichtlich der Ermittlung des Nuklidinventars eine umfassende Nacherhebung durchgeführt. Neben der Erstellung eines Programms zur Auswertung des Datenbestandes durch das GSF – Institut für Strahlenschutz in München wurden Recherchen bei den Abfallablieferern, Literaturrecherchen, Plausibilitäts- und Vollständigkeitsprüfungen der Eingangsdaten durchgeführt und diese Zusatzinformationen in die Datenbank und das Auswerteprogramm eingebunden. Aus den ersten orientierenden Auswertungen des Datenbestandes über eingelagerte radioaktive Abfälle konnten die wichtigsten Abfallströme und deren Herkunft identifiziert werden. Die Tabelle 3 gibt einen Überblick über die Ablieferer (Abfallherkunft) der eingelagerten Abfallgebinde und deklarierte Gesamtaktivität.

Tabelle 3: Prozentuale Aufteilung der eingelagerten Abfallgebinde hinsichtlich der Anzahl und Aktivität auf die Ablieferer (Abfallherkunft)

Ablieferer (Abfallherkunft)	Abfallgebinde [%]	Gesamtaktivität [%]
Forschungszentrum Karlsruhe	50	90
Forschungszentrum Jülich	10	2
Kernkraftwerke	20	3
Übrige Ablieferer	20	5
Summe	100	100

Insgesamt wurden in der Schachanlage Asse von 1967 bis 1978 124.494 Gebinde mit schwach- und 1.293 Gebinde mit mittelfradioaktiven Abfällen mit einer von den Ablieferern deklarierten Gesamtaktivität (zum Zeitpunkt der Einlagerung) von $7,8E+15$ Bq eingelagert.

Die eingelagerten schwach- und mittelradioaktiven Gebinde können entsprechend ihrer Anzahl und Gesamtaktivität aus der Tabelle 4 entnommen werden.

Tabelle 4: Prozentuale Aufteilung der eingelagerten Abfälle nach MAW und LAW zum Zeitpunkt der Einlagerung

Abfälle	Abfallgebilde [%]	Gesamtaktivität [%]
LAW	99	36
MAW	1	64
Summe	100	100

Die schwachradioaktiven Abfälle wurden überwiegend in Fässern mit Volumina zwischen 100 und 400 Litern verpackt oder in verlorenen Betonabschirmungen (VBA) aus Normal- oder Schwerbeton eingelagert. Zur Einlagerung mittelradioaktiver Abfälle wurden nur standardisierte 200-l-Fässer verwendet.

Die eingelagerten Abfallgebilde enthalten vor allem verfestigte oder getrocknete ehemals wasserhaltige Abfälle, wie z. B. Verdampferkonzentrate, Filterrückstände, Schlämme, Ionenaustauscherharze, weiterhin feste Abfälle, wie Schrott, Bauschutt und Mischabfälle. Bei den mittelradioaktiven Abfällen wurden neben Schrott nur Filter und verfestigte ehemals wasserhaltige Abfälle eingelagert. Die prozentuale Verteilung der eingelagerten Abfallgebilde (Anzahl der Gebinde) auf die unterschiedlichen Abfallarten ist getrennt nach LAW und MAW aus der Tabelle 5 zu entnehmen.

Tabelle 5: Prozentuale Aufteilung der Abfallgebilde auf die unterschiedlichen Abfallarten nach LAW und MAW

Abfallart	LAW-Gebinde [%]	MAW-Gebinde [%]
Filter, Filterhilfsmittel, Schlämme, Verdampfer- konzentrate, Harze, ...	30	35
Metalle, Schrott, Eisen, Blech, Strukturteile, Rohre, ...	20	65
Bauschutt, Kies, Bodenbelag, ...	10	-
Mischabfall, Papier, Folien, Overalls, Überschuhe, Putzlappen, Holz, Glas, ...	40	-
Summe	100	100

Aus den ermittelten Abfallströmen der jeweiligen Abfalllieferer und deren Verknüpfung mit typischen Nuklidvektoren konnte ein belastbares Nuklidinventar bestimmt werden.

Für eine realistische Ermittlung des Radionuklidinventars sind u. a. auch Aussagen über die Unsicherheiten der von den Ablieferern deklarierten Aktivitäts- und Masseangaben zu treffen. Hierzu wurden die möglichen Schwankungsbreiten bei den Aktivitätsangaben der Ablieferer

abgeschätzt. Aus den durchgeführten Recherchen und Befragungen kann davon ausgegangen werden, dass die damals von den Ablieferern deklarierten Aktivitäten in den Einlagerungsdokumenten aus praktischen Erwägungen überwiegend zu hoch angesetzt worden sind. Aus diesen Angaben war es jedoch möglich, ein für den Nachweis der Langzeitsicherheit erforderliches Aktivitätsinventar zu ermitteln.

Die Ermittlung der aktuellen Aktivitäten erfolgte für den Stichtag 01.01.2002. Dabei wurden neben der Aktivitätsabnahme durch den radioaktiven Zerfall auch der Aktivitätsaufbau von Nukliden aus Vorläufernukliden seit dem Zeitpunkt der Einlagerung berücksichtigt. Zum v. g. Stichtag errechnete sich für das abdeckende Inventar eine Gesamtaktivität von $3,1E+15$ Bq. Diese Aktivität verteilt sich zu ca. 40 % auf die MAW-Kammer und zu ca. 60 % auf die LAW-Kammern. In der Tabelle 6 ist das Inventar der relevanten Nuklide dargestellt. Zur besseren Übersicht wird das Inventar der Nuklide getrennt nach den eingelagerten LAW-, MAW- und Gesamtaktivitäten aufgeschlüsselt.

Tabelle 6: Aktivitäten relevanter Radionuklide der eingelagerten Abfälle (Stichtag: 01.01.2002)

Radionuklid	Halbwertszeit [a]	Aktivität [Bq]		
		LAW	MAW	Gesamt
H-3	1,2E+01	9,2E+11	3,5E+11	1,3E+12
C-14	5,7E+03	3,6E+12	2,2E+11	3,9E+12
I-129	1,6E+07	2,0E+08	1,2E+08	3,2E+08
Ra-226	1,6E+03	2,0E+11	1,8E+02	2,0E+11
Th-232	1,4E+10	3,5E+11	1,2E+07	3,5E+11
U-235	7,0E+08	5,2E+10	1,9E+08	5,2E+10
U-236	2,3E+07	1,2E+10	7,7E+08	1,3E+10
U-238	4,5E+09	1,3E+12	1,9E+09	1,3E+12
Pu-239	2,4E+04	1,8E+13	1,0E+12	1,9E+13
Pu-241	1,4E+01	1,1E+15	4,5E+13	1,1E+15
α-Gesamt	-	1,7E+14	1,2E+13	1,8E+14
β/γ-Gesamt	-	1,7E+15	1,2E+15	2,9E+15

Die Abfälle des Forschungszentrums Karlsruhe stellen hinsichtlich der abgegebenen Aktivität und der Anzahl der Gebinde den Hauptanteil der eingelagerten Abfälle dar (s. Tab. 3). Die Datenlage bei diesen Abfällen, die praktisch alle aus der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe stammen, ist weitgehend einheitlich und konnte durch kampagnenspezifische Nuklidvektoren für Spalt- und Aktivierungsprodukte, Uran und Plutonium ergänzt und zur Aktivitätsberechnung herangezogen werden. Die Ermittlungen zum Aktivitätsinventar ergaben, dass die Spalt- und Aktivierungsprodukte größtenteils aus der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe stammen. Das in der Schachanlage Asse eingelagerte Plutonium stammt ebenfalls überwiegend aus dieser Anlage.

Kernkraftwerksabfälle tragen ebenfalls mit einer großen Anzahl von Gebinden zu den eingelagerten Abfällen bei. Hierbei handelt es sich um Abfälle von Siede- und Druckwasserreaktoren (SWR und DWR). Zur Ermittlung der Nuklidvektoren der Kernkraftwerksabfälle wurde

die Firma Gesellschaft für Nuklear-Service mbH, Essen, hinzugezogen. So konnten für die verschiedenen Reaktortypen und Abfallgruppen Nuklidvektoren ermittelt werden, die der Aktivitätsberechnung zu Grunde liegen.

Die Auswertung der Abfälle des Forschungszentrums Jülich und der übrigen Ablieferer erfolgte unter Berücksichtigung abliefererspezifischer Informationen oder mit Nuklidvektoren für unterschiedliche Abfallströme.

Bei der Berechnung des Radionuklidinventars wurden alle verfügbaren Einlagerungsdokumente des FB Asse berücksichtigt und Informationen der relevanten Abfallablieferer hinzugezogen.

Aus dem ermittelten abdeckenden Aktivitätsinventar wurden die eingelagerten Gesamtmassen an Uran, Thorium und Plutonium berechnet. Diese betragen zum v. g. Stichtag für Uran 102 t, für Thorium 87 t und für Plutonium 11,6 kg. Diese Massen resultieren aus allen eingelagerten Abfallgebinden, die sich auf insgesamt dreizehn Einlagerungskammern verteilen. Das so ermittelte Aktivitätsinventar dient als Grundlage für die zum Nachweis der Langzeitsicherheit erforderlichen Ausbreitungsrechnungen.

Zusammenfassung

Im Rahmen der Schließung der Schachanlage Asse ist für den Nachweis der Langzeitsicherheit der eingelagerten radioaktiven Abfälle ein belastbares nuklidspezifisches Aktivitätsinventar erforderlich. Als Grundlage für die Ermittlung des Nuklidinventars dienen in erster Linie die vorhandenen papiergebundenen Dokumente und die bekannten Gesamtaktivitäten der eingelagerten radioaktiven Abfälle.

Zunächst wurde eine Sichtung und Beurteilung der vorhandenen Einlagerungsdokumente (schriftlichen Antworten zu Fragebögen und Begleitlisten sowie die Einlagerungsbedingungen) durchgeführt. Nachdem die Eingabe der Daten aus den Einlagerungsdokumenten abgeschlossen war, wurde der Datenbestand überprüft und mit den früher ermittelten Angaben der GSF verglichen. Der Vergleich zeigt, dass die Ergebnisse der Datenbank mit den früher ermittelten Angaben gut übereinstimmen. Die festgestellten geringfügigen Unterschiede sind vornehmlich auf die aus heutiger Sicht konservative Einschätzung der in die Datenbank eingegebenen Daten zurückzuführen.

Neben der Erstellung eines Programms zur Ermittlung des nuklidspezifischen Aktivitätsinventars wurden Recherchen bei den Abfallablieferern, Literaturrecherchen, Plausibilitäts- und Vollständigkeitsprüfungen der Eingangsdaten durchgeführt. Aus den bekannten Abfallströmen, Gesamtaktivitäten und deren Verknüpfung mit typischen Nuklidvektoren konnte ein belastbares Nuklidinventar bestimmt werden. Die Ermittlung der aktuellen Aktivitäten erfolgte für den Stichtag 01.01.2002. Dabei wurde neben der Aktivitätsabnahme durch den radioaktiven Zerfall auch der Aktivitätsaufbau von Nukliden aus Vorläufernukliden seit dem Zeitpunkt der Einlagerung berücksichtigt. Zum v. g. Stichtag errechnet sich für das abdeckende Inventar eine Gesamtaktivität von $3,1E+15$ Bq.

Anhang A

Begleitliste

Zur Lagerung schwachradioaktiver Abfälle im Salzbergwerk Asse in Remlingen der Gesellschaft für Strahlen- und Umweltschutz mbH - München

Transport Nr. **146**

Förms **2**

Zehn **6**

000596

107 372

weil - verbleibt bei der GSF
 mit - enthält Abfälle mit Aktivitätswerten unter
 10⁶ Bq - außer der Abfälle der Bestimmung nach Abfallgesetz

Lfd. Nr.	Art des Behälters (1)	Art des Behälters (2)	Gewicht (kg)	Stückzahl	Art der Substanz (3)	Beschreibung der Abfälle (4)	Masse und Art der radioaktiven Stoffe (5)	Mittlere Aktivität (Bq) (6)	Maximale Dosisleistung (mSv/h) (7)	in 1 m Abstand (8)
- A	F	C	< 5000	1	Schrott	bituminös	1980 g Pa	101	30	2
2-12	F	C	< 5000	1	Kontrollschicht	bituminös	40 g Pa, 100 g Ra, 100 g Th	5205	20	4
"	"	"	"	"	"	"	9968 kg U ₂₃₅	"	"	"
13-24	d	A	< 1250	1	Bauschutt	bituminös	"	9002	5	1
25-36	d	C	< 1250	1	Schrott	bituminös	"	9002	5	1
Position 2-12 enthält 0,968 g n. Pa / 2,882 g n. U ₂₃₅ / u. 0,968 kg U ₂₃₅										

Hiermit wird erklärt:

1. Die Bedingungen für die Lagerung schwachradioaktiver Abfälle im Salzbergwerk Asse der Gesellschaft für Strahlen- und Umweltschutz mbH - München sind eingehalten.

2. Die Beförderung erfolgt durch:

Rechtsge- Baugesellschaft
 Strahlenschutzbeauftragter: Stumpfenmann
 Anschrift des Abherrn: Kernforschungsanstalt
 75 Karlsruhe
 Abt: ADB

Telefon: 2158/2220 den 4.9.78
 i. A. Stumpfenmann
 Event. Rückfragen an: Boyer
Sachbearbeiter

Genehmigter Aktivitätsinhalt: 8.9.78

Basen für Vermerke der Gesellschaft für Strahlen- und Umweltschutz mbH - München

Die Übernahme der oben beschriebenen schwachradioaktiven Abfälle am 8.9.78 wird bestätigt.
 Gesellschaft für Strahlen- und Umweltschutz mbH
 Institut für Entsorgung - Technische Abteilung
 Salzschachtanlage Asse
 33102 Remlingen
 Remlingen, den 11.9.78
 i. A. Wolfe
Leiter

Abkürzungen:

1) Kennbuchstabe aus Ziff. 2 der Bedingungen
 2) Einteilung in Abfallkategorie A, B, C nach Anlage 1 der Bedingungen
 3) Einteilung für: Faser: 51251
 Betonstaub: 52311, 5501
 4) Einteilung in Dosisleistungskategorie 1, 2, 3, 4 nach Ziff. 3 der Bedingungen

Abbildung 1: Begleitliste für schwachradioaktive Abfälle

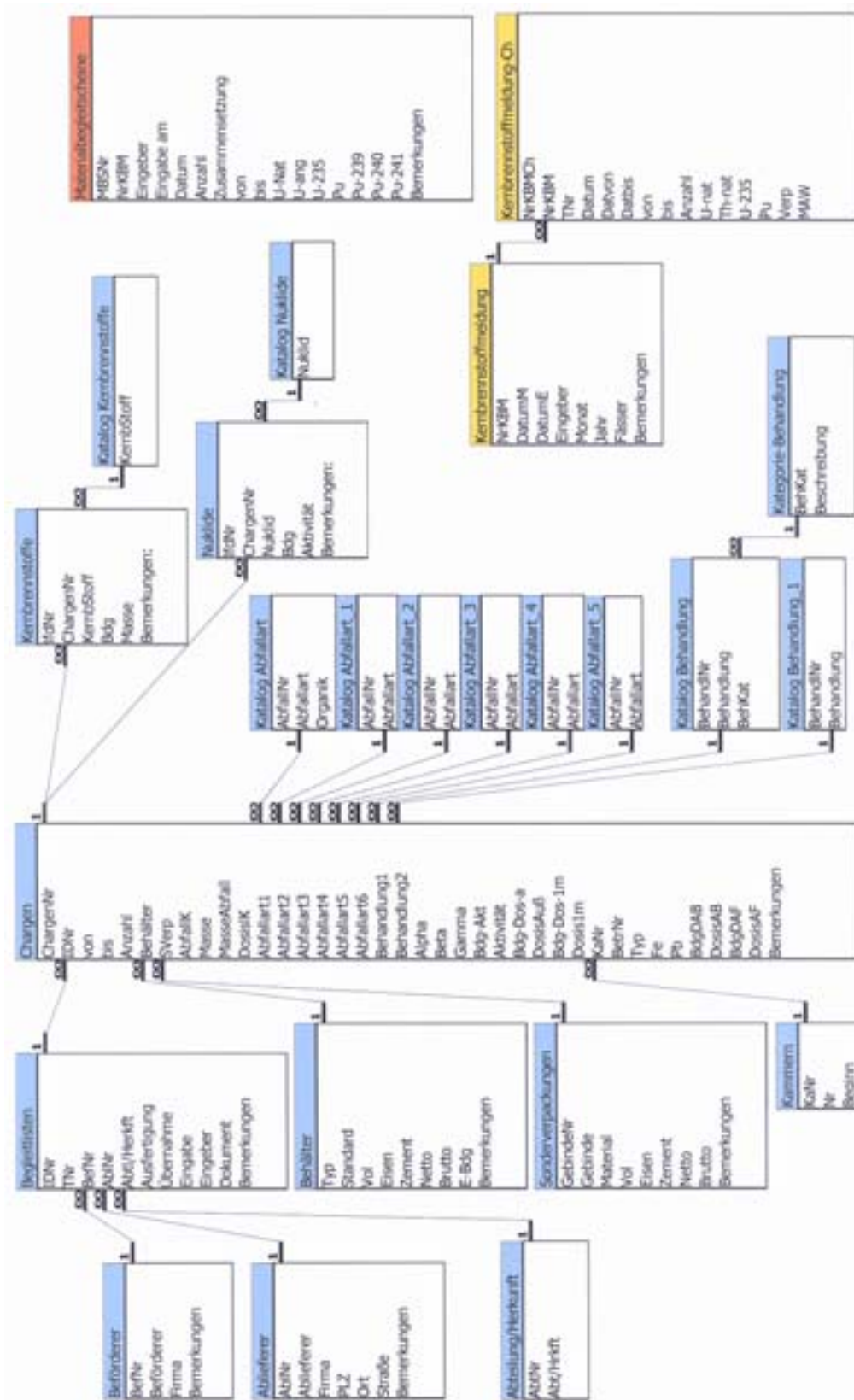


Abbildung 2: Tabellen der Datenbank und deren Beziehungen untereinander