

GK-100.07.2

Hannover, 11.02.2002

ETS-

**Stellungnahme
zu den
Auswirkungen neuer Erkenntnisse zur Halbwertszeit von Selen 79
auf die Aussagen zur Langzeitsicherheit des geplanten Endlagers Konrad**

1. Einleitung

Das Niedersächsische Umweltministerium hat mit Schreiben vom 28.02.2000 den Technischen Überwachungsverein Hannover / Sachsen-Anhalt e.V. gebeten, die vom Antragsteller /1/ durchgeführten Berechnungen zu den Auswirkungen neuerer Erkenntnisse zur Halbwertszeit des Selen 79 auf die Langzeitsicherheitsanalyse zu prüfen. Im Einzelnen betrifft dies eine Aktualisierung des zu Grunde zu legenden Anfangsinventars an Se 79, die Prüfung der Ausbreitung dieses Inventars vom Endlager zur Biosphäre und die Berechnung der Strahlenexposition aufgrund der veränderten Anfangsdaten. Die Ergebnisse unserer Arbeiten zu diesen Aufgaben behandeln wir in dieser Stellungnahme. Im Kapitel 4 haben wir die Ergebnisse der von der GRS durchgeführten Untersuchungen /9/ herangezogen.

2. Ausgangssituation

In unserem Gutachten zur Langzeitsicherheit des geplanten Endlagers Konrad vom Juli 1997 /2/ haben wir dargelegt, dass nach dem Stand von Wissenschaft und Technik die mögliche Strahlenexposition auf Grund des beantragten Inventars radioaktiver Stoffe in der Schwankungsbreite der heute vorhandenen natürlichen Strahlenexposition und stets unter den Grenzwerten des § 45 StrlSchV liegt.

Jährliche effektive Äquivalentdosen im Bereich von 10^{-5} Sv hatten wir errechnet für eine eingelagerte Aktivität von $7 \cdot 10^{11}$ Bq durch I 129 in einem Zeitraum von ca. 300 000 Jahren bis ca. 360 000 Jahren. Zwei bis fünf Zehnerpotenzen geringere effektive Äquivalentdosen,

die ohne Bedeutung für eine Strahlenexposition sind, ergeben sich für die Radionuklide Cl 36, Ca 41, Tc 99 und das hier betrachtete Se 79 zwischen ca. 300 000 Jahren und ca. 2 Mio. Jahren. Erst nach deutlich längeren Zeiten, d.h. mehreren Millionen Jahren, können weitere Strahlenexpositionen durch langlebige Aktinide wie U 238 und deren Folgeprodukte auftreten.

Veröffentlichungen neuerer wissenschaftlicher Untersuchungen zur Halbwertszeit des oben genannten Radionuklids Se 79 weisen darauf hin, dass der bis Mitte der neunziger Jahre allgemein anerkannte Wert von 65 000 Jahren (vgl. Karlsruher Nuklidkarte bis 6. Auflage) nicht richtig ist. In verschiedenen Literaturstellen werden stattdessen 650 000 Jahre /3/, 480 000 Jahre /4/ und 1,1 Millionen Jahre /5/ genannt.

3. Einfluss geänderter Halbwertszeiten auf das Anfangsinventar an Se 79

Da der Betrachtung des Radionuklids Se 79 im Rahmen der Langzeitsicherheitsanalyse für das geplante Endlager Konrad /2/ die Halbwertszeit von 65 000 Jahren zugrunde lag, hat der Antragsteller eine Nachrechnung der Aussagen zur Langzeitsicherheit bezüglich der Auswirkungen des Se 79 vorgelegt /1/. Darin wird ausgeführt, dass bei Anwendung der längeren Halbwertszeiten zwei gegenläufige Effekte auftreten: Einerseits ergeben sich aus der längeren Lebensdauer höhere Aktivitätskonzentrationen im quartären Grundwasser; andererseits folgt aus dem Berechnungsweg für die Aktivität für längere Halbwertszeiten eine Verringerung der zum Ende der Betriebsphase zu unterstellenden Aktivität des Se 79. Insgesamt ergeben die Antragsteller-Berechnungen mit einer Halbwertszeit von 480 000 Jahren eine Aktivität von $1,6 \cdot 10^{10}$ Bq für das Se 79 zum Ende der Einlagerungsphase, bei $1,1 \cdot 10^6$ Jahren $7,1 \cdot 10^9$ Bq. Für eine Halbwertszeit von 65 000 Jahren war eine Aktivität von $1,2 \cdot 10^{11}$ Bq errechnet worden. /2/. Trotz der niedrigeren Aktivitäten bei den längeren Halbwertszeiten erhält der Antragsteller dann stets höhere Aktivitätskonzentrationen im quartären Grundwasser als aus den Berechnungen mit 65 000 Jahren zur Langzeitsicherheit /1,2/.

Bewertung

Der Plan /7/ für das Endlager wie auch unser Gutachten /2/ hierzu stützen sich bei den Halbwertszeiten der betrachteten Radionuklide auf die Angaben der Karlsruher Nuklidkarte, die noch in ihrer 6. Auflage (1995) für Se 79 eine Halbwertszeit von 65 000 Jahren angibt. Der korrigierte Nachdruck der 6. Auflage von 1998 nennt $4,8 \cdot 10^5$ Jahre. Dieser auch in /4/ genannte Wert wie

auch der 1997 veröffentlichte Wert von $1,1 \cdot 10^6$ Jahren wurden uns vom ORNL bestätigt /6/ und dabei der letztgenannte als „aktuell empfohlen“ bezeichnet. Die Table of Isotopes von 1998 /12/ gibt $1,13 \cdot 10^6$ Jahre an. Da dieser heutige Wissensstand eine weitere Klärung nicht zulässt, halten wir die Vorgehensweise des Antragstellers /1/ für richtig, für angenommene Halbwertszeiten sowohl von 480 000 Jahren als auch von 1,1 Millionen Jahren entsprechend der möglichen Bandbreite die Auswirkungen auf die Aussagen zur Langzeitsicherheit vergleichend zu untersuchen.

Der vom Antragsteller im Plan und seinen Erläuternden Unterlagen benutzte und in /1/ zitierte Zahlenwert für das Se-79-Aktivitätsinventar von $1,2 \cdot 10^{11}$ Bq basiert auf Abbrand-Berechnungen mit dem Programm KORIGEN. Aus U-235-Spaltungen werden die zugehörigen Mole erzeugter Spaltprodukte bestimmt, so auch des Se 79 . Diese Mengenangabe führt für das Endlager Konrad zu einer Se-79-Aktivität von $1,2 \cdot 10^{11}$ Bq bei einer Halbwertszeit von 65 000 Jahren /10/. Hierauf beziehen sich dann sowohl der Plan /7/ als auch die Unterlage /1/. Diese Herkunft der Aktivität von Se 79 begründet die vorgenommene Korrektur der zu unterstellenden Anfangsaktivität /1/: Infolge der veränderten Halbwertszeit ergibt sich für eine angenommene Halbwertszeit von 480 000 Jahren eine Aktivität von $1,6 \cdot 10^{10}$ Bq zum Ende der Betriebsphase; für 1,1 Millionen Jahre Halbwertszeit sind es $7,1 \cdot 10^9$ Bq Se 79.

4. Aktivitätsfreisetzung aus dem Endlagerbereich mit den modifizierten Halbwertszeiten für Se 79

4.1 Antragstellermodell

4.1.1 Bewertung des Rechencodes CHETLIN

Der Antragsteller hat sowohl für den Ausbreitungspfad "Oxford" als auch für den Pfad "Unterkreidetone" Nachrechnungen der Planunterlagen durchgeführt /1/. Beide Ausbreitungspfade wurden im Rahmen des Planfeststellungsverfahrens diskutiert /8, 9/.

Der Antragsteller hat für seine neuen Analysen zum Radionuklidtransport in der Geosphäre das Programm CHETLIN / EXCON eingebracht. Zur Demonstration der Einsetzbarkeit des Rechenprogramms CHETLIN hat der Antragsteller Vergleichsrechnungen mit den in /8/ be-

schriebenen Ausbreitungsrechnungen, welche mit dem Code SWIFT durchgeführt wurden, vorgelegt.

Im ersten Schritt vergleicht der Antragsteller die mit CHETLIN / EXCON ermittelten Strahlenexpositionen für die Nuklide Cl 36, Se 79, Tc 99, I 129 und Ra 226 mit den entsprechenden in /8/ dokumentierten Ergebnissen. Die verwendeten Werte für das Nuklidinventar und die Dosiskonversionsfaktoren wurden /8/ entnommen. Das Ergebnis der Vergleichsrechnung des Antragstellers lautet:

- a) Es besteht eine gute Übereinstimmung der maximalen Werte der Individualdosis und dem Zeitpunkt des Eintritts in das Quartär.
- b) Der Beginn der Freisetzung in das Quartär tritt in der CHETLIN-Rechnung zeitlich verzögert gegenüber der SWIFT-Rechnung ein.
- c) CHETLIN berechnet einen schmaleren Kurvenverlauf als SWIFT.
- d) Für die nicht retardierten Radionuklide I 129 und Cl 36 wird eine Laufzeit bis zum Erreichen des Maximums am Aufpunkt - Übergang in das Quartär - von ca. 315 000 Jahren errechnet.

Bewertung

Die Analysen zeigen eine gute Übereinstimmung in den Freisetzungszeitverläufen beider Berechnungen des Antragstellers. Der Vergleich der Ergebnisse zeigt, dass CHETLIN ein geeignetes Programm zur Simulation von eindimensionalen Transportprozessen im Deckgebirge ist. Die mit CHETLIN berechneten Freisetzungsverläufe zeigen eine geringere numerische Dispersion als die mit dem Programm SWIFT errechneten.

4.1.2 Transportrechnungen für Se 79

Mit dem Programm CHETLIN / EXCON wurden für die Ausbreitungspfade "Oxford" und "Unterkreide" für die drei Halbwertszeiten von Se 79 sowohl Aktivitätskonzentrationen im quartären Grundwasser als auch Strahlenexpositionen für Erwachsene und Kinder berechnet /1/.

Unter der Annahme einer konstanten eingelagerten Se-79-Masse reduziert sich mit größerer Halbwertszeit die eingelagerte Anfangsaktivität (vgl. Kap. 3). Das in den neuen Berechnungen verwendete Aktivitätsinventar von Se 79 wurde gegenüber den Berechnungen in /8/ daher von $1,2 \cdot 10^{11}$ Bq aufgrund der veränderten Halbwertszeiten auf $1,6 \cdot 10^{10}$ Bq (480 000 a) bzw. auf $7,1 \cdot 10^9$ (1,1 Mio. a) reduziert.

Im Ergebnis der Berechnungen für den Oxford-Ausbreitungspfad zeigt sich, dass die größeren Halbwertszeiten von 480 000 Jahren bzw. 1,1 Millionen Jahren zu einer Erhöhung der freigesetzten Aktivitätskonzentrationen im Quartär führen. Für eine Halbwertszeit von 65000 Jahren beträgt die Aktivitätskonzentration für Se 79 ca. $2,7 \cdot 10^6$ Bq/dm³. Die Erhöhung der Halbwertszeit auf 480 000 bzw. 1,1 Millionen Jahre führt zu einer erhöhten Aktivitätskonzentration von $1,6 \cdot 10^{-4}$ Bq/dm³ bzw. $1,3 \cdot 10^{-4}$ Bq/dm³ (Tabelle 1).

Für den Unterkreide-Ausbreitungspfad berechnete der Antragsteller im Planfeststellungsverfahren für Se 79 mit einer Halbwertszeit von 65 000 Jahren eine Aktivitätskonzentration von $1,5 \cdot 10^{-9}$ Bq/dm³ im Quartär. Die Erhöhung der Halbwertszeit auf 480 000 bzw. 1,1 Millionen Jahre bewirkt eine Zunahme der in das Quartär freigesetzten Aktivitätskonzentration auf $2,2 \cdot 10^{-5}$ Bq/dm³ bzw. $4,2 \cdot 10^{-5}$ Bq/dm³ /1/.

Bewertung

Aus den Analysen des Antragstellers folgt, dass bei der Ausbreitung über den Oxford-Pfad die Aktivitätskonzentration am Austritt ins Quartär um ca. den Faktor 60 (bei 480 000 a Halbwertszeit) bzw. 48 (bei 1,1 Mio a) größer ist als der früher angegebene Wert.

Die Auswirkung der Erhöhung der Halbwertszeit des Se 79 auf die freigesetzte Aktivitätskonzentration hat beim Unterkreide-Ausbreitungspfad einen deutlich größeren Einfluss. Gegenüber den Antragstellerrechnungen im Planfeststellungsverfahren beträgt die Erhöhung dabei das 14 700-fache für eine Se-79-Halbwertszeit von 480 000 Jahren und das 28 000-fache für eine von 1,1 Mio. Jahren. Diese Werte sind jedoch ca. um den Faktor 10 kleiner als die entsprechenden Aktivitätskonzentrationen des Oxford-Ausbreitungspfades.

Zur Überprüfung dieser Freisetzungsraten ins Quartär wurde mit dem Rechenprogramm MARNIE für den Oxford-Ausbreitungspfad eine eindimensionale Transportrechnung für I 129 und für die drei Halbwertszeiten von Se 79 durchgeführt. Im Kapitel 4.2 werden Aussagen zur Qualifizierung des Programms

MARNIE getroffen. Die für die Simulation der Freisetzungsberechnung verwendeten Eingabeparameter wurden /8/ entnommen. In dieser Analyse wurde entsprechend den Antragstellerrechnungen ein Verdünnungsfaktor von 70 berücksichtigt. Das Ergebnis dieser Berechnung zeigt Abbildung 1. Ein Vergleich der Aktivitätskonzentrationen mit denen des Antragstellers /1/ ergibt eine gute Übereinstimmung der Ergebnisse (Tabelle 1). Die mit MARNIE ermittelten Aktivitätskonzentrationen liegen geringfügig unter denen des Antragstellers und die Maximalwerte treten etwas später auf.

Tabelle 1: Oxford-Ausbreitungsmodell des Antragstellers: Vergleich der maximalen Aktivitätskonzentrationen und Zeitpunkte der Maxima in den Rechnungen des Antragstellers /1/ und des Gutachters mit MARNIE

Radionuklid (Halbwertszeit)	Radionuklidtransportzeit [a]		Aktivitätskonzentration [Bq/dm ³]	
	Antragsteller	Gutachter	Antragsteller	Gutachter
I 129	$3,3 \cdot 10^5$	$3,7 \cdot 10^5$	$5,6 \cdot 10^{-2}$	$4 \cdot 10^{-2}$
Se 79 (65 000 a)	$6,0 \cdot 10^5$	$7,3 \cdot 10^5$	$2,7 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{-7}$
Se 79 (480 000 a)	$7,4 \cdot 10^5$	$8,2 \cdot 10^5$	$1,6 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-4}$
Se 79 (1,1 Mio. a)	$7,5 \cdot 10^5$	$8,3 \cdot 10^5$	$1,3 \cdot 10^{-4}$	$9 \cdot 10^{-5}$

4.2 Gutachtermodell

Im Rahmen des Planfeststellungsverfahrens hat der Gutachter nicht nur das Vorgehen des Antragstellers für die Gruppe der Spalt- und Aktivierungsprodukte exemplarisch für die Nuklide Jod, Selen und Zirkonium anhand analytischer Lösungen der Transportgleichung überprüft, sondern auch mit dem Transportprogramm SWIFT unter Verwendung eines eigenen Modells für das Fernfeld („Gutachtermodell“) Berechnungen durchgeführt /2, 11/.

Zur Ermittlung der Konsequenzen aus der Halbwertszeiterhöhung für Se 79 wurde das Transportprogramm MARNIE eingesetzt, das dem heutigen Stand von Wissenschaft und Technik entspricht. Das Programm MARNIE wurde durch den Gutachter bereits 1993 eingeführt. Zur Demonstration seiner Einsatzfähigkeit für die hier gestellte Problemstel-

lung werden nachfolgend Vergleichsrechnungen mit den im Planfest-stellungsverfahren durchgeführten Gutachterrechnungen aufgeführt.

4.2.1 Vergleich der MARNIE- SWIFT- Ergebnisse

Den MARNIE-Rechnungen liegt das in den gutachterlichen Berechnungen des Planfest-stellungsverfahrens verwendete Modell eines eindimensionalen Ausbreitungspfades zur Simulation des Transportes von Radionukliden in der Geosphäre und die zugehörigen Eingabegrößen zu Grunde. Das Modell, die verwendeten Eingabegrößen und die Ergebnisse der Rechnungen mit SWIFT werden in /11/ beschrieben.

Zum Vergleich wurden Transportrechnungen für die folgenden Radionuklide durchgeführt: Cs 137, Ca 41, Ni 59, Tc 99 und I 129.

Die mit SWIFT berechneten Aktivitätsströme der anderen Radionuklide wurden direkt aus /11/ entnommen.

Bewertung

Die Ergebnisse der Vergleichsrechnungen verschiedener Einzelnuclide mit den Programmen MARNIE bzw. SWIFT sind in den Abbildungen 2, 3 und 4 dargestellt.

Ein Vergleich des Kurvenverlaufs mit Se 79 konnte nicht durchgeführt werden, da die berechnete maximale Aktivitätskonzentration für Se 79 mit einer Halbwertszeit von 65 000 Jahren am Übergang zum Quartär unterhalb des Schwellenwertes von 10^{-7} Bq/dm³ lag und deshalb der Kurvenverlauf nicht aufgeführt wurde /11/.

Als Ergebnis des Vergleichs berechnet mit Ausnahme von Ni 59 MARNIE eine geringfügig höhere maximale Aktivitätskonzentration als SWIFT. Ferner sind die mit MARNIE berechneten Freisetzungsverläufe zum Teil beträchtlich schmaler, was auf eine kleinere numerische Dispersion und genauere Massenbilanz hinweist. Der mit MARNIE ermittelte Maximalwert der Ni-59-Aktivität ist kleiner, jedoch ist die Differenz zum SWIFT-Wert gering.

Die maximalen Werte werden in den MARNIE-Rechnungen etwas später erreicht als in den SWIFT-Analysen. Für die nicht retardierenden Nuklide Cl 36, Ca 41 und I 129 beträgt die Transportzeit bis zum Auftreten des Maximums am Übergang zum Quartär ca. $3,05 \cdot 10^5$ Jahre.

Insgesamt ergibt sich beim Vergleich der Konzentrationsmaxima eine relativ gute Übereinstimmung zwischen den SWIFT- und den MARNIE- Ergebnissen.

4.2.2 Freisetzungsberechnung für Se 79 mit unterschiedlichen Halbwertszeiten im gutachterlichen Modell

In den Gutachter-Berechnungen zum Planfeststellungsverfahren /11/ betrug die Halbwertszeit von Se 79 65 000 Jahre. Im Verhältnis zur mittleren Laufzeit des retardierten Se 79 von ca. 1,0 Mio. Jahren sind dies etwa 6,5 %; somit zerfällt ein großer Anteil der freigesetzten Selen-Nuklide während des Transportes. In den neuen Berechnungen wurde von einer konstanten eingelagerten Se-79-Masse ausgegangen (s. Kap. 3), so dass die eingelagerte Aktivität gegenüber den gutachterlichen Berechnungen von 1993 von $1,2 \cdot 10^{11}$ Bq für die Halbwertszeit von 480 000 Jahren auf $1,6 \cdot 10^{10}$ Bq bzw. auf $7,1 \cdot 10^9$ Bq für eine Halbwertszeit von 1,1 Millionen Jahren reduziert wurde.

Als Ergebnis der Transportrechnungen bewirken die größeren Halbwertszeiten von 480 000 bzw. 1,1 Mio. Jahren bei etwas längeren Transportzeiten höhere Aktivitätsströme am Übergang zum Quartär.

Auf der Grundlage des Gutachtermodells wurden zum Vergleich drei Transportrechnungen für die drei unterschiedlichen Halbwertszeiten durchgeführt.

Bewertung

Den zeitlichen Verlauf der Aktivitätskonzentration am Übergang zum Quartär für die drei Halbwertszeiten zeigt Abbildung 5. Aus der Abbildung folgt, dass die maximale Aktivitätskonzentration um so größer ist, je größer die Halbwertszeit ist.

Bei einer Halbwertszeit von 65 000 Jahren tritt die maximale Aktivitätskonzentration von $6 \cdot 10^{-8}$ Bq/dm³ nach 1 Million Jahren am Übergang zum Quartär auf, während die maximale Aktivitätskonzentration für die Halbwertszeit von 480 000 Jahren bzw. 1,1 Mio. Jahren zu $6 \cdot 10^{-4}$ Bq/dm³ bzw. $1 \cdot 10^{-3}$ Bq/dm³ berechnet wird. In beiden Berechnungen tritt die maximale Aktivitätskonzentration bei ca. 1,7 Million Jahren auf. Die am Übergang zum Quartär freigesetzte Aktivitätskonzentration erhöht sich um das ca. 10^4 -fache gegenüber der in den gutachterlichen Berechnungen des Planfeststellungsverfahrens für Se 79 ermittelten Freisetzung.

Die mit dem gutachterlichen Modell ermittelten Konzentrationen berücksichtigen keine Verdünnung durch quartäre Grundwässer.

5. Einfluss auf die Strahlenexposition

Die höchste jährliche Strahlenexposition durch Se 79 ergibt sich nach den Angaben des Antragstellers /1/ weiterhin bei der Ausbreitung über das Oxford. Er berechnet als maximale effektive Dosis 0,0008 mSv für den Erwachsenen und 0,0023 mSv für das Kleinkind. Diese Werte liegen unter 1 % des Grenzwertes von 0,3 mSv.

Bewertung

Wir haben die Angaben des Antragstellers zur Strahlenexposition durch Se 79 als Folge der geänderten Halbwertszeit geprüft und können sie als richtig bestätigen.

Mit dem Gutachtermodell und der Halbwertszeit von 1,1 Millionen Jahren ergibt sich ohne Verdünnung eine höchste Aktivitätskonzentration für das Se 79 von $1 \cdot 10^{-3}$ Bq/l. Unter Berücksichtigung der Verdünnung um den Faktor 70 auf dem Weg bis in das quartäre Grundwasser errechnen wir daraus eine maximale jährliche effektive Dosis von 0,000069 mSv für den Erwachsenen und von 0,0002 mSv für das Kleinkind. Diese Werte bestätigen das Ergebnis des Antragstellers, dass auch bei Berücksichtigung der längeren Halbwertszeiten das Nuklid Se 79 nicht relevant zur Strahlenexposition in der Nachbetriebsphase beiträgt.

6. Zusammenfassung

Wir haben, ausgehend von der Unterlage /1/ des Antragstellers, die Auswirkungen einer veränderten Halbwertszeit des Se 79 auf die Aussagen zur Langzeitsicherheit des geplanten Endlagers Konrad untersucht. Dazu haben wir die Aktualisierung des zu Grunde zu legenden Anfangsinventars an Se 79, dessen Ausbreitung vom Endlager zur Biosphäre und die daraus folgende Strahlenexposition sowohl für die Antragsteller-Angaben /1/ als auch für das Gutachtermodell nach /2/ überprüft. Wie auch vom Antragsteller aufgezeigt, ergeben sich für das Se 79 infolge der längeren Halbwertszeiten höhere Aktivitätsströme am Übergang zum Quartär. Auch bei Betrachtung der höchsten ermittelten Aktivitätskonzentration, die im Gutachtermodell und bei der Halbwertszeit von 1,1 Millionen Jahren auftritt, ergeben sich maximale jährliche effektive Dosen von $6,9 \cdot 10^{-5}$ mSv für Erwachsene und $2 \cdot 10^{-4}$ mSv für Kleinkinder. Das Nuklid Se 79 trägt auch bei Berücksichtigung der längeren Halbwertszeiten nicht relevant zur Strahlenexposition in der Nachbetriebsphase bei.

Fachgebiet Strahlenschutz

Gruppe Aktivitätsfluss und Radioökologie
Der Sachverständige