

GSF  
FORSCHUNGSZENTRUM FÜR UMWELT UND GESUNDHEIT

FORSCHUNGSBERGWERK ASSE

**Schachtanlage Asse**  
**Freisetzung volatiler Radionuklide auf dem Gaspfad**

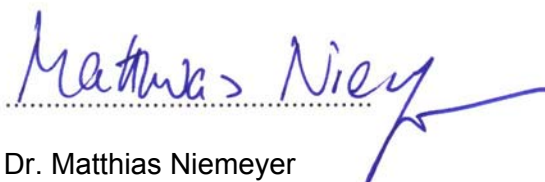
Colenco Bericht 3331/108  
Oktober 2006

Colenco Power Engineering AG  
Baden, Schweiz

Verfasser: Dr. M. Niemeyer, Dr. G. Resele



Dr. Georg Resele  
Chefprojektleiter



Dr. Matthias Niemeyer  
Leitender Chemiker

## Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis.....	2
Verzeichnis der Tabellen.....	2
Verzeichnis der Anlagen .....	2
1 Einleitung.....	3
2 Relevante Radionuklide in der Gasphase .....	4
3 Szenarien .....	5
4 Konzeptuelles Modell .....	7
5 Rechenfälle, Modellparameter und Resultate .....	9
5.1 Systemverhalten des Nahfelds.....	9
5.2 Biosphärenszenarien.....	10
5.2.1 Referenz-Biosphäre: Landwirtschaftliche Nutzfläche.....	10
5.2.2 Gering wahrscheinliches Alternativszenario: Freisetzung in Wohnhaus.....	10
5.2.3 Alternativszenario: Auflösung von $^{14}\text{CH}_4$ in oberflächennahem Grundwasser und Einleitung in Fischteich.....	11
5.3 Resultate .....	15
6 Schlussfolgerungen.....	17
7 Referenzen.....	18

## Verzeichnis der Tabellen

Tabelle 1	Auswahl der relevanten Radionuklide für den Gaspfad .....	4
Tabelle 2	Varianten und Resultate .....	16

## Verzeichnis der Anlagen

Anhang:	Verfeinerte Modellierung des Übertritts von $^{14}\text{CH}_4$ aus der Gasphase in einen oberflächennahen Aquifer .....	20
---------	---	----

## 1 Einleitung

Der Nachweis der radiologischen Langzeitsicherheit für die Schachanlage Asse II wird sowohl für den Transport und die Freisetzung von Radionukliden in gelöster Form (Lösungspfad) als auch für den Transport von gasförmigen Verbindungen in der Gasphase (Gaspfad) geführt. Der Nachweis für den Lösungspfad erfolgt im Projekt ALSA-C. Der vorliegende Bericht behandelt den Gaspfad.

Da mit den Abfällen große Mengen an Metallen und organischen Verbindungen in das Grubengebäude eingebracht wurden, ist mit der Bildung entsprechend großer Gasmengen durch Korrosion und mikrobielle Zersetzung zu rechnen. Daher ist zu erwarten, dass diese Gase aus dem Grubengebäude in das Deckgebirge übertreten und durch dieses zur Geländeoberfläche aufsteigen, wodurch eventuell auch Radionuklide in Gasphase bis in die Biosphäre gelangen. Im Folgenden werden mit einem einfachen Modellansatz die potenziellen Strahlenexpositionen ermittelt, die eine Freisetzung volatiler Radionuklidverbindungen auf dem Gaspfad zur Folge haben kann. Der Modellansatz knüpft an die Modellergebnisse für die Fluidbewegung im Grubengebäude mit dem numerischen Modell KAFKA im Rahmen des Langzeitsicherheitsnachweises für den Lösungspfad ([ALSA-C 2005], [ALSA-C 2006]) an.

Der Modellansatz für die Berechnung der potenziellen Strahlenexposition aufgrund einer Radionuklidfreisetzung auf dem Gaspfad stützt sich im Wesentlichen auf die folgenden Systemkomponenten und Prozesse:

- die Verteilung der radioaktiven Gase im Gesamt-Gasvolumen aus eingeschlossener Luft und gebildeten Gasen,
- den Beginn und die Rate des Gasaustritts aus der Grube in das Deckgebirge gemäß Modellrechnungen mit KAFKA,
- den unverzügerten Aufstieg der Gasphase durch das Deckgebirge ohne Minderung durch Lösungsprozesse,
- die teilweise Auflösung der radioaktiven Gase in oberflächennahem Grundwasser, mit welchem ein Fischteich gespeist wird, und der anschließende Verzehr von Fisch,
- die vollständige mikrobielle Oxidation des  $^{14}\text{CH}_4$  zu  $^{14}\text{CO}_2$  in den ungesättigten Bodenschichten vor dem Eintreten in die Atmosphäre und
- die Inhalation von  $^{14}\text{CO}_2$  und die Ingestion von Nahrungsmitteln, welche aufgrund der Assimilation durch Pflanzen  $^{14}\text{C}$  enthalten.

Untersucht werden sowohl verschiedene Entwicklungen des Systemverhaltens (Szenarien) im Nahfeld des Standorts Asse [Colenco 2006] als auch drei unterschiedliche Szenarien für die Freisetzung in die Biosphäre und deren Auswirkungen auf die potentielle Strahlenexposition von Einzelpersonen.

## 2 Relevante Radionuklide in der Gasphase

Aufgrund des eingelagerten Radionuklid-Inventars können in der Schachtanlage Asse nur vier Radionuklide in nennenswerter Menge in die Gasphase übergehen:

- Tritium ( $^3\text{H}$ ),
- Radiokohlenstoff ( $^{14}\text{C}$ ),
- Iod ( $^{129}\text{I}$ ) und
- Radon ( $^{222}\text{Rn}$ ).

Ihre Halbwertszeiten HWZ, Anfangsinventare<sup>1</sup>  $I_0$ , Dosiskoeffizienten für Inhalation  $DF_{\text{Inh}}$  und Toxizitätsindizes TI, als Produkt aus Anfangsinventar und Dosiskoeffizient für Inhalation, sind in Tabelle 1 zusammengestellt. Außer  $^{14}\text{CH}_4$  können alle radioaktiven Gasspezies aus den nachfolgend aufgeführten Gründen vernachlässigt werden:

Tabelle 1 Auswahl der relevanten Radionuklide für den Gaspfad

Nuklid	Spezies	Kommentar	HWZ [a]	$I_0$ [Bq]	$DF_{\text{Inh}}$ [Sv/Bq]	TI <sup>①</sup> [Sv]
$^3\text{H}$	HTO	zu wenig volatil	$1,23 \cdot 10^1$	$1,1 \cdot 10^{12}$	$1,8 \cdot 10^{-11}$	$2,0 \cdot 10^1$
	HT	$DF_{\text{Inh}}(\text{HT}) < DF_{\text{Inh}}(\text{CH}_3\text{T})$			$1,8 \cdot 10^{-15}$	$2,0 \cdot 10^{-3}$
	$\text{CH}_3\text{T}$				$1,8 \cdot 10^{-13}$	$2,0 \cdot 10^{-1}$
$^{14}\text{C}$	$^{14}\text{CH}_4$	sicherheitsrelevant	$5,73 \cdot 10^3$	$3,9 \cdot 10^{12}$	$6,2 \cdot 10^{-12}$	$2,4 \cdot 10^1$
	$^{14}\text{CO}_2$	weniger volatil als $^{14}\text{CH}_4$				
$^{129}\text{I}$	$\text{I}_2$	höchstens in Spuren, kaum im Gas (Eh, pH, Lösungsmengen)	$1,57 \cdot 10^7$	$3,2 \cdot 10^8$	$9,6 \cdot 10^{-8}$	$3,1 \cdot 10^1$
	HI	vollständig dissoziiert, hohe Löslichkeit in Salzlösung				
	$\text{CH}_3\text{I}$	Bildung nicht plausibel			$7,4 \cdot 10^{-8}$	$2,4 \cdot 10^1$
$^{222}\text{Rn}$	Rn	Halbwertszeit für Freisetzung über Gaspfad zu gering	$1,05 \cdot 10^{-2}$	$2,0 \cdot 10^{11\ 2}$	$2,5 \cdot 10^{-9}$ <sub>3</sub>	$5,0 \cdot 10^2$

① Kann ein Radionuklid in mehreren chemischen Formen auftreten, wird der Toxizitätsindex für jede chemische Form unter der Annahme ermittelt, dass das gesamte Inventar vollständig in der betrachteten chemischen Form vorliegt.

**Tritium** kann als tritiiertes Wasser (HTO), tritiiertes Wasserstoff (HT) oder tritiiertes Methan ( $\text{CH}_3\text{T}$ ) vorliegen. HTO verhält sich ähnlich wie Wasser; sein Dampfdruck ist nur geringfügig kleiner. Wegen der außerordentlich großen Flüssigkeitsmengen im Grubengebäude, in denen sich das HTO lösen und verteilen kann, ist seine Konzentration und damit auch sein Dampfdruck vernachlässigbar. HT wird, in geringen

<sup>1</sup> Für  $^{222}\text{Rn}$  gilt das Anfangsinventar des Vorläuferradionuklids  $^{226}\text{Ra}$ .

<sup>2</sup> entspricht dem Inventar von  $^{226}\text{Ra}$

<sup>3</sup> entsprechend der von der ICRP vorgeschlagenen Konvention, den Jahresaufenthalt in einer Wohnung ( $7'000 \text{ h/a}$ ), deren Radon-Konzentration  $250 \text{ Bq/m}^3$  beträgt, als gleichbedeutend mit einer effektiven Dosis von  $4 \text{ mSv/a}$  durch eine andere Strahlung anzusehen, da diese beiden Expositionen zum gleichen Risiko führen. [ICRP 1993]. Atemrate:  $8'100 \text{ m}^3/\text{a}$  (in Konsistenz mit dem in Kapitel 5 verwendeten Wert)

Mengen, hauptsächlich durch Umsetzung von HTO mit korrodierenden Metallen entstehen. Die Bildung von  $\text{CH}_3\text{T}$  durch mikrobielle Umsetzung von Organika in Anwesenheit von HTO ist grundsätzlich möglich, wenn auch nicht in großem Ausmaß zu erwarten. Berücksichtigt man ferner die Halbwertszeiten und die Toxizitäten, wird deutlich, dass beim vorliegenden Radionuklidinventar  $^3\text{H}$  gegenüber  $^{14}\text{C}$  keine Rolle spielt (Tabelle 1). Der Toxizitätsindex ist für die zu betrachtenden Verbindungen des Tritiums bereits zu Beginn niedriger als für  $^{14}\text{CH}_4$  bzw.  $^{14}\text{CO}_2$  und nimmt zudem wegen seiner vergleichsweise kurzen Halbwertszeit von 12,3 Jahren rasch weiter ab.

**Radiokohlenstoff** liegt als Carbonat und in Form leicht abbaubarer organischer Verbindungen vor. Durch die Umsetzung der letzteren entstehen Methan ( $^{14}\text{CH}_4$ ) und Kohlendioxid ( $^{14}\text{CO}_2$ ). Dieses ist deutlich weniger volatil als Methan, löst sich besser in der Flüssigkeit in der Grube und kann zusätzlich als Carbonat in der Festphase gebunden sein. Daher wird – vergleichbare Stoffmengen vorausgesetzt – erheblich mehr  $^{14}\text{CH}_4$  als  $^{14}\text{CO}_2$  auf dem Gaspfad transportiert. Nach den im Hinblick auf die chemischen Verhältnisse in den Einlagerungskammern durchgeführten Abschätzungen der „Gasbildung bei maximaler  $\text{CO}_2$ -Bildung“ und unter der Annahme, dass sich der Radiokohlenstoff ( $^{14}\text{C}$ ) in gleichen Verhältnissen umsetzt wie der nicht-radioaktive Kohlenstoff liegt  $^{14}\text{C}$  dort nach dem Abklingen der mikrobiellen Aktivität zu etwa 54% als  $^{14}\text{CH}_4$  vor [ISTec 2005] (vgl. Kapitel 4). Am Ende des Gaspfads, vor dem Eintreten in die Atmosphäre, ist davon auszugehen, dass Methan in den ungesättigten Bodenschichten mikrobiell zu  $\text{CO}_2$  oxidiert wird [Pröhl 2006].

Für **Iod** sind zunächst die elementare Form ( $\text{I}_2$ ), Iodwasserstoffsäure ( $\text{HI}$ ) und Methyljodid ( $\text{CH}_3\text{I}$ ) zu betrachten. Elementares Iod kommt bei den vorherrschenden reduzierenden Eh-Werten und den alkalischen pH-Werten in den Einlagerungsbereichen kaum vor. Zudem ist  $\text{I}_2$  relativ gut wasserlöslich, und sein Dampfdruck ist gering.  $\text{HI}$  löst sich außerordentlich gut in Salzlösung. Bei den zu erwartenden pH-Werten in Lösung wäre es vollständig dissoziiert ( $\text{I}^-$ ), so dass das Iod hier nicht in die Gasphase übergehen kann. Methyljodid schließlich ist eine hoch reaktive, sehr toxische und mutagene Verbindung. Es kann ausgeschlossen werden, dass diese Substanz unter den Bedingungen am Standort Asse in nennenswerter Menge gebildet wird. Somit gibt es für Iod keine Verbindung, die über den Gaspfad freigesetzt werden könnte.

**Radon** kommt als Edelgas nur elementar vor. Seine längste Halbwertszeit von 3,8 Tagen für  $^{222}\text{Rn}$  ist viel zu gering, als dass eine Freisetzung von der Grube bis in die Biosphäre zu betrachten wäre. Freisetzungen von  $^{222}\text{Rn}$  sind nur in unmittelbarer Nähe seines Vorläufers in der Zerfallsreihe,  $^{226}\text{Ra}$ , zu erwarten. Für die Bedingungen am Standort Asse hieße das, dass  $^{226}\text{Ra}$  zunächst über den Grundwasserpfad bis in den Aquifer nahe der Tagesoberfläche transportiert werden muss, bevor  $^{222}\text{Rn}$ , welches mit  $^{226}\text{Ra}$  im Zerfallsgleichgewicht steht, von dort in die Atmosphäre ausgast. Dieser Prozess gehört nicht zur Freisetzung von volatilen Radionukliden auf dem Gaspfad und wird im Folgenden nicht betrachtet.

### 3 Szenarien

Durch Korrosion von Metallen und mikrobielle Umsetzung organischer Abfallinhaltsstoffe werden in den Einlagerungsbereichen große Mengen an Gas gebildet. Gleichzeitig werden auch die  $^{14}\text{C}$ -haltigen organischen Verbindungen umgesetzt, wobei unter anderem  $^{14}\text{CO}_2$  und  $^{14}\text{CH}_4$  entstehen. Die verschiedenen Gase steigen

durch die Grube auf und sammeln sich im Grubenhöchst<sup>4</sup>; dabei mischen sie sich. Damit Gas aus der Grube entweichen kann, müssen die beiden folgenden Bedingungen erfüllt sein:

- Das Gaspolster im Grubenhöchst muss sich soweit ausgedehnt haben, dass dessen Basis die Wegsamkeit erreicht, über welche der Übertritt in das Deckgebirge erfolgt.
- Der Druck im Gaspolster muss die Summe aus Gaseindringdruck und Lösungsdruck in der betrachteten Wegsamkeit überschreiten.

Dann tritt das Gas unter Zwei-Phasen-Bedingungen durch diese Wegsamkeit in das Deckgebirge über und steigt anschließend durch dieses weiter auf. Es sind zwei Austritts- und Aufstiegspfade zu betrachten:

- über die Zone der desintegrierten Steinsalz-Barriere in den Rötanhydrit, entlang dieser Schicht in das verstürzte Deckgebirge und durch dieses zur Geländeoberfläche (Referenzszenario)
- entlang eines der oder beider mit Dichtelementen versehenen Tagesschächte bis zur Geländeoberfläche (in einem wenig wahrscheinlichen Alternativszenario ist dieser Transportpfad für Radionuklide in der Gasphase der wichtigste, im Referenzszenario tritt er nicht auf oder ist höchstens von untergeordneter Bedeutung).

Bei Wechselwirkung des aufsteigenden Gases mit oberflächennahem Grundwasser geht ein Teil des Methans in Lösung. Falls das dabei entstehende <sup>14</sup>C-haltige Wasser für Fischzucht verwendet wird, ist die aus dem Verzehr der Fische resultierende Strahlenexposition zu betrachten. Die Strahlenexposition über den Trinkwasserpfad ist demgegenüber von geringer Bedeutung [Pröhl 2006]. Pflanzen nehmen aus dem Bodenwasser unabhängig von der chemischen Form keinen Kohlenstoff auf. Als Folge ist auch die Strahlenexposition über tierische Nahrung (Fleisch, Milchprodukte, etc.) vernachlässigbar.

Wenn das Gas die ungesättigten Bodenschichten erreicht hat, wird das Methan mikrobiell zu Kohlendioxid (d.h. <sup>14</sup>CO<sub>2</sub>) oxidiert. Nach der Freisetzung aus dem Boden in die Atmosphäre kann es auf verschiedenen Wegen zu einer Strahlenexposition kommen. Insbesondere sind die Aufnahme durch Pflanzen (Photosynthese) und anschließende Ausbreitung über die Nahrungsketten bis zum Menschen und die direkte Inhalation zu berücksichtigen. Die folgenden Biosphärenszenarien werden betrachtet:

- Freisetzung aus dem Boden einer landwirtschaftlichen Nutzfläche (wahrscheinliches Biosphärenszenario)
- kanalisierte Freisetzung in den Keller eines kleinen Wohnhauses (wenig wahrscheinliches Biosphärenszenario)
- teilweise Auflösung im oberflächennahen Grundwasser, mit welchem ein Teich zur Fischzucht gespeist wird (alternatives Biosphärenszenario)

---

<sup>4</sup> Zuvor geht der größte Teil des <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> in die flüssige oder feste Phase über, weil er durch die Versatzstoffe als Carbonat gebunden oder in der Flüssigkeit in der Grube gelöst wird.

## 4 Konzeptuelles Modell

Das konzeptuelle Modell für die Abbildung des Radionuklid-Transports auf dem Gaspfad beruht auf folgenden Annahmen:

- Die Gasbildung setzt zum Zeitpunkt des Einleitens von Schutzfluid in die Abbaue mit gasbildenden Stoffen ein; es werden die unter realistischen Bedingungen ermittelten Gasbildungsraten auf Grundlage von [ISTec 2005] in der Parametrisierung gemäß Referenzfall R8-K [ALSA-C 2005] sowie eine Parametrisierung für starke Gasbildung verwendet.
- Das gesamte  $^{14}\text{C}$ -Inventar der Abfälle wird zum Zeitpunkt des Schachtverschlusses instantan umgesetzt, wobei 46%  $^{14}\text{CO}_2$  und 54%  $^{14}\text{CH}_4$  entstehen.

Bei der mikrobiellen Umsetzung von Cellulose entstehen theoretisch gleiche Teile an  $\text{CO}_2$  und  $\text{CH}_4$ . Bei der anaeroben mikrobiellen Degradation organischer Abfälle in Deponien ist der Methananteil etwas höher [Farquhar & Rovers 1973]. Oxidierende Substanzen in den Einlagerungskammern der Asse (Nitrat, Sulfat, Fe(III)) können dagegen den  $\text{CO}_2$ -Anteil erhöhen. Der Zahlenwert von 46%  $\text{CO}_2$  geht auf die Modellierung von [ISTec 2005] zurück (Annahme einer maximalen  $\text{CO}_2$ -Bildung bei vollständiger Umsetzung des organischen Materials). Der entsprechende Anteil für  $^{14}\text{CH}_4$  von 54% überschätzt sehr wahrscheinlich die tatsächlich gebildeten  $^{14}\text{CH}_4$ -Mengen, weil damit nicht berücksichtigt ist, dass ein Teil des  $^{14}\text{C}$  in den eingelagerten Abfällen bereits in carbonatischer Form existiert, dass das übrige, organisch gebundene  $^{14}\text{C}$  vermutlich vorwiegend in leicht mikrobiell umsetzbaren Verbindungen vorhanden ist und daher abgebaut wird, wenn noch größere Mengen an Oxidantien vorliegen, was den  $^{14}\text{CO}_2$ -Anteil deutlich erhöhen dürfte, und dass eine vollständige Umsetzung des organischen Materials zu Gas wenig plausibel ist.

- Das  $^{14}\text{CO}_2$  wird größtenteils als Carbonat gefällt; der verbleibende gasförmige Anteil ist gegenüber dem  $^{14}\text{CH}_4$  von untergeordneter Bedeutung.
- Das  $^{14}\text{CH}_4$  mischt sich vollständig mit den übrigen Gasen; dabei werden die Beiträge aus allen Kammern in vollem Umfang berücksichtigt.
- Die Lösung von  $^{14}\text{CH}_4$  in der Grubenlösung wird für den Transport in der Gasphase als konservative Vereinfachung vernachlässigt.
- Der Transport des Gases innerhalb und aus der Grube wird für unterschiedliche Entwicklungen des Systems im Nahfeld berücksichtigt [Colenco 2006]. Die Ergebnisse für den Transport beruhen auf den Resultaten der Modellrechnungen mit KAFKA [ALSA-C 2005] und [ALSA-C 2006]:
  - Referenzfall der Szenariengruppe des Referenzszenarios – R8-K
  - Szenariengruppe vergrößerte Zone der desintegrierten Steinsalz-Barriere (vZdSB) – R.V10-K
  - Szenariengruppe Gasabfluss entlang Tagesschächte (GTs) – R.V7-K
  - kombinierte Variante aus [ALSA-C 2006], Rechenfall mit Gasbildung wie im Referenzfall und Sorelbetonverfüllung im Grubenhöchsten – RX.5-K
  - Variante mit Gasbildung bei maximaler  $\text{CO}_2$ -Bildung und Sorelbetonverfüllung im Grubenhöchsten – RX.13-K
- Die  $^{14}\text{C}$ -Konzentration im Gas, das aus der Grube in das Deckgebirge übertritt, errechnet sich aus dem  $^{14}\text{C}$ -Inventar in der Grube, dem bei der mikrobiellen Umsetzung daraus entstehenden Anteil an  $^{14}\text{CH}_4$  von 54% (s.o.) und der gebildeten

Gasmenge zum Zeitpunkt des beginnenden Gasaustritts aus dem Grubengebäude.

- Transportverzögerung, Lösungsprozesse etc. beim Aufstieg durch das Deckgebirge werden als konservative Vereinfachung vernachlässigt.
- Vor der Freisetzung in die Atmosphäre wird das  $^{14}\text{CH}_4$  in den ungesättigten Bodenschichten mikrobiell vollständig zu  $^{14}\text{CO}_2$  oxidiert (Biosphärenszenarien „landwirtschaftliche Nutzfläche“ und „Freisetzung in Wohnhaus“).
- Für das wahrscheinliche Biosphärenszenario einer flächenhaften Freisetzung des  $^{14}\text{CO}_2$  aus einer landwirtschaftlichen Nutzfläche<sup>5</sup> wird die entsprechende Modellierung von Pröhl [2006] zu Grunde gelegt; dort wurden Strahlenexpositionen für Einzelpersonen aus normierten Freisetzungsraten ermittelt. Diese können daher als Dosiskonversionsfaktoren angewandt werden.
- Für das wenig wahrscheinliche Biosphärenszenario, in dem der gesamte Gasfluss aus dem Deckgebirge bzw. Tagesschacht kanalisiert in den Keller eines Einfamilienhauses erfolgt, errechnet sich die potenzielle Strahlenexposition aus dem Luftvolumen des Hauses, der Lüftungsrate, der mittleren Atemrate, der täglichen Verweildauer der betroffenen Personen im Haus und dem Dosiskoeffizienten für die Inhalation von  $^{14}\text{CO}_2$ .
- Im dritten betrachteten Biosphärenszenario trifft das aufsteigende Gas aus der Grube auf einen genutzten oberflächennahen Grundwasserleiter. Dabei löst sich  $^{14}\text{CH}_4$  im Grundwasser. Mit dem  $^{14}\text{C}$ -haltigen Wasser werde ein Fischteich ausschließlich gespeist, d.h. dem Fischteich werde kein anderes Wasser zugeleitet<sup>6</sup>. Für die quantitative Analyse wird angenommen, dass sich zwischen dem aufsteigenden Gas und dem Grundwasser das Lösungsgleichgewicht entsprechend dem Henry'schen Gesetz einstellt. Dabei wird wegen des hohen Wasserstoffpartialdrucks unterstellt, dass im Kontaktbereich zwischen aufsteigender Gasphase und Grundwasser keine Oxidation des  $^{14}\text{CH}_4$  zu  $^{14}\text{CO}_2$  stattfindet<sup>7</sup>. Als konservative Vereinfachung wird eine anschließende Abnahme des  $^{14}\text{C}$ -Gehaltes im Wasser vernachlässigt. Eine solche erfolgt während des Transports bis zum Fischteich durch Ausgasen als Folge des abnehmenden Drucks und in Kontakt mit  $^{14}\text{C}$ -armer Luft (als  $^{14}\text{CH}_4$  oder  $^{14}\text{CO}_2$ ). Spätestens im Fischteich werde dann das  $^{14}\text{CH}_4$  zu  $^{14}\text{CO}_2$  oxidiert, welches in die Nahrungskette im Fischteich eingeht. Die Berechnung der Strahlenexposition über den Verzehr von Fisch erfolgt dann in Anlehnung an die AVV [Pröhl 2006].

<sup>5</sup> Modellrechnungen der GRS zeigen, dass eine punktförmige Freisetzung von Gas unter Berücksichtigung der Expositionspfade Landwirtschaft und Inhalation zu deutlich geringeren Strahlenexpositionen führt.

<sup>6</sup> Dies ist für gelöstes  $^{14}\text{CO}_2$  oder  $^{14}\text{CH}_4$  der mit Abstand dominierende Expositionspfad: Die radiologischen Konsequenzen einer direkten Aufnahme mit dem Trinkwasser sind vergleichsweise gering, und für eine Aufnahme durch Pflanzen – z.B. nach Bewässerung – müsste gelöstes  $^{14}\text{C}$  zuvor in die Gasphase übergehen, was Bestandteil des Referenz-Biosphärenszenario ist. (vgl. auch Anmerkungen in Kapitel 3)

<sup>7</sup> Eine Oxidation von  $^{14}\text{CH}_4$  zu  $^{14}\text{CO}_2$  im Kontaktbereich zwischen Gas und Grundwasser hätte wegen der größeren Henry-Konstanten von  $\text{CO}_2$  und wegen des  $\text{CO}_2/\text{HCO}_3^-$  Gleichgewichts eine größere  $^{14}\text{C}$ -Konzentration im Grundwasser und damit auch eine höhere potenzielle Strahlenexposition zur Folge. Der durch das Grundwasser aufsteigende Wasserstoff bewirkt aber ein Ausgasen von im Wasser gelöstem Sauerstoff, und zusätzlich kann er durch den Prozess der mikrobiellen Methanogenese  $^{14}\text{CO}_2$  wieder zu  $^{14}\text{CH}_4$  reduzieren.



## 5 Rechenfälle, Modellparameter und Resultate

### 5.1 Systemverhalten des Nahfelds

Die Auswirkungen der Freisetzung volatiler Radionuklide werden auf der Basis von folgenden Rechenfällen für die Fluidbewegung im Grubengebäude ermittelt ([ALSA-C 2005], [ALSA-C 2006]):

1. Referenzfall R8-K: realistische Gasbildungsrate, Übertritt von Gas aus der Grube in das Deckgebirge entlang der modellhaften Verbindung durch die Zone der desintegrierten Steinsalz-Barriere in 500 m Teufe, anschließend Aufstieg der Gasphase entlang des Rötanhydrit und durch das verstürzte Deckgebirge
2. Rechenfall R.V10-K: realistische Gasbildungsrate, Entweichen von Gas aus der Grube im Grubenhöchsten in 474 m Teufe in den Rötanhydrit, anschließender Gasaufstieg wie im Referenzfall:

Im Gegensatz zum Referenzfall muss sich in diesem Rechenfall kein nennenswertes Gaspolster im Grubenhöchsten bilden, damit Gas in das Deckgebirge austritt. Die  $^{14}\text{C}$ -Konzentration im relativ frühzeitig austretenden Gas ist besonders hoch<sup>8</sup>.

3. Rechenfall R.V7-K: realistische Gasbildungsrate, relativ hohe Permeabilität des Schachtverschlusses (integrale Permeabilität des Dichtelements und der umgebenden Auflockerungszone:  $5 \cdot 10^{-16} \text{ m}^2$ ) und niedriger Gaseindringdruck ( $10^5 \text{ Pa}$ ): Während bei einer Permeabilität des Schachtverschlusses wie im Referenzfall der Gasabfluss über den Schacht im Vergleich mit jenem in die Flanke der Salzstruktur verschwindend gering ist, ist in diesem Rechenfall der Schacht der dominierende Transportpfad für Gas.
4. Rechenfall RX.5-K (kombinierte Variante der Szenariengruppe des Referenzszenarios gemäß [ALSA-C 2006]): realistische Gasbildungsrate und Sorelbetonverfüllung im Grubenhöchsten:

Aufgrund der Verfüllung steht in diesem Fall im Grubenhöchsten ein geringeres Speichervolumen für Gas als im Referenzfall zur Verfügung. Dadurch wird das gebildete Gas früher als im Referenzfall und auch mit höherer Rate freigesetzt.

5. Rechenfall RX.13-K: Gasbildung bei maximaler  $\text{CO}_2$ -Bildung und Sorelbetonverfüllung im Grubenhöchsten:

Die „Gasbildung bei maximaler  $\text{CO}_2$ -Bildung“ gemäß [ISTec 2005] in Verbindung mit dem geringeren Speichervolumen im Grubenhöchsten führt zu noch früheren und höheren Gasfreisetzungsraten als im Fall 4.

<sup>8</sup>

Zum Beginn des Gasübertritts aus der Grube haben sich in diesem Rechenfall  $2,8 \cdot 10^6 \text{ m}^3$  Gas gebildet, diese sind über die verschiedenen Grubenteile verteilt. Es wird – wie in den anderen Rechenfällen – vereinfachend angenommen, dass die  $^{14}\text{CH}_4$ -Konzentration im austretenden Gas dem Quotienten aus 54% des Gesamtinventars an  $^{14}\text{C}$  und der Gesamtgasmenge zu diesem Zeitpunkt entspricht, auch wenn die Voraussetzung einer vollständigen Mischung in diesem Rechenfall im geringsten Ausmaß erfüllt ist.

## 5.2 Biosphärenszenarien

### 5.2.1 Referenz-Biosphäre: Landwirtschaftliche Nutzfläche

Im **wahrscheinlichen Fall** für die Ausbreitung in der **Biosphäre** wird von einer flächenhaften Freisetzung über eine landwirtschaftliche Nutzfläche von einem Hektar ausgegangen. Dabei wird angenommen, dass die gesamten Nahrungsmittel in dem Gebiet erzeugt werden, über das die Gasfreisetzung erfolgt. Die Berechnungen von [Pröhl 2006] ergeben einen Dosiskonversionsfaktor von  $1,3 \cdot 10^{-15}$  Sv/Bq<sup>9</sup>. Die Inhalation von  $^{14}\text{CO}_2$  ist dabei für die potenzielle Strahlenexposition bedeutungslos, maßgeblich ist die Assimilation durch Nutzpflanzen inkl. Weidegras.

### 5.2.2 Gering wahrscheinliches Alternativszenario: Freisetzung in Wohnhaus

In einem wenig wahrscheinlichen Fall für die Ausbreitung in der Biosphäre, bei einer örtlich konzentrierten Gasfreisetzung in ein Wohnhaus, ergibt sich die Strahlenexposition aus der Atemrate, der Aufenthaltsdauer der betroffenen Personengruppe im Wohnhaus, dem Dosisfaktor für die Inhalation von  $^{14}\text{C}$  und der  $^{14}\text{C}$ -Konzentration der Atemluft im Wohnhaus. Letztere entspricht dem Verhältnis aus der Freisetzungsrate in das Wohnhaus und dem Luftstrom infolge kontinuierlicher Lüftung<sup>10</sup>:

$$D = F \cdot \frac{t_A \cdot I}{V_L \cdot \beta} \cdot DF_{\text{Inh}} = F \cdot 9,5 \cdot 10^{-15} \frac{\text{Sv}}{\text{Bq}} \quad (1)$$

mit:

D Personendosis; [Sv/a]

F Freisetzungsrate von  $^{14}\text{C}$  (chemische Form:  $^{14}\text{CO}_2$ ) in ein Wohnhaus; [Bq/a]

$V_L$  Anrechenbares Luftvolumen des Hauses ( $500 \text{ m}^3$ )<sup>11</sup>

$\beta$  Luftwechselzahl<sup>12</sup> ( $0,8 \text{ h}^{-1}$ )

$t_A$  Aufenthaltsdauer ( $16 \text{ h/d}$ )<sup>13</sup>

I Atemrate ( $8 \cdot 100 \text{ m}^3/\text{a}$ )

$DF_{\text{Inh}}$  Dosisfaktor für Inhalation von  $^{14}\text{CO}_2$  ( $6,2 \cdot 10^{-12} \text{ Sv/Bq}$ )<sup>14</sup>

<sup>9</sup> In [Pröhl 2006] werden Argumente angeführt, warum eine landwirtschaftliche Nutzfläche von 1 ha auch für Selbstversorger eher zu klein sein dürfte. Geht man von einem Flächenbedarf von 10 ha aus (Rentabilitätsüberlegungen für die Erzeugung von Grundnahrungsmitteln sowie für eine Rinderherde benötigtes Weideland), dann reduziert sich der Dosiskonversionsfaktor um eine Größenordnung, d.h. auf  $1,3 \cdot 10^{-16}$  Sv/Bq. Im Folgenden wird allerdings konservativerweise von einem Flächenbedarf von 1 ha ausgegangen.

<sup>10</sup> Dies ist das unökonomischste Lüftungsregime, führt aber im zeitlichen Mittel zu den höchsten Radionuklidkonzentrationen.

<sup>11</sup> Eine Freisetzung von Gas aus dem Untergrund in ein Haus mit so hohen Raten, wie sie sich für den konzeptuellen Modellansatz ergeben (Tabelle 2), ist in Verbindung mit der niedrigen angenommenen Luftwechselzahl nur möglich, wenn das Haus einen Naturkeller hat. Daraus ergibt sich eine Mindestgröße für das Haus ( $100 \text{ m}^2$  Grundfläche, Keller + Erdgeschoss).

<sup>12</sup> Luftwechselzahl, von der Wärmeschutzverordnung [WSchVO 1995] aus hygienischen Gründen vorgesehen

<sup>13</sup> [ICRP 1987]: Aufenthaltsdauer im eigenen Haus = 65 %; 20 % in anderen Häusern, 15 % an anderen Orten

<sup>14</sup> [BMU 2001]; der Dosiskoeffizient für die Inhalation von  $^{14}\text{CH}_4$  ist gemäß einer Abschätzung von [Phipps et al. 1990] um ca. 2 Größenordnungen kleiner als der von  $^{14}\text{CO}_2$ . Falls nur ein Teil des  $^{14}\text{CH}_4$  zu  $^{14}\text{CO}_2$  oxidiert würde, dann wäre der resultierende Dosisbeitrag entsprechend niedriger.

### 5.2.3 Alternativszenario: Auflösung von $^{14}\text{CH}_4$ in oberflächennahem Grundwasser und Einleitung in Fischteich

Das bei der Metallkorrosion und der mikrobiellen Umsetzung organischer Abfälle in der Grube gebildete Gas dient als „Träger“ für die Freisetzung von  $^{14}\text{CH}_4$  auf dem Gaspfad durch das Deckgebirge. Da die Gasbildung durch Korrosion die mikrobielle Gasbildung bei weitem überwiegt [ISTec 2005], kann vereinfachend davon ausgegangen werden, dass das gebildete Gas nur aus Wasserstoff besteht.

Es wird nun angenommen, dass das Gas nach dem Aufstieg durch das Deckgebirge auf einen genutzten Grundwasserkörper trifft. Dieser habe eine Mächtigkeit von 10 m, der Druck – die Summe aus hydrostatischem Druck und Atmosphärendruck – beträgt in der Mitte des Grundwasserkörpers also 0,15 MPa.

Im Lösungsgleichgewicht zwischen einer Gasphase, die vorwiegend aus Wasserstoff besteht und einen geringen Gehalt an  $^{14}\text{CH}_4$  aufweist, und Wasser lässt sich die Konzentration an gelöstem  $^{14}\text{CH}_4$  im Wasser nach dem Gesetz von Henry ermitteln:

$$C_1' = p^{14}\text{CH}_4 \cdot H_{\text{CH}_4} = \eta_g \cdot p \cdot H_{\text{CH}_4} \quad (2)$$

mit:

$C_1'$  Konzentration von  $^{14}\text{CH}_4$  im Aquifer; [mol/m<sup>3</sup>]

$p^{14}\text{CH}_4$  Partialdruck von  $^{14}\text{CH}_4$  am Ort des Kontaktes zwischen Gasphase und Wasser; [Pa]

$p$  Druck in der Gasphase am Ort des Kontaktes zwischen Gasphase und Wasser, wegen vernachlässigbarer Kapillareffekte im (quartären) Aquifer identisch mit dem Wasserdruck [Pa]

$\eta_g$  Mol-Anteil von  $^{14}\text{CH}_4$  in der Gasphase [-]

$H_{\text{CH}_4}$  Henry-Konstante für  $\text{CH}_4$ ; [mol/(Pa·m<sup>3</sup>)]

Eine analoge Gleichung gilt auch für Wasserstoff. Durch den Übergang von  $^{14}\text{CH}_4$  und Wasserstoff aus der Gasphase in das Grundwasser nehmen der Gasfluss und der Fluss von  $^{14}\text{CH}_4$  in der Gasphase von der Basis des oberflächennahen Aquifers bis zu dessen Oberfläche ab<sup>15</sup>. Wegen der Unterschiede der Henry-Konstanten von Wasserstoff und  $^{14}\text{CH}_4$  verschiebt sich dadurch auch der Mol-Anteil  $\eta_g$ . Zudem sinken mit abnehmender Tiefe der Druck  $p$  und damit die Löslichkeiten von Wasserstoff und  $^{14}\text{CH}_4$ . Sofern das Grundwasser eine hohe Sauerstoffsättigung aufweist, tritt aufgrund der zu Gl. (2) analogen Gleichung für Sauerstoff solches aus dem Wasser in die Gasphase über. Dadurch wächst der Gasfluss wieder an.

Im Anhang wird gezeigt, dass die Berechnung der teufengemittelten  $^{14}\text{CH}_4$ -Konzentration im Grundwasser mit Gl. (2) eine gute Näherung ist, wenn als Mol-Anteil von  $^{14}\text{CH}_4$  in der Gasphase ( $\eta_g$ ) der Wert an der Basis des oberflächennahen Grundwasserleiters (und damit der Wert beim Übertritt der Gasphase in das Deckgebirge) und als Druck der Lösungsdruck in der Mitte des Grundwasserleiters ge-

<sup>15</sup>

Ein analoger Prozess findet auch im Deckgebirge statt. Dort wird er jedoch von vornherein vernachlässigt, da der Wasserumsatz geringer ist als in einem oberflächennahen (quartären) Aquifer und eine Quantifizierung wesentlich schwieriger wäre. Wie nachfolgend festgestellt und im Anhang gezeigt wird, ist auch im oberflächennahen Aquifer der Effekt von beschränkter Auswirkung.

wählt werden. Im Anhang wird weiter gezeigt, dass diese Näherung systematisch auf höhere Werte für die mittlere  $^{14}\text{CH}_4$ -Konzentration im Grundwasser führt als eine verfeinerte Berechnung. Die Gleichung für die näherungsweise Ermittlung der mittleren  $^{14}\text{CH}_4$ -Konzentration im Grundwasser lautet somit:

$$\bar{C}'_1 = \eta_{g0} \cdot p_0 \cdot H_{\text{CH}_4} \cdot \left( 1 + \frac{\rho \cdot g \cdot B}{2 \cdot p_0} \right) \quad (3)$$

mit:

- $\bar{C}'_1$  teufengemittelte Konzentration von  $^{14}\text{CH}_4$  im Aquifer; [ $\text{mol}/\text{m}^3$ ]
- $\eta_{g0}$  Mol-Anteil von  $^{14}\text{CH}_4$  in der Gasphase an der Basis des oberflächennahen Aquifers, gemäß vereinfachender Annahme gleich wie in der Gasphase im Grubenhöchsten [-]
- $p_0$  Normaldruck,  $1,013 \cdot 10^5$  Pa
- $\rho$  Dichte des Wassers im oberflächennahen Aquifer,  $1000 \text{ kg}/\text{m}^3$
- $g$  Erdbeschleunigung,  $9,81 \text{ m}/\text{s}^2$
- $B$  Mächtigkeit des oberflächennahen Aquifers am Ort der Wechselwirkung mit der aufsteigenden Gasphase [m]

Es ist beachtenswert, dass die teufengemittelte  $^{14}\text{CH}_4$ -Konzentration im oberflächennahen Aquifer näherungsweise sowohl vom Grundwasserfluss als auch vom Gasfluss unabhängig ist. Sie ist ebenfalls unabhängig von der Fläche, über welche der Gasaufstieg erfolgt. Diese bestimmt „lediglich“, welcher Anteil des Grundwasserträgers  $^{14}\text{CH}_4$  aufnimmt, mit welcher Wahrscheinlichkeit das  $^{14}\text{CH}_4$ -haltige Grundwasser ohne weitere Verdünnung in den Fischteich geleitet wird und ob der  $^{14}\text{CH}_4$ -haltige Grundwasserfluss für die Speisung des Fischteichs ausreicht. Bei einem kanalisierten Gasaufstieg wird nur ein geringer Anteil des Grundwasserträgers beeinflusst, und eine Speisung des Fischteichs ausschließlich mit  $^{14}\text{CH}_4$ -haltigem Wasser ist unmöglich.

Die Auswertung von Gl. (3) erfolgt mit folgenden, teilweise schon oben erwähnten vereinfachenden Annahmen: (i) Die Bildung von  $^{14}\text{CH}_4$  in den Einlagerungskammern erfolgt schnell. (ii) Das  $^{14}\text{CH}_4$  vermischt sich gleichmäßig mit dem gesamten Gasvolumen, das in der Grube zum Zeitpunkt des beginnenden Gasaustritts aus der Grube vorhanden ist. (iii) Der Mol-Anteil von  $^{14}\text{CH}_4$  in der Gasphase verändert sich beim Aufstieg durch das Deckgebirge nicht. Mit

- $I_{^{14}\text{CH}_4}$  Inventar von  $^{14}\text{C}$  in der Grube, das nach Mobilisierung und mikrobieller Umsetzung als  $^{14}\text{CH}_4$  vorliegt (mit Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalls bis zum Beginn des Gasaustritts aus der Grube) [Bq]
- $V_{g0}$  Gasvolumen in der Grube zum Zeitpunkt des beginnenden Gasübertritts aus der Grube in das Deckgebirge [ $\text{m}^3_{\text{STP}}$ ]
- $C_{g0}$   $^{14}\text{CH}_4$ -Konzentration in der Gasphase im Übertritt aus der Grube und an der Basis des oberflächennahen Aquifers [ $\text{Bq}/\text{m}^3_{\text{STP}}$ ]
- $\bar{C}'_1$  teufengemittelte  $^{14}\text{CH}_4$ -Konzentration im oberflächennahen Aquifer [ $\text{Bq}/\text{m}^3$ ]
- $N_L$  Loschmidt-Zahl,  $6,022 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$
- $\lambda_{^{14}\text{C}}$  Zerfallskonstante von  $^{14}\text{C}$ ,  $3,84 \cdot 10^{-12} \text{ s}^{-1}$

R                   Universelle Gaskonstante, 8,314 J/(mol·K)

T<sub>0</sub>                  Normtemperatur, 273,15 K

$$v_0 = \frac{R \cdot T_0}{p_0} \quad \text{Mol-Volumen, } 0,0224 \text{ m}^3_{\text{STP}}/\text{mol}$$

ergibt sich folgende Beziehung zwischen dem Mol-Anteil von <sup>14</sup>CH<sub>4</sub> in der Gasphase, ihrer Konzentration in der Gasphase in [Bq/m<sup>3</sup><sub>STP</sub>], dem Inventar in der Grube und dem Volumen der Gasphase in der Grube zum Zeitpunkt des beginnenden Gasaustritts aus der Grube in das Deckgebirge:

$$\frac{I_{^{14}\text{CH}_4}}{V_{\text{gG0}}} = C_{\text{g0}} = \eta_{\text{g0}} \cdot \frac{N_{\text{L}} \cdot \lambda_{^{14}\text{C}}}{v_0} \quad (4)$$

Zwischen der <sup>14</sup>CH<sub>4</sub>-Konzentration in Lösung in [mol/m<sup>3</sup>] und in [Bq/m<sup>3</sup>] besteht folgende Beziehung:

$$\bar{C}_1 = N_{\text{L}} \cdot \lambda_{^{14}\text{C}} \cdot \bar{C}'_1 \quad (5)$$

Gl. (4) und (5) eingesetzt in Gl. (3) ergibt

$$\bar{C}_1 = \frac{I_{^{14}\text{CH}_4}}{V_{\text{gG0}}} \cdot v_0 \cdot p_0 \cdot H_{\text{CH}_4} \cdot \left( 1 + \frac{\rho \cdot g \cdot B}{2 \cdot p_0} \right) \quad (6)$$

Wird nun weiter angenommen, dass das <sup>14</sup>CH<sub>4</sub>-haltige Wasser direkt in den Fischteich geleitet wird, dabei keine Ausgasung erfolgt, das <sup>14</sup>CH<sub>4</sub> bis zum Eintritt in den Fischteich vollständig zu <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> oxidiert wird und dem Fischteich kein anderes Wasser zufließt, dann ergibt sich mit dem Dosiskonversionsfaktor für den Expositionspfad „Fisch“ gemäß [Pröhl 2006]

$$DF_{\text{Fisch}} = 5,9 \cdot 10^{-6} \text{ (Sv/a)/(Bq/l)}$$

aus diesem Biosphären-Szenario näherungsweise die Strahlenexposition

$$D = DF_{\text{Fisch}} \cdot \frac{I_{^{14}\text{CH}_4}}{V_{\text{gG0}}} \cdot v_0 \cdot p_0 \cdot H_{\text{CH}_4} \cdot \left( 1 + \frac{\rho \cdot g \cdot B}{2 \cdot p_0} \right) \quad (7)$$

Nachfolgend wird die Plausibilität der zuletzt genannten vereinfachenden Annahmen kurz charakterisiert und diskutiert. Nachdem sich <sup>14</sup>C in der Form <sup>14</sup>CH<sub>4</sub> im Grundwasser gelöst hat, wird es mit diesem weiter transportiert, bis es in den in diesem Biosphärenszenario angenommenen Fischteich gelangt. Auf dem Weg dahin werden verschiedene Prozesse wirksam:

- Ausgasung
- Oxidation des <sup>14</sup>CH<sub>4</sub> zu <sup>14</sup>CO<sub>2</sub>

Die Reihenfolge, in der die beiden Prozesse ablaufen, ist wesentlich für die verbleibende <sup>14</sup>C-Konzentration im Grundwasser:

**Ausgasung** von Methan erfolgt bei abnehmendem Partialdruck. Der Prozess setzt bereits ein, wenn das Grundwasser zur Geländeoberfläche aufsteigt und dabei der hydrostatische Druck abnimmt. Ausgasung findet nach dem Gesetz von Henry zu-

dem an der Grenzfläche zwischen  $^{14}\text{CH}_4$ -haltigem Wasser und  $^{14}\text{CH}_4$ -freier Atmosphäre statt. Solche Verhältnisse liegen beim Fließen durch einen natürlichen Bachlauf, bei einer Trinkwasseraufbereitung oder beim Anreichern des Wassers mit Luft während des Einleitens in den Fischteich vor. Speziell, wenn technische Maßnahmen ergriffen werden, führt dies dazu, dass der größte Teil des gelösten Gases in die Atmosphäre übergeht. Der Effekt kann allerdings schwer quantitativ belastet werden, weil auch nicht ausgeschlossen ist, dass das Grundwasser aus einer Brunnenfassung oder einer Quelle auf kurzem Wege und ohne technische Maßnahmen in den Fischteich gelangt; in diesem Fall wäre der Kontakt mit der Atmosphäre beschränkt, und ein großer Teil des  $^{14}\text{C}$  bliebe im Wasser gelöst.

Die **Oxidation** von Methan zu Kohlendioxid erfolgt bakteriell unter aeroben Bedingungen. Im tieferen Grundwasser innerhalb der hier betrachteten Schadstofffahne ist dies aufgrund des großen Partialdrucks an Wasserstoff wenig wahrscheinlich. Bei einer oxydierenden Trinkwasseraufbereitung dagegen könnte der größte Teil des gelösten  $\text{CH}_4$  in  $\text{CO}_2$  umgewandelt werden. Dies geschieht spätestens im Fischteich, wodurch das  $^{14}\text{C}$  in die Nahrungskette eingeht.

Die Löslichkeit von  $\text{CO}_2$  in Wasser ist um mehr als einen Faktor 20 höher als die von  $\text{CH}_4$ . Hinzu kommt, dass  $\text{CO}_2$  mit  $\text{CO}_3^{2-}$  (z.B. in Form von Kalk:  $\text{CaCO}_3$ ) zu Hydrogencarbonat ( $\text{HCO}_3^-$ ) reagiert und als solches chemisch gebunden im Wasser gelöst bleibt. Daher ist nach einer Oxidation des  $^{14}\text{CH}_4$  zu  $^{14}\text{CO}_2$  nicht mehr mit einem nennenswerten Übergang in die Gasphase zu rechnen.

Je später die Oxidation des Methans auf dem Weg vom Grundwasser über Brunnenfassung, Wasseraufbereitung/Belüftung, Fließweg zum Fischteich bis zur Einleitung in den Teich erfolgt, umso wahrscheinlicher ist es, dass ein großer Teil des  $^{14}\text{CH}_4$  ausgast und nicht zur Strahlenexposition beiträgt.

Es ist durchaus möglich, dass das  $^{14}\text{CH}_4$  im Grundwasser noch nicht oxidiert wird, sondern als solches bis in den Brunnen gelangt. Das wird durch eine kurze Literaturrecherche belegt: In ländlichen Gebieten des Münsterlandes kam es bereits zu Verpuffungen und zum Auftreten brennbarer Gase in Hausbrunnen [Melchers & Coldewey 2005]. Eine Grundwasserklassifizierung ergab, dass in 52% der Grundwässer in Norddeutschland Bedingungen herrschen, unter denen Methan produziert werden kann. Für 9 % dieser Wässer wurde Methan auch analytisch in Konzentrationen von 0,2 bis 36 mg/l (im Extremfall bis zu 70 mg/l<sup>16</sup>) nachgewiesen. Der Anteil methanhaltiger Wässer liegt vermutlich noch viel höher, denn bislang ist nur ein kleiner Teil der Wässer auf Methan analysiert worden [Wichmann 2001].

Bei der Aufbereitung von methanhaltigem Grundwasser muss Methan durch z.B. intensive Belüftung entfernt werden. Ansonsten kommt es zum Wachstum methanotropher Bakterien, die Methan unter Sauerstoffverbrauch oxidieren und den Aufbereitungsprozess erheblich beeinträchtigen können. Methanbedingte Aufbereitungsprobleme sind z.B. die unvollständige mikrobielle Oxidation von  $\text{Fe}^{2+}$ ,  $\text{NH}_4^+$  und  $\text{Mn}^{2+}$  aufgrund der hohen Sauerstoffzehrung bei der Methanoxidation oder eine Verstopfung der Filter aufgrund starker Biomasse- und Schleimproduktion der methanotrophen Bakterien [Wichmann 2001]. In diesem Fall würde ein Teil des  $^{14}\text{C}$  in der Biomasse gebunden und wäre für den Fischteich nicht mehr verfügbar.

---

<sup>16</sup>Dieser Wert entspricht in etwa der Sättigungskonzentration von  $\text{CH}_4$  bei einem Partialdruck von 3 bar.

### 5.3 Resultate

Die Rechenfälle, die wichtigsten Zwischenergebnisse und die resultierenden potenziellen Strahlenexpositionen sind in Tabelle 2 aufgeführt. Im Referenzfall (R8-K) währt es ca. 1'500 Jahre, bis die Gasfreisetzung aus der Grube beginnt. So lange dauert es, bis das Gaspolster groß genug geworden ist, dass seine Basis die obere Wegsamkeit in der desintegrierten Steinsalzbarriere in 500 m Tiefe erreicht. Das gebildete Gasvolumen zu diesem Zeitpunkt beträgt  $5 \cdot 10^6 \text{ m}^3_{\text{STP}}$ . Es ist maßgeblich für die Berechnung der Konzentration des  $^{14}\text{CH}_4$  in der zunächst austretenden Gasphase. Die Gasfreisetzung steigt danach rasch an und erreicht nach gut 2'000 Jahren ihr Maximum von  $1'600 \text{ m}^3_{\text{STP/a}}$ . Zu diesem Zeitpunkt sind bereits etwa 25% des  $^{14}\text{C}$ -Inventars zerfallen. Daraus berechnet sich das Maximum der Übertrittsrates von  $5,4 \cdot 10^8 \text{ Bq/a}$  in das Deckgebirge und – gestützt auf die Annahme eines schnellen und verlustfreien Transports durch das Deckgebirge – in die Biosphäre. Die Strahlenexposition beträgt für diese Freisetzungsrates 0,0007 mSv/a bei einer flächenhaften Freisetzung in eine landwirtschaftliche Nutzfläche. Für das Szenario einer örtlich konzentrierten Freisetzung in den Keller eines Einfamilienhauses – bei dem der Gasanstieg im Deckgebirge kanalisiert erfolgen oder eine geringdurchlässige Schicht das aufsteigende Gas oberflächennah sammeln und in eine lokale Wegsamkeit leiten müsste – beträgt sie rund 0,005 mSv/a. Für das Biosphärenszenario der Lösung von  $^{14}\text{CH}_4$  im Grundwasser bis zur Sättigung in Verbindung mit dem Einleiten des  $^{14}\text{C}$ -haltigen Wassers ohne weitere Verdünnung und Ausgasung in einen Fischteich, der zudem mit keinem anderen Wasser gespeist wird, berechnet sich die Dosis zu 0,11 mSv/a.

In der Szenariengruppe „vergrößerte Zone der desintegrierten Steinsalz-Barriere“ (vZdSB) existiert vom Grubenhöchsten eine Wegsamkeit in der Steinsalz-Barriere zum Deckgebirge, über die der Gasabfluss aus dem Grubengebäude in das Deckgebirge bereits nach 300 Jahren einsetzt. Das zu diesem Zeitpunkt gebildete Gasvolumen beträgt  $2,8 \cdot 10^6 \text{ m}^3_{\text{STP}}$ . Der maximale Gasfluss, der etwa 400 Jahre nach dem Verschließen des Grubengebäudes erreicht wird, ist dann mit etwa  $9'700 \text{ m}^3_{\text{STP/a}}$  sehr hoch. Dennoch liegt die berechnete Strahlenexposition für das wahrscheinliche Biosphärenszenario mit 0,009 mSv/a noch deutlich unterhalb des Wertes gemäß § 47, Abs. 1 der StrlSchV. Für das wenig wahrscheinliche Biosphärenszenario einer Freisetzung in den Keller eines kleinen Wohnhauses wird eine Strahlenexposition von etwa 0,07 mSv/a berechnet, für das Biosphärenszenario „Fischteich“ von 0,23 mSv/a.

In der Szenariengruppe „Gasabfluss entlang der Tagesschächte“ (GTs) erfolgt die Gasfreisetzung quantitativ über einen oder beide Tagesschächte. Der Gasaustritt aus dem Grubengebäude beginnt bereits nach 750 Jahren und erreicht sein Maximum von  $2'700 \text{ m}^3_{\text{STP/a}}$  nach knapp 2'000 Jahren. Die potenzielle Strahlenexposition liegt in diesem Fall für die Biosphären-Szenarien „Landwirtschaft“ und „Wohnhaus“ um den Faktor 6, für das Biosphären-Szenario „Fischteich“ um den Faktor 1,5 unter jenen des Szenarios vZdSB.

Tabelle 2 Varianten und Resultate

Referenzfall / Varianten	Rechenfall	$t_1^{\textcircled{1}}$	$V_{\text{gas}}(t_1)$	$t_{\text{max}}^{\textcircled{2}}$	$Q_{\text{Gas,max}}$	$I(^{14}\text{CH}_4, t_{\text{max}})$	$Q_{^{14}\text{C,max}}$	Dosis (Landwirtschaft)	Dosis (Haus)	Dosis (Fischteich)
		[a]	[m <sup>3</sup> <sub>STP</sub> ]	[a]	[m <sup>3</sup> <sub>STP</sub> /a]	[Bq]	[Bq/a]	[mSv/a]	[mSv/a]	[mSv/a]
Referenzfall	R8-K	1'450	$5,0 \cdot 10^6$	2'050	1'600	$1,6 \cdot 10^{12}$	$5,3 \cdot 10^8$	0,0007	0,005	0,11
Wegsamkeit zum Deckgebirge im Grubenhöchsten	R.V10-K	300	$2,8 \cdot 10^6$	400	9'700	$2,0 \cdot 10^{12}$	$7,0 \cdot 10^9$	0,009	0,07	0,23
Höhere Permeabilität des Schachtverschlusses und verminderter Gaseindringdruck	R.V7-K	750	$4,2 \cdot 10^6$	1'850	2'700	$1,7 \cdot 10^{12}$	$1,1 \cdot 10^9$	0,0014	0,010	0,15
Kombinierte Variante mit Gasbildung wie Referenzfall und Sorelbetonverfüllung im Grubenhöchsten	RX.5-K	800	$4,2 \cdot 10^6$	1'150	3'700	$1,8 \cdot 10^{12}$	$1,6 \cdot 10^9$	0,0021	0,015	0,14
maximale Gasbildung und Sorelbetonverfüllung im Grubenhöchsten	RX.13-K	150	$6,2 \cdot 10^6$	150	15'000	$2,1 \cdot 10^{12}$	$5,0 \cdot 10^9$	0,007	0,05	0,11

①  $t_1$ : Beginn der Gasfreisetzung aus dem Grubengebäude

②  $t_{\text{max}}$ : Zeitpunkt der maximalen Gasfreisetzung aus dem Grubengebäude



In der kombinierten Variante (RX.5) mit Gasbildung wie im Referenzfall und Sorel-betonverfüllung im Grubenhöchsten beginnt die Gasfreisetzung nach 800 Jahren, also etwas mehr als der halben Zeit verglichen mit dem Referenzfall. Ursache ist das kleinere Gasspeichervolumen im Grubenhöchsten. Entsprechend früher, nach 1'150 Jahren, ist auch das Maximum der Gasfreisetzung erreicht. Zu dieser Zeit ist die Gasbildungsrate mit  $3'700 \text{ m}^3_{\text{STP}}/\text{a}$  noch deutlich höher, wodurch auch die Freisetzungsraten entsprechend größer sind, was sich linear auf die Dosis für die Biosphärenszenarien „Landwirtschaft“ und „Haus“ auswirkt ( $0,0021 \text{ mSv/a}$  bzw.  $0,015 \text{ mSv/a}$ ). Da das Biosphären-Szenario „Fischteich“ in erster Näherung unabhängig vom Gasfluss ist, ist die berechnete Strahlenexposition mit  $0,14 \text{ mSv/a}$  nur mäßig höher als im Referenzfall.

Die Kombination von Gasbildung bei maximaler  $\text{CO}_2$ -Bildung und Sorel-betonverfüllung im Grubenhöchsten führt erwartungsgemäß zu den frühesten Freisetzungzeiten (150 Jahre) und den höchsten Gasflüssen ( $15'000 \text{ m}^3_{\text{STP}}/\text{a}$ ). Trotzdem ist auch hier in allen Biosphärenszenarien die potenzielle Strahlenexposition deutlich unterhalb des Wertes von  $0,3 \text{ mSv/a}$  gemäß § 47, Abs. 1 der StrlSchV:  $0,007 \text{ mSv/a}$  (Landwirtschaft),  $0,05 \text{ mSv/a}$  (Haus). Für das Biosphären-Szenario „Fischteich“ errechnen sich  $0,11 \text{ mSv/a}$ .

## 6 Schlussfolgerungen

Die Modellrechnungen für die verschiedenen Szenarien einer Freisetzung volatiler Radionuklide auf dem Gaspfad ergeben durchwegs potenzielle Strahlenexpositionen unterhalb des Wertes von  $0,3 \text{ mSv/a}$  gemäß § 47, Abs. 1 der StrlSchV. Von radiologischer Bedeutung ist dabei ausschließlich  $^{14}\text{C}$ , das nach Mobilisierung und mikrobieller Umwandlung in der Form  $^{14}\text{CH}_4$  in die Gasphase übergeht. Selbst bei wenig bis mäßig wahrscheinlichen, ungünstigen Annahmen für das Nahfeld, wie z.B. einer schnellen Gasfreisetzung aus dem Grubenhöchsten, wird der o.g. Wert von  $0,3 \text{ mSv/a}$  nicht überschritten. In allen Szenarien wurden eher konservative Parameterwerte für das  $^{14}\text{CH}_4$ -Inventar zu Grunde gelegt und den Transport begrenzende Prozesse, wie z.B. die Verzögerung des Gastransports im Deckgebirge, nicht berücksichtigt. Die für eine gasförmige Freisetzung in die bodennahe Luft über einer landwirtschaftlichen Nutzfläche berechneten Strahlenexpositionen liegen typischer Weise im Bereich von  $0,002 \text{ mSv/a}$ , bei ungünstigen Verhältnissen im Nahfeld im Bereich bis  $0,01 \text{ mSv/a}$  und damit deutlich unterhalb des Werts von  $0,3 \text{ mSv/a}$  gemäß § 47, Abs. 1 der StrlSchV. Selbst bei einer wenig wahrscheinlichen kanalisierten Freisetzung des durch das Deckgebirge aufsteigenden Gases in den Keller eines Wohnhauses sind die berechneten Strahlenexpositionen lediglich um den Faktor 7 höher und somit noch mit Abstand unterhalb des Werts von  $0,3 \text{ mSv/a}$  gemäß § 47, Abs. 1 der StrlSchV.

Beim Aufstieg der Gasphase durch einen oberflächennahen Aquifer und der Nutzung des dadurch entstehenden  $^{14}\text{C}$ -haltigen Wassers ohne Verdünnung oder konzentrationsminderndes Ausgasen für Fischzucht (wobei in den Fischteich zudem kein anderes Wasser eingeleitet wird) ergeben sich nach den Modellrechnungen Strahlenexpositionen, die im Bereich des Wertes von § 47, Abs. 1, StrlSchV oder etwas darunter liegen. Andere Nutzungen des  $^{14}\text{C}$ -haltigen Wassers sind vergleichsweise von geringer Bedeutung.

Die in den Abfällen enthaltenen, volatilen Radionuklide führen bei Gasbildung im Grubengebäude unter Berücksichtigung realistischer Annahmen auch in den Bandbreiten zu unbedenklichen Strahlenexpositionen in der Biosphäre. Eine Ausnahme bildet unter ungünstigen Bedingungen die Nutzung von Grundwasser, das mit der aufsteigenden Gasphase in intensiven Kontakt gelangt ist, für die Fischzucht. In diesem Fall liegen die berechneten Dosiswerte im Bereich des Wertes von § 47, Abs. 1, StrlSchV oder knapp darunter. Das radiologische Schutzziel wird bei der Ausbreitung von Radionukliden auf dem Gaspfad – mit der genannten Einschränkung – eingehalten. Weitere, verfeinerte Modellierungen des Gastransports unter Berücksichtigung der Zwei-Phasen-Effekte und von Lösungseffekten im Grubengebäude und im Deckgebirge sind für den Nachweis der Langzeitsicherheit weder erforderlich noch angemessen. Einerseits ist die Datenlage für das Deckgebirge diesbezüglich beschränkt. Andererseits zeigen Abschätzungen, dass die möglichen Auswirkungen jener vernachlässigten Effekte, die mit einer detaillierteren Modellrechnung berücksichtigt werden könnten, beschränkt sind.

## 7 Referenzen

- [Air Liquide 2005] <http://www.airliquide.de/loesungen/produkte/gase/-gasekatalog/stoffe/index.html>
- [ALSA-C 2005] Transportmodellierung: Fluid- und Radionuklidtransport am Standort Asse. Bericht ALSA-C-1.5B-NR145, Version 02, NRG Petten / Colenco Power Engineering AG / GRS Braunschweig, Juli 2005.
- [ALSA-C 2006] Transportmodellierung: Fluid- und Radionuklidtransport am Standort Asse (Ergänzungsbericht). Bericht ALSA-C-10.4B-NR227, NRG Petten / Colenco Power Engineering AG / GRS Braunschweig, Dezember 2006.
- [BMU 2001] Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Verordnung für die Umsetzung von EURATOM-Richtlinien zum Strahlenschutz, Bundesgesetzblatt, 38, 1714- 1847, 2001.
- [Colenco 2006] Resele, G., Wilhelm St.: Schachanlage Asse – Szenarienentwicklung Nahfeld. Colenco Bericht 3331/98, Colenco Power Engineering, Baden, Oktober 2006
- [Farquhar & Rovers 1973] Farquhar, G.J., and F.A. Rovers. (1973). Gas generation during refuse decomposition. Water Air Soil Pollut. 2:483–495.
- [ICRP 1993] International Commission on Radiological Protection: Protection against Radon-222 at Home and at Work; ICRP Publication 65; Annals of the ICRP, Vol. 23, No. 2, London: Elsevier, 1993
- [ICRP 1987] International Commission on Radiological Protection: Lung Cancer Risk from Indoor Exposures to Radon Daughters, September, 1986; ICRP Publication 50; Annals of the ICRP, Vol. 17, No. 1, London: Elsevier, 1986

- [ISTec 2004] Bracke, G., Müller, W.: Gasbildung in der Schachtanlage Asse. ISTec - A - 849. ISTec GmbH, Garching, Juni 2004.
- [ISTec 2005] Bracke, G., Müller, W., Armean, C.: Abbaubarkeit von organischem Kohlenstoff unter salinaren Bedingungen Asse. ISTec - A - 947. ISTec GmbH, Garching, März 2005.
- [Melchers & Coldewey 2005] Melchers, Ch. Coldewey, W.G.: Gas in der Wasserleitung!!! Methan im Grundwasser des Münsterlandes. [http://www.uni-muenster.de/imperia/md/content/zufo/14methan\\_gw\\_ms.pdf](http://www.uni-muenster.de/imperia/md/content/zufo/14methan_gw_ms.pdf). Lehrstuhl für Angewandte Geologie, Münster.
- [Phipps et al. 1990] Phipps, A.W.; Kendall, G.M.; Fell, T.P.; & Harrison, J.D. (1990): Doses from Radioactive Methane. Radiation Protection Dosimetry Vol. 30 Nr.3 S.191-195, Nuclear Technology Publishing, [Oxford University Press](http://www.oxfordup.com), 1990.
- [Pröhl 2006] Pröhl, G., Gering, F. & Koch-Steindl, H.: Abschätzung der potentiellen Strahlenexposition in der Nachbetriebsphase der Schachtanlage Asse. GSF-Auftrags Nr. 31/181168/99/T. FE-Nr. 76278. GSF, Berichtsentwurf Oktober 2006.
- [Wichmann 2001] Wichmann, K., Bendinger, B. & Engefehr, N: Methanotrophe Bakterien als Bioindikator für Methan in der Trinkwasseraufbereitung und methanbedingte Aufbereitungsprobleme. <http://www.tu-harburg.de/www/projekte/aufbereitung.html>. Technische Universität Hamburg-Harburg, Institut für Wasserressourcen und Wasserversorgung, DVGW-Projekt 1999-2001.
- [WSchVO 1995] Bundesregierung: Verordnung über energiesparenden Wärmeschutz bei Gebäuden (Wärmeschutzverordnung); Bundesgesetzblatt (1995)

## Anhang: Verfeinerte Modellierung des Übertritts von $^{14}\text{CH}_4$ aus der Gasphase in einen oberflächennahen Aquifer

### A1 Einleitung

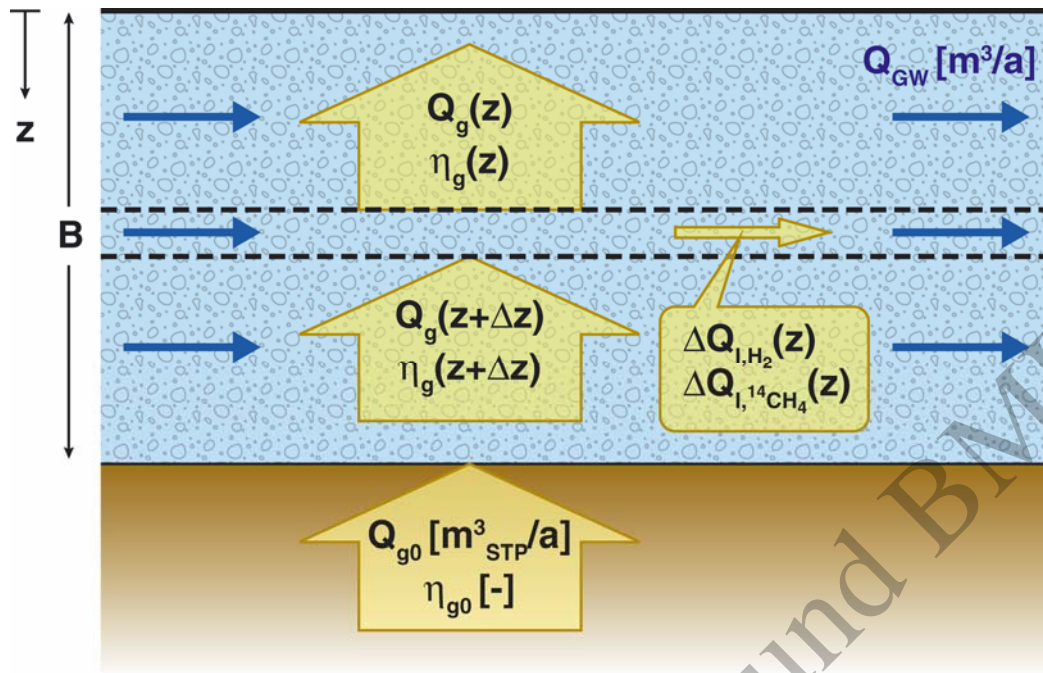
Der Übertritt von  $^{14}\text{CH}_4$  aus der Gasphase in den oberflächennahen Aquifer ist einer der Prozesse, die im Biosphären-Szenario „Fischteich“ wesentlich die berechnete Strahlenexposition bestimmen. Bei den im Haupttext dieses Berichtes dargestellten Ergebnissen wurde dieser Prozess in starker Vereinfachung, dafür aber unter Verwendung einer geringen Zahl von Eingangsgrößen und dadurch relativ robust berechnet. Nachfolgend soll mit einer verfeinerten Modellierung dargelegt werden, welchen Einfluss die folgenden, in den Berechnungen des Haupttextes vernachlässigten Prozesse haben:

- Der Lösungsdruck im Aquifer und damit auch der Druck in der Gasphase nehmen von der Basis des Aquifers gegen den Grundwasserspiegel ab. Dadurch sinkt die Löslichkeit von  $^{14}\text{CH}_4$  mit abnehmender Tiefe ab. In der vereinfachten Modellrechnung im Haupttext wurde der Lösungsdruck in der Mitte des Aquifers als Näherung verwendet. Die Berechtigung für diese Näherung soll überprüft werden.
- Durch den Übertritt von  $^{14}\text{CH}_4$  und von  $\text{H}_2$  aus der Gasphase in den Aquifer verändert sich der Mol-Anteil von  $^{14}\text{CH}_4$  in der Gasphase, da die Henry-Konstanten der beiden Gaskomponenten nicht gleich sind. Dieser Prozess wird in der vereinfachten Modellrechnung vernachlässigt. Die Folge dieser Vereinfachung soll überprüft werden.

Der analoge Effekt eines Übertritts von weiteren Gaskomponenten – z.B. von nichtradioaktivem Methan – in die gelöste Phase oder die Auswirkung eines Ausgasens von sauerstoffgesättigtem Grundwasser in die Gasphase werden nicht speziell in die folgende Modellrechnung aufgenommen. Die Tendenz der Auswirkungen solcher Prozesse kann durch eine rechnerische Variation der Henry-Konstanten für  $\text{H}_2$  gezeigt werden.

### A2 Modellansatz

Es wird angenommen, dass die Gasphase vertikal und örtlich gleichmäßig einen horizontal verlaufenden Aquifer mit konstanter Mächtigkeit  $B$  quert. Horizontal werden homogene Verhältnisse unterstellt. Die Filtergeschwindigkeit im Aquifer sei in der Tiefe konstant, d.h. in allen Tiefen gleich. Der Modellansatz beruht auf einer Bilanzierung des Gasflusses ( $\text{H}_2$ ) und des Flusses von  $^{14}\text{CH}_4$ . Abbildung A-1 illustriert den Modellansatz.



3331/gaspfad/Memo\_3331\_47\_R3\_Abb\_A-1.eps/png/shu/30.10.06

Abbildung A-1: Modellansatz für die verfeinerte Berechnung des Übertritts von  $^{14}\text{CH}_4$  aus der Gasphase in den oberflächennahen Aquifer

Folgende Größen werden verwendet:

$Q_g(z)$	vertikaler Gasfluss in der Tiefe $z$ [ $\text{m}^3_{\text{STP}}/\text{a}$ ]
$Q_{g0}$	Gasfluss aus der Grube und, gemäß Modellannahme, vertikaler Gasfluss an der Basis des oberflächennahen Aquifers [ $\text{m}^3_{\text{STP}}/\text{a}$ ]
$C_{g0}$	$^{14}\text{CH}_4$ -Konzentration in der Gasphase im Austritt aus der Grube und, gemäß Modellannahme, an der Basis des oberflächennahen Aquifers [ $\text{Bq}/\text{m}^3_{\text{STP}}$ ]
$C'_i(z)$	Konzentration des gelösten im Aquifer in der Tiefe $z$ [ $\text{mol}/\text{m}^3$ ]
$\eta_g(z)$	Mol-Anteil von $^{14}\text{CH}_4$ in der Gasphase in der Tiefe $z$ [-]
$\eta_{g0}$	Mol-Anteil von $^{14}\text{CH}_4$ in der Gasphase im Austritt aus der Grube und, gemäß Modellannahme, an der Basis des oberflächennahen Aquifers [-]
$p(z)$	Wasser- und Gasdruck in der Tiefe $z$ [Pa]
$\Delta Q_{I,\text{H}_2}(z)$	Abfluss von gelöstem Gas aus der Gasphase in der Tiefe $z$ im Tiefenintervall $\Delta z$ [ $\text{m}^3_{\text{STP}}/\text{a}$ ]
$\Delta Q_{I,^{14}\text{CH}_4}(z)$	Abfluss von gelöstem $^{14}\text{CH}_4$ aus der Gasphase in der Tiefe $z$ im Tiefenintervall $\Delta z$ [mol/a]
$z$	Tiefe ab Obergrenze des oberflächennahen Aquifers ( $z > 0$ ) [m]
$B$	Mächtigkeit des oberflächennahen Aquifers [m]
$Q_{\text{GW}}$	Grundwasserfluss im Bereich des oberflächennahen Aquifers, der von der aufsteigenden Gasphase durchströmt wird [ $\text{m}^3/\text{a}$ ]
$p_0$	Normaldruck, $1,013 \cdot 10^5$ Pa
$T_0$	Normtemperatur, 273,15 K
$R$	Universelle Gaskonstante, $8,314 \text{ J}/(\text{mol} \cdot \text{K})$
$g$	Erdbeschleunigung, $9,81 \text{ m}/\text{s}^2$

$\rho$  Dichte des Grundwassers im oberflächennahen Aquifer,  $1000 \text{ kg/m}^3$

$N_L$  Loschmidt-Zahl,  $6,022 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$

$\lambda_{^{14}\text{C}}$  Zerfallskonstante von  $^{14}\text{C}$ ,  $3,84 \cdot 10^{-12} \text{ s}^{-1}$

$$v_0 = \frac{R \cdot T_0}{p_0} \quad \text{Mol-Volumen, } 0,0224 \text{ m}^3_{\text{STP}}/\text{mol}$$

$$\beta = \frac{\rho \cdot g}{p_0} \quad \text{relativer Druckgradient im Aquifer, } 0,0968 \text{ m}^{-1}$$

$H_{\text{H}_2}$  Henry-Konstante von Wasserstoff, repräsentativ für die Gasphase,  $7,83 \cdot 10^{-6} \text{ mol}/(\text{Pa} \cdot \text{m}^3)$

$H_{\text{CH}_4}$  Henry-Konstante von Methan,  $1,60 \cdot 10^{-5} \text{ mol}/(\text{Pa} \cdot \text{m}^3)$

$$\kappa = \frac{H_{\text{CH}_4}}{H_{\text{H}_2}} - 1 = 1,04$$

Die Beziehung zwischen dem Mol-Anteil von  $^{14}\text{CH}_4$  in der Gasphase an der Basis des oberflächennahen Aquifers,  $\eta_{g0}$ , und der  $^{14}\text{CH}_4$ -Konzentration,  $C_{g0}$ , lautet

$$C_{g0} = \eta_{g0} \cdot \frac{N_L \cdot \lambda_{^{14}\text{C}}}{v_0} \quad (\text{A-1})$$

Mit Gl. (A-1) lässt sich aus der  $^{14}\text{CH}_4$ -Konzentration in der Gasphase der Mol-Anteil von  $^{14}\text{CH}_4$  in der Gasphase berechnen.

Der Druck in der Tiefe  $z$  beträgt

$$p(z) = p_0 \cdot (1 + \beta \cdot z) \quad (\text{A-2})$$

Bei intensivem Kontakt zwischen der Gasphase und dem Grundwasser besteht zwischen dem Partialdruck einer Gaskomponente,  $p_x$ , und deren Konzentration im Grundwasser,  $C_x$  (gelöst in  $\text{mol/m}^3$ ), die Beziehung nach Henry. Als Partialdruck von  $\text{H}_2$  wird der Gasdruck angesetzt.

$$C_x = p_x \cdot H_x \quad (\text{A-3})$$

In einer Schicht des Aquifers der Dicke  $\Delta z$  in der Tiefe  $z$  fließen folgende Mengen an Gas ( $\text{H}_2$ ) und an  $^{14}\text{CH}_4$  in gelöster Form pro Zeiteinheit aus der Gasphase ab:

$$\Delta Q_{\text{H}_2}(z) = p(z) \cdot H_{\text{H}_2} \cdot \frac{Q_{\text{GW}}}{B} \cdot v_0 \cdot \Delta z \quad (\text{A-4})$$

$$\Delta Q_{^{14}\text{CH}_4}(z) = \eta_g(z) \cdot p(z) \cdot H_{\text{CH}_4} \cdot \frac{Q_{\text{GW}}}{B} \cdot \Delta z \quad (\text{A-5})$$

Damit ergibt sich für den vertikalen Gasfluss durch den Aquifer folgende Differentialgleichung:

$$\frac{dQ_g}{dz} = p(z) \cdot H_{\text{H}_2} \cdot \frac{Q_{\text{GW}}}{B} \cdot v_0 \quad (\text{A-6})$$

mit der Lösung

$$Q_g(z) = Q_{g0} \cdot \left[ 1 - \delta_0 \cdot B \cdot \left( 1 + \frac{\beta}{2} \cdot B \right) + \delta_0 \cdot z \cdot \left( 1 + \frac{\beta}{2} \cdot z \right) \right] \quad (\text{A-7})$$

$$\text{mit } \delta_0 = \frac{p_0 \cdot H_{H_2} \cdot Q_{GW} \cdot v_0}{B \cdot Q_{g0}}$$

Die Bilanzgleichung für  $^{14}\text{CH}_4$  (in mol/a) ergibt sich mit Gl. (A-5) aus folgender Differenzgleichung:

$$\frac{1}{v_0} \cdot Q_g(z + \Delta z) \cdot \eta_g(z + \Delta z) = \frac{1}{v_0} \cdot Q_g(z) \cdot \eta_g(z) + \eta_g(z) \cdot p(z) \cdot H_{\text{CH}_4} \cdot \frac{Q_{GW}}{B} \cdot \Delta z \quad (\text{A-8})$$

Unter Verwendung von Gl. (A-6) führt diese Differenzgleichung im Grenzübergang  $\Delta z \rightarrow 0$  zu folgender Differentialgleichung:

$$\frac{1}{\eta_g(z)} \cdot \frac{d\eta_g}{dz} = (H_{\text{CH}_4} - H_{H_2}) \cdot \frac{Q_{GW} \cdot v_0}{B} \cdot \frac{p(z)}{Q_g(z)} \quad (\text{A-9})$$

Die Lösung dieser Differentialgleichung lautet, unter Verwendung von Gln. (A-2) und (A-7)

$$\eta_g(z) = \eta_{g0} \cdot \left[ \frac{1 + \delta_1 \cdot z \cdot \left(1 + \frac{\beta}{2} \cdot z\right)}{1 + \delta_1 \cdot B \cdot \left(1 + \frac{\beta}{2} \cdot B\right)} \right]^\kappa \quad (\text{A-10})$$

$$\text{mit } \delta_1 = \frac{p_0 \cdot H_{H_2} \cdot Q_{GW} \cdot v_0}{B \cdot Q_g(z=0)}$$

Damit ist die Bilanzierung des Gas- und  $^{14}\text{CH}_4$ -Fluss im oberflächennahen Aquifer gelöst.

Von Interesse ist die im Aquifer teufengemittelt auftretende Konzentration an gelöstem  $^{14}\text{CH}_4$ . Die  $^{14}\text{CH}_4$ -Konzentration im Grundwasser in der Tiefe  $z$  ist (in mol/m<sup>3</sup>, vgl. Gl. (A-3))

$$C'_1(z) = \eta_g(z) \cdot p(z) \cdot H_{\text{CH}_4} \quad (\text{A-11})$$

Da der Grundwasserfluss in jeder Tiefe als gleich angesetzt wurde, führen die Mittelung über den Fluss und jene über die Tiefe auf das gleiche Ergebnis

$$\begin{aligned} \bar{C}'_1 &= \frac{1}{B} \cdot \int_0^B C'_1(z) dz \\ &= \frac{1}{B} \cdot \frac{\eta_{g0} \cdot p_0 \cdot H_{\text{CH}_4}}{\left[1 + \delta_1 \cdot B \cdot \left(1 + \frac{\beta}{2} \cdot B\right)\right]^\kappa} \cdot \int_0^B \left[1 + \delta_1 \cdot z \cdot \left(1 + \frac{\beta}{2} \cdot z\right)\right]^\kappa \cdot (1 + \beta \cdot z) dz \end{aligned} \quad (\text{A-12})$$

Das Integral auf der rechten Seite von Gl. (A-12) lässt sich durch die Variablentransformation

$$y = 1 + \delta_1 \cdot z \cdot \left(1 + \frac{\beta}{2} \cdot z\right)$$

$$dy = \delta_1 \cdot (1 + \beta \cdot z) dz$$

geschlossen integrieren und ergibt

$$\bar{C}'_1 = \frac{\eta_{g0} \cdot Q_g(z=0)}{v_0 \cdot Q_{GW}} \cdot \left[ 1 + \delta_1 \cdot B \cdot \left(1 + \frac{\beta}{2} \cdot B\right) - \frac{1}{\left\{1 + \delta_1 \cdot B \cdot \left(1 + \frac{\beta}{2} \cdot B\right)\right\}^\kappa} \right] \quad (\text{A-13})$$

Im Grenzfall kleiner  $\delta_1$  geht die Lösung nach Gl. (A-13) in die im Haupttext verwendete vereinfachte Gleichung über:

$$\bar{C}'_1 \rightarrow \eta_{g0} \cdot p_0 \cdot H_{\text{CH}_4} \cdot \left(1 + \frac{\beta}{2} \cdot B\right) \quad \delta_1 \rightarrow 0 \quad (\text{A-14})$$

Auffallend ist, dass dieser Grenzwert auch angenähert wird, wenn – formal – die Henry-Konstante für Wasserstoff klein wird, d.h. – physikalisch – wenn das Ausgasen von Sauerstoff

aus dem Grundwasser die Abnahme der Gasphase durch Übertritt von Wasserstoff in Lösung weitgehend kompensiert.

### A3 Auswertung des verfeinerten Modells

Nachfolgend wird die teufengemittelte  $^{14}\text{CH}_4$ -Konzentration im oberflächennahen Aquifer mit Gl. (A-13) für verschiedene Werte der Aquiferparameter  $Q_{\text{GW}}$  (beeinflusster Grundwasserfluss) und B (Mächtigkeit des Aquifers) ermittelt. Zusätzlich wird auch die Sensitivität der Konzentration in Bezug auf den Gasfluss aus der Grube,  $Q_{\text{g0}}$ , untersucht. Zum einfacheren Vergleich mit den Ergebnissen im Haupttext sind die resultierenden Dosiswerte aufgeführt.

Dargestellt in den Abbildungen sind die mit Gl. (A-13) berechneten Strahlenexpositionen für

Grundwasserfluss $Q_{\text{GW}}$ :	40 000 m <sup>3</sup> /a, <u>20 000 m<sup>3</sup>/a</u> , 10 000 m <sup>3</sup> /a
Mächtigkeit des Aquifers B:	<u>10 m</u> , 20 m, 30 m
Gasfluss $Q_{\text{g0}}$ :	0,5-Wert gemäß Tabelle 2, <u>1-Wert gemäß Tabelle 2</u> , 2-Wert gemäß Tabelle 2 in Kapitel 5.3 des Haupttextes

für die Rechenfälle

Referenzfall (R8-K)

Wegsamkeit zum Deckgebirge im Grubenhöchsten (R.V10-K)

kombinierte Variante (RX.5-K)

Die in Tabelle 2 im Haupttext angegebenen Werte für die Strahlenexposition wurden für eine plausible Mächtigkeit des oberflächennahen (quartären) Grundwasserleiters von 10 m ermittelt. Die dort verwendete Näherungsgleichung (A-14) vernachlässigt den Einfluss des Grundwasserflusses und des Gasflusses.

Die Ergebnisse in den Abbildungen A-2 bis A-4 und deren Vergleich mit den Werten in Tabelle 2 des Haupttextes zeigen, dass

- mit der im Haupttext verwendeten Näherung systematisch höhere Dosiswerte ermittelt werden,
- die Einflüsse der Parameter  $Q_{\text{GW}}$  und  $Q_{\text{g0}}$ , welche in der im Haupttext verwendeten Näherung vernachlässigt werden, meistens im 20%-Bereich oder darunter und damit mäßig bis gering sind,
- die Einflüsse von Grundwasserfluss ( $Q_{\text{GW}}$ ) und Gasfluss ( $Q_{\text{g0}}$ ) insbesondere bei hohen Gasflüssen sehr gering sind.

Sofern der Aquifer vor dem Kontakt mit der Gasphase eine hohe Sauerstoffsättigung aufweist, gast das Grundwasser im Kontakt mit der sauerstofffreien Gasphase aus. Dadurch nimmt der Gasfluss mit abnehmender Tiefe weniger ab als nach Gl. (A-7) und damit auch weniger, als in den dargestellten Ergebnissen angenommen wurde. In der Tendenz kann dieser Effekt durch eine niedrigere Wahl der Henry-Konstanten für Wasserstoff abgeschätzt werden. Nachfolgend sind die berechneten Dosiswerte für die kombinierte Variante (RX.5-K) und für die oben unterstrichenen Referenzwerte der Parameter dargestellt, das eine Mal mit der physikalischen Henry-Konstanten für Wasserstoff, das andere Mal mit einem um den Faktor 10 verminderten Wert des Parameters  $H_{\text{H}_2}$  in Gl. (A-13).

Dosis für physikalischen Wert von  $H_{\text{H}_2}$  : 0,134 mSv/a

Dosis für reduzierten Wert von  $H_{\text{H}_2}$  : 0,126 mSv/a

Dieser Vergleich zeigt, dass eine Ausgasung des Grundwassers ebenfalls einen geringen Einfluss hat und dass die Vernachlässigung dieses potenziellen Effektes konservativ ist.



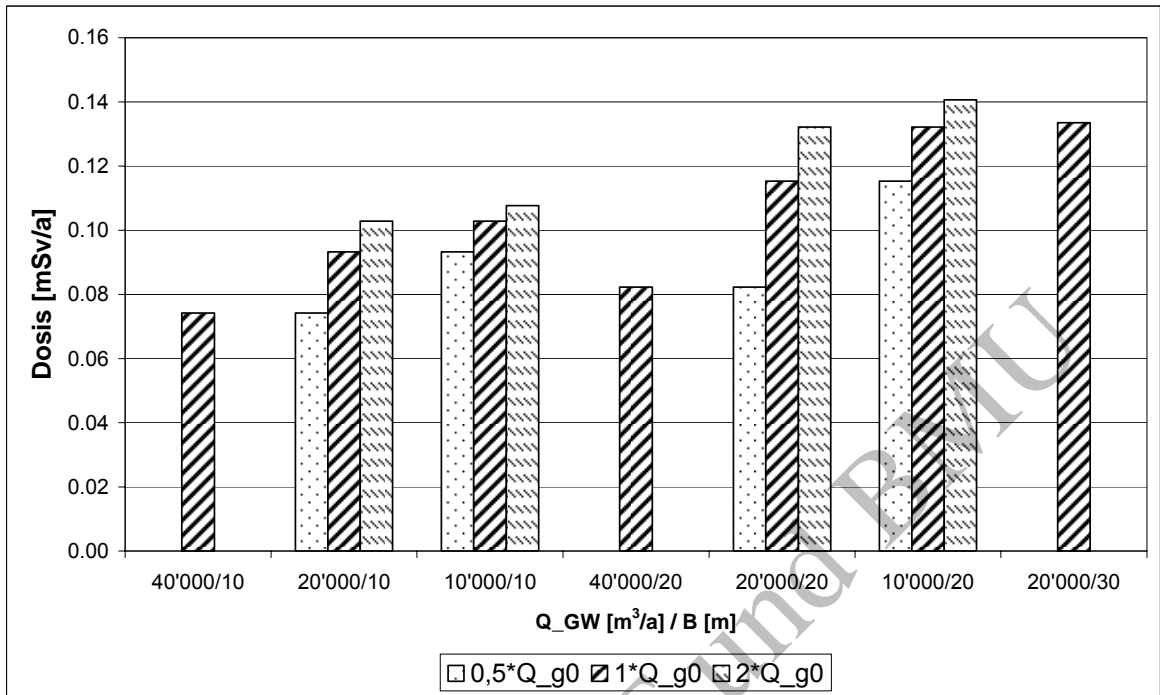


Abbildung A-2: Berechnete Strahlenexposition gemäß Gl. (A-13) für das Biosphären-Szenario „Fischteich“ und den Rechenfall R8-K

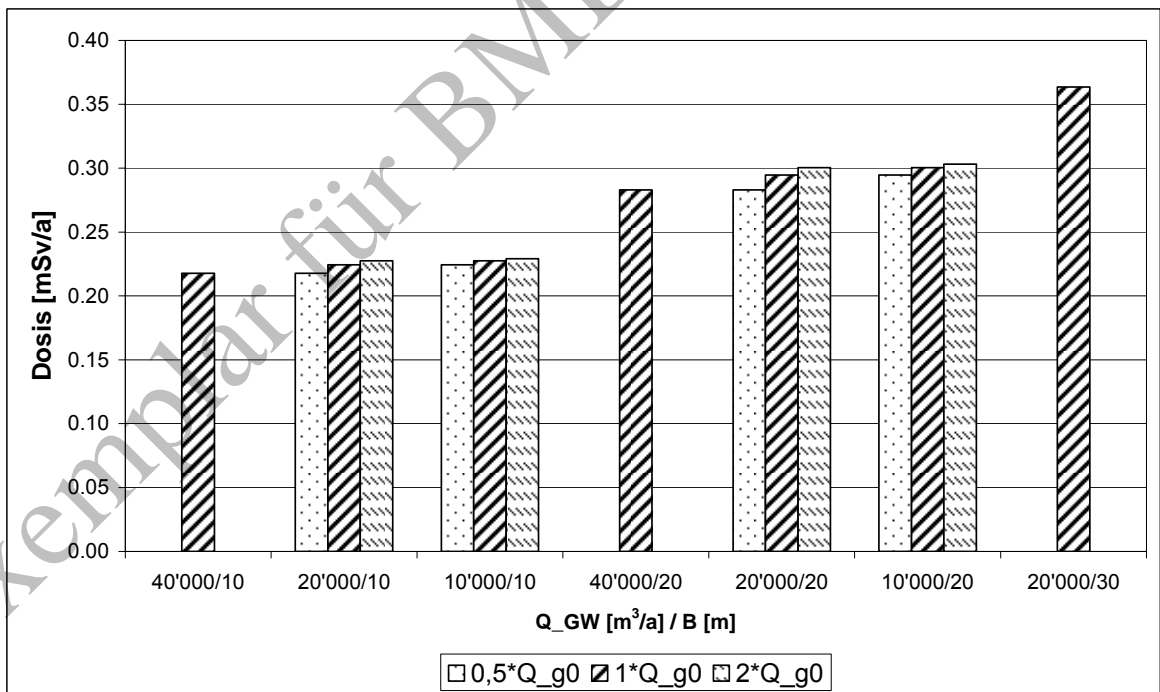


Abbildung A-3: Berechnete Strahlenexposition gemäß Gl. (A-13) für das Biosphären-Szenario „Fischteich“ und den Rechenfall R.V10-K

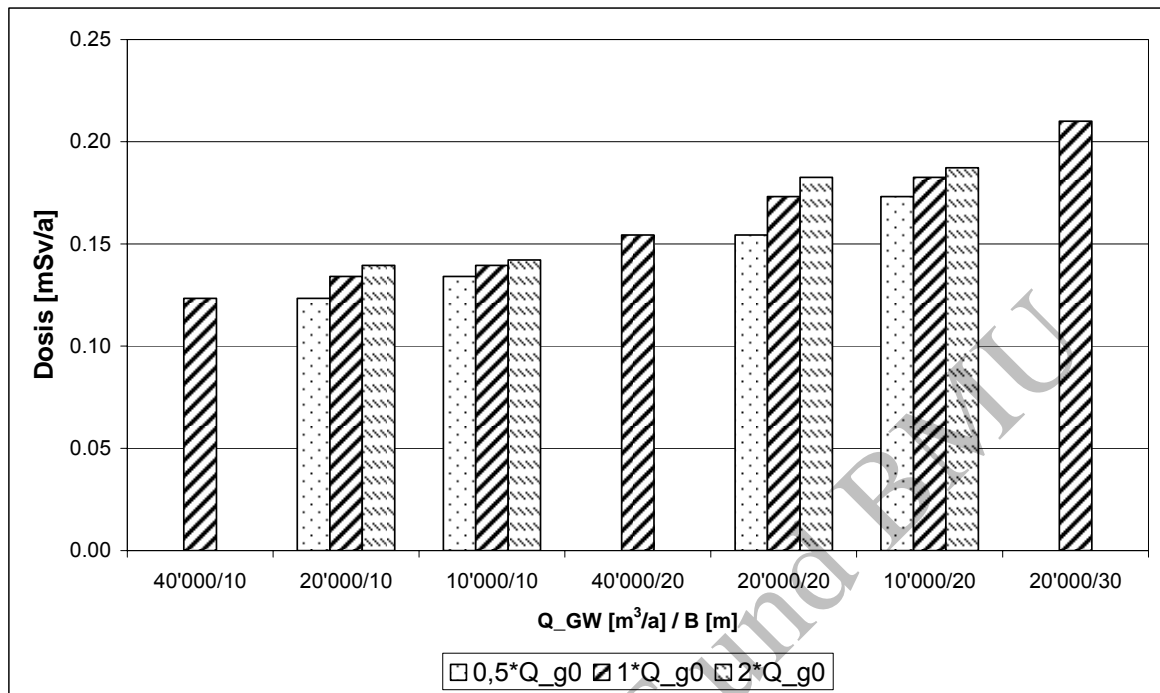


Abbildung A-4: Berechnete Strahlenexposition gemäß Gl. (A-13) für das Biosphären-Szenario „Fischteich“ und den Rechenfall RX.5-K