

Abschätzung der im Endlager für hochradioaktive Abfälle durch den Alphazerfall produzierten Menge Helium

Beim Alphazerfall von radioaktiven Stoffen wird bei jedem Zerfall ein Helium-4-Atomkern erzeugt, der durch Elektroneneinfang zu einem Atom des Edelgases Helium umgewandelt wird. In einem Endlager für radioaktive Abfälle entsteht auf diese Weise mit der Zeit eine zunehmende Menge an Heliumgas. Im Folgenden wird grob abgeschätzt, welche Gasmenge durch diesen Prozess im Nachweiszeitraum von einer Million Jahren gebildet wird und welche Relevanz der Prozess für die Entwicklung des Endlagers hat.

Auf Grund der vergleichsweise großen Menge an Alphastrahlern in ausgedienten Brennelementen wird für die Abschätzung im Folgenden ausschließlich dieser Abfalltyp betrachtet. In verglasen hochaktiven Abfällen ist der relative Anteil an Aktiniden durch die Wiederaufarbeitung deutlich reduziert. Das Gesamtaktivitätsinventar I_{Ges} der endzulagernden ausgedienten SWR, DWR und MOX-Brennelemente in Deutschland ist in den Endlagersystemberichten zum Vorhaben RESUS angegeben, wie z. B. (RESUS, 2019).

Solange die Endlagerbehälter intakt sind, sammelt sich das durch den Alphazerfall gebildete Helium zunächst im Inneren jedes einzelnen Behälters an. Daher ist es sinnvoll, eine Betrachtung für einen Behälter durchzuführen. Entsprechend dem Endlagerkonzept für das Endlagersystem in einer Tongesteinsformation größerer Mächtigkeit im Vorhaben RESUS wird im Folgenden von einer Beladung jedes Brennelementbehälters mit 1,9 Brennelementen und einer Gesamtzahl von 11 159 Behältern ausgegangen (RESUS, 2019). Daraus ergibt sich das in Tabelle 1 angegebene Aktivitätsinventar eines einzelnen Behälter I_{Beh} . In Tabelle 1 sind nur diejenigen Radionuklide des Nuklidspektrums angegeben, die einen Alphazerfall aufweisen.

Beim radioaktiven Zerfall entstehen unter Umständen Tochternuklide, die ebenfalls radioaktiv sein und wiederum durch Alphazerfall zerfallen können. Der Zerfallsprozess wird solange fortgesetzt, bis das ursprüngliche Radionuklid durch den radioaktiven Zerfall in

ein stabiles Nuklid umgewandelt worden ist. Die Anzahl der in dieser Kette von Zerfällen stattfindenden Alphazerfälle kann anhand der Nuklidkarte abgezählt werden (vgl. Abbildung 2), ist aber durch Verzweigungen in der Zerfallskette mit unterschiedlichen Abzweigungswahrscheinlichkeiten nicht immer eindeutig bestimmt. Die Alphazerfälle der Tochternuklide in der Zerfallskette müssen bei der Bildung von Helium ebenfalls berücksichtigt werden. Die maximale Anzahl an Alphazerfällen in der Zerfallskette inklusive des Zerfalls von Tochternukliden ist als F_α in Tabelle 1 angegeben.

Durch den radioaktiven Zerfall reduziert sich die Aktivität des ausgedienten Brennstoffs entsprechend dem Zerfallsgesetz mit der Zeit. Eine genaue Bestimmung der beim Zerfall gebildeten Heliummenge kann nur durch eine zeitabhängige Zerfallsrechnung erfolgen. Für eine grobe Abschätzung wird im Folgenden eine obere Grenze für die Heliummenge abgeleitet. Dabei wird zunächst angenommen, dass für die Dauer von zehn Halbwertszeiten $T_{1/2}$ des Ursprungsnuklids dessen Aktivität im Inventar konstant bleibt. Diese Annahme führt zu einer Überschätzung der durch den Alphazerfall erzeugten Heliummenge. Nach zehn Halbwertszeiten ist die Aktivität des Ursprungsnuklids auf weniger als ein Tausendstel der Anfangsaktivität zurückgegangen. Die während dieser Zeit $T_{\max} = 10 \cdot T_{1/2}$ gebildete Menge wird berechnet und die nach dieser Zeitspanne gebildete Menge im Gegenzug vernachlässigt. Falls die Zeitspanne von zehn Halbwertszeiten länger ist als der Nachweiszeitraum, dann wird T_{\max} auf eine Million Jahre beschränkt (vgl. Tabelle 1). Falls die auf diese Weise berechnete Anzahl N_{Hyp} größer ist als die ursprünglich im Inventar enthaltene Anzahl N_{Beh} , dann ist demnach das gesamte Inventar des entsprechenden Radionuklids zerfallen und die Anzahl der Alphazerfälle wird auf N_{Beh} beschränkt (vgl. Tabelle 1).

Weiterhin wird angenommen, dass auch die radioaktiven Zerfälle aller Tochternuklide innerhalb der Zeit T_{\max} stattfinden. Da manche der Tochternuklide eine große Halbwertszeit aufweisen, ist auch dies eine Annahme, die die tatsächliche Anzahl an Alphazerfällen und die dadurch erzeugte Heliummenge überschätzt.

Die Anzahl der im Nachweiszeitraum in einem Brennelementbehälter durch den Alphazerfall gebildeter Heliumatome N_{He} ergibt sich unter Berücksichtigung der oben beschriebenen Annahmen bei Summation über alle Nuklide i durch

$$N_{\text{He}} = \sum_i (F_\alpha \cdot \min(I_{\text{Beh}} \cdot T_{\max} \cdot S_a; N_{\text{Beh}}))_i,$$

zu etwa $4 \cdot 10^{26}$, wobei S_a die Anzahl der Sekunden pro Jahr angibt. Mit der Avogadrozahl N_A (vgl. Tab. 2) ergibt sich daraus eine Stoffmenge

$$n_{\text{He}} = \frac{N_{\text{He}}}{N_A}$$

von $n_{\text{He}} = 665$ Mol, bzw. mit dem Molvolumen V_m

$$V_{\text{He}} = n_{\text{He}} \cdot V_m$$

ein Gasvolumen V_{He} von etwa 15 Nm^3 .

Die Relevanz dieser Gasmenge für die Endlagerentwicklung lässt sich anhand zweier prinzipiell unterschiedlicher Endlagerkonzepte diskutieren, in denen

1. die Endlagerbehälter – z. B. durch eine Kupferummantelung – so ausgelegt sind, dass sie den gesamten Nachweiszeitraum von einer Million Jahren gasdicht bleiben sollen:

In diesem Fall wird das gebildete Helium über den gesamten Nachweiszeitraum im Endlagerbehälter gesammelt. Das in den Behältern zur Verfügung stehende Hohlraumvolumen ist begrenzt, so dass sich die Bildung von Helium entsprechend dem allgemeinen Gasgesetz in einem Anstieg des Gasdrucks im Behälter auswirkt. Bei einem angenommen verfügbaren Hohlraumvolumen im Behälter von $0,5 \text{ m}^3$ unter anfänglichem Atmosphärendruck, würde sich der Druck im Behälter durch die oben angegebene zusätzliche Gasmenge auf 3 MPa nach einer Million Jahren erhöhen¹. Dieser Druck ist geringer als der in einer typischen Endlagerteufe von 800 m zu erwartende Gebirgsdruck von etwa 18 MPa , gegen den die Endlagerbehälter auszulegen sind. Die Heliumproduktion kann bei intakten Behältern eventuell zu einer relevanten Druckerhöhung im Behälter führen, die bei der Behälterausslegung berücksichtigt werden muss. Genauere Betrachtungen zur tatsächlich gebildeten Gasmenge sind dabei notwendig.

2. die Endlagerbehälter aus Stahl bestehen, nur für eine vergleichsweise geringe Lebensdauer ausgelegt sind und mindestens 500 Jahre aerosoldicht bleiben sollen:

¹ Je nach Gebirgstemperatur in der Endlagerteufe kann sich der Druck um bis zu 20% erhöhen

Bei der Verwendung von Behältern aus Stahl entsteht zusätzlich zu dem oben beschriebenen Prozess auch Gas bei der anaeroben Korrosion des Eisens im Kontakt mit Feuchtigkeit. Anzunehmende Massen für den Behälter betragen etwa 5 300 kg Eisen für BSK und 38 000 kg für POLLUX-3-Behälter. Bei der anaeroben Korrosion entsteht pro Kilogramm korrodiertes Eisen eine Gasmenge von knapp 24 Mol Wasserstoff. Verglichen mit der bei vollständiger Korrosion des Behälters entstehenden Gasmenge stellt die Produktion des Heliums damit nur einen Anteil von 0,5 % bei der Verwendung von BSK und 0,1% bei der Verwendung von POLLUX-3-Behältern dar. Die durch den Alphazerfall erzeugte Gasmenge ist damit für die Entwicklung des Gasdrucks im Endlager nur von untergeordneter Bedeutung. Dies gilt insbesondere, da sich das Gas aus der Korrosion von Eisen – bei ausreichender Verfügbarkeit von Wasser (z. B. in einem Endlager im Ton) – innerhalb eines deutlich kürzeren Zeitraums bildet als das Helium beim Alphazerfall.

In einem Bericht der SKB (SKB 2010) werden ebenfalls Analysen zur Heliumproduktion durch den Alphazerfall beschrieben. Die in dem genannten Bericht angegebenen Werte für die Heliumkonzentration und den entstehenden Druck im Behälter deuten auf etwa eine Größenordnung niedrigere Werte hin, als in der hier durchgeführten Abschätzung. Die getroffene Schlussfolgerung ist dort dementsprechend, dass der Prozess für die zukünftige Entwicklung des Endlagers nicht relevant ist. Der Unterschied der Ergebnisse und der Bewertung ist zumindest zum Teil durch die konservativen Annahmen in der hier durchgeführten Abschätzung zu erwarten. Ein genauere Vergleich mit den Werten von SKB ist auf Basis der Angaben in deren Bericht und der hier nicht durchgeführten zeitabhängigen Zerfallsberechnungen nicht möglich.

Aus der hier durchgeführten Abschätzung lässt sich schlussfolgern, dass die Gasbildung von Helium als Folge des Alphazerfalls im Endlager je nach dem zu Grunde liegenden Endlagerkonzept bei der Entwicklung des Endlagersystems berücksichtigt werden muss. Bei der Verwendung von Behältern, die entsprechend dem Sicherheits- und Endlagerkonzept eine Dichtigkeit von einer Million Jahre aufweisen sollen, ist der entstehende Gasdruck bei der Behälterauslegung zu berücksichtigen. In Endlagerkonzepten, bei denen eine starke Gasbildung durch Korrosions- oder Degradationsprozesse zu erwarten ist, spielt die Heliumproduktion aus dem Alphazerfall vermutlich nur eine untergeordnete Rolle.

Eine genauere Berechnung der durch den Alphazerfall erzeugten Heliummenge und die Analyse der daraus resultierenden Konsequenzen ist spezifisch für jedes Endlagerkonzept durchzuführen. Gegenüber der oben durchgeführten groben Abschätzung sind dabei die folgenden zusätzlichen Voraussetzungen und Informationen notwendig:

1. Eine Modellrechnung zum radioaktiven Zerfall der Aktinide inklusive der Tochternuklide, bei der die Anzahl der Alphazerfälle über eine Million Jahre zeitlich integriert wird,
2. ein spezifisches Endlagerkonzept, durch das die Anzahl der Brennelemente pro Endlagerbehälter festgelegt ist und
3. ein spezifisches Behälterkonzept, durch das der verbleibende Hohlraum im Behälter nach deren Beladung festgelegt ist.

Tab. 1: Aktivitätsinventar ausgewählter Radionuklide in ausgedienten Brennelementen und durch Alphazerfall erzeugte Heliummenge (weitere Informationen siehe Text)

Nuklid	Halbwertszeit	Inventar Brennelemente gesamt	Inventar in einem Brennelementbehälter	Anzahl des Nuklids im Inventar	Maximale Anzahl α -Zerfälle in T_{\max}	Maximale Anzahl α -Zerfälle in der Zerfallskette	Anzahl erzeugter Heliumatome
	$T_{1/2}$	I_{Ges}	I_{Beh}	N_{Beh}	N_{Hyp}	F_{α}	N_{He}
	[a]	[Bq]	[Bq]				
Ra-226	$1,60 \cdot 10^{03}$	$4,01 \cdot 10^{09}$	$3,59 \cdot 10^{05}$	$2,62 \cdot 10^{16}$	$1,81 \cdot 10^{17}$	5	$1,31 \cdot 10^{17}$
Th-229	$7,88 \cdot 10^{03}$	$6,17 \cdot 10^{09}$	$5,53 \cdot 10^{05}$	$1,98 \cdot 10^{17}$	$1,37 \cdot 10^{18}$	5	$9,91 \cdot 10^{17}$
Th-230	$7,54 \cdot 10^{04}$	$3,50 \cdot 10^{11}$	$3,14 \cdot 10^{07}$	$1,08 \cdot 10^{20}$	$7,46 \cdot 10^{20}$	6	$6,46 \cdot 10^{20}$
Th-232	$1,41 \cdot 10^{10}$	$2,27 \cdot 10^{08}$	$2,03 \cdot 10^{04}$	$1,30 \cdot 10^{22}$	$6,42 \cdot 10^{17}$	6	$3,85 \cdot 10^{18}$
Pa-231	$3,28 \cdot 10^{04}$	$3,07 \cdot 10^{10}$	$2,75 \cdot 10^{06}$	$4,10 \cdot 10^{18}$	$2,84 \cdot 10^{19}$	6	$2,46 \cdot 10^{19}$
U-232	$6,89 \cdot 10^{01}$	$2,31 \cdot 10^{13}$	$2,07 \cdot 10^{09}$	$6,49 \cdot 10^{18}$	$4,50 \cdot 10^{19}$	6	$3,89 \cdot 10^{19}$
U-233	$1,59 \cdot 10^{05}$	$1,17 \cdot 10^{12}$	$1,05 \cdot 10^{08}$	$7,59 \cdot 10^{20}$	$3,31 \cdot 10^{21}$	6	$4,56 \cdot 10^{21}$
U-234	$2,46 \cdot 10^{05}$	$8,88 \cdot 10^{14}$	$7,96 \cdot 10^{10}$	$8,89 \cdot 10^{23}$	$2,51 \cdot 10^{24}$	7	$6,22 \cdot 10^{24}$
U-235	$7,04 \cdot 10^{08}$	$5,51 \cdot 10^{12}$	$4,94 \cdot 10^{08}$	$1,58 \cdot 10^{25}$	$1,56 \cdot 10^{22}$	7	$1,09 \cdot 10^{23}$
U-236	$2,34 \cdot 10^{07}$	$1,37 \cdot 10^{14}$	$1,23 \cdot 10^{10}$	$1,31 \cdot 10^{25}$	$3,87 \cdot 10^{23}$	7	$2,71 \cdot 10^{24}$
U-238	$4,47 \cdot 10^{09}$	$1,26 \cdot 10^{14}$	$1,13 \cdot 10^{10}$	$2,30 \cdot 10^{27}$	$3,56 \cdot 10^{23}$	8	$2,85 \cdot 10^{24}$
Np-237	$2,14 \cdot 10^{06}$	$2,82 \cdot 10^{14}$	$2,53 \cdot 10^{10}$	$2,47 \cdot 10^{24}$	$7,97 \cdot 10^{23}$	7	$5,58 \cdot 10^{24}$
Pu-238	$8,77 \cdot 10^{01}$	$2,73 \cdot 10^{18}$	$2,45 \cdot 10^{14}$	$9,77 \cdot 10^{23}$	$6,77 \cdot 10^{24}$	9	$8,79 \cdot 10^{24}$
Pu-239	$2,41 \cdot 10^{04}$	$2,05 \cdot 10^{17}$	$1,84 \cdot 10^{13}$	$2,02 \cdot 10^{25}$	$1,40 \cdot 10^{26}$	8	$1,61 \cdot 10^{26}$
Pu-240	$6,56 \cdot 10^{03}$	$4,52 \cdot 10^{17}$	$4,05 \cdot 10^{13}$	$1,21 \cdot 10^{25}$	$8,38 \cdot 10^{25}$	8	$9,68 \cdot 10^{25}$
Pu-242	$3,75 \cdot 10^{05}$	$2,73 \cdot 10^{15}$	$2,45 \cdot 10^{11}$	$4,17 \cdot 10^{24}$	$7,72 \cdot 10^{24}$	10	$4,17 \cdot 10^{25}$
Pu-244	$8,00 \cdot 10^{07}$	$3,16 \cdot 10^{11}$	$2,83 \cdot 10^{07}$	$1,03 \cdot 10^{23}$	$8,93 \cdot 10^{20}$	9	$8,04 \cdot 10^{21}$
Am-241	$4,32 \cdot 10^{02}$	$4,03 \cdot 10^{18}$	$3,61 \cdot 10^{14}$	$7,10 \cdot 10^{24}$	$4,92 \cdot 10^{25}$	9	$6,39 \cdot 10^{25}$
Am-242	$1,41 \cdot 10^{02}$	$1,33 \cdot 10^{16}$	$1,19 \cdot 10^{12}$	$7,65 \cdot 10^{21}$	$5,30 \cdot 10^{22}$	10	$7,65 \cdot 10^{22}$
Am-243	$7,37 \cdot 10^{03}$	$3,56 \cdot 10^{16}$	$3,19 \cdot 10^{12}$	$1,07 \cdot 10^{24}$	$7,41 \cdot 10^{24}$	9	$9,63 \cdot 10^{24}$
Cm-245	$8,50 \cdot 10^{03}$	$1,54 \cdot 10^{15}$	$1,38 \cdot 10^{11}$	$5,34 \cdot 10^{22}$	$3,70 \cdot 10^{23}$	10	$5,34 \cdot 10^{23}$
Cm-246	$4,73 \cdot 10^{03}$	$2,52 \cdot 10^{14}$	$2,26 \cdot 10^{10}$	$4,86 \cdot 10^{21}$	$3,37 \cdot 10^{22}$	10	$4,86 \cdot 10^{22}$
Cm-247	$1,56 \cdot 10^{07}$	$1,40 \cdot 10^{09}$	$1,25 \cdot 10^{05}$	$8,90 \cdot 10^{19}$	$3,96 \cdot 10^{18}$	10	$3,96 \cdot 10^{19}$
Cm-248	$3,40 \cdot 10^{05}$	$3,60 \cdot 10^{09}$	$3,23 \cdot 10^{05}$	$4,99 \cdot 10^{18}$	$1,02 \cdot 10^{19}$	10	$4,99 \cdot 10^{19}$
Summe		$7,47 \cdot 10^{18}$	$6,70 \cdot 10^{14}$				$4,00 \cdot 10^{26}$

Tab. 2: Weitere in diesem Memo verwendete Werte

Parameter	Wert	Einheit
Anzahl Brennelemente pro Behälter	1,9	
Anzahl Behälter im Endlager	11 159	
Avogadrozahl	N_a	$6,02 \cdot 10^{23}$ 1/mol
Sekunden pro Jahr	S_a	$3,15 \cdot 10^7$ s/a
Molvolumen	V_m	0,0224 Nm^3/mol
Behälterhohlraum		0,5 m^3
Normaldruck		0,101 MPa
Masse BSK-Behälter		5 300 kg
Gasproduktion bei der Eisenkorrosion		23,87 $\text{molH}_2/\text{kgFe}$
Wasserverbrauch bei der Eisenkorrosion		0,43 $\text{kgWasser}/\text{kgFe}$

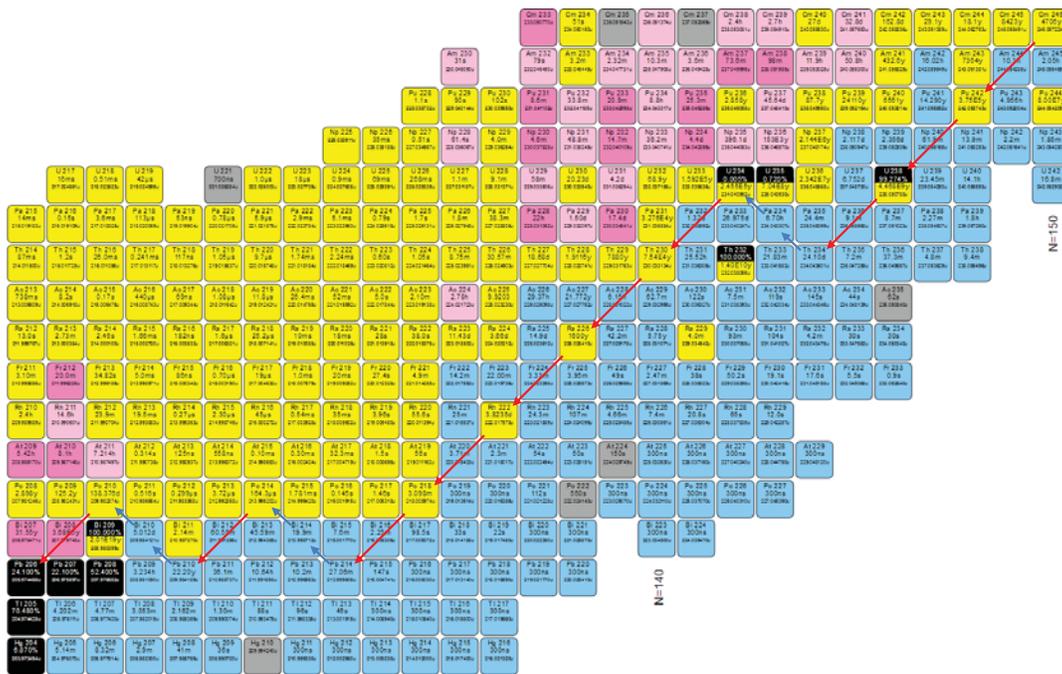


Abb. 1: Ausschnitt aus der Nuklidkarte. Die Zerfallskette vom Cm-246 zu Pb-206 ist beispielhaft eingezeichnet, wobei Alphazerfälle durch rote Pfeile gekennzeichnet sind.

Literatur:

RESUS (2019): Grundlagen zur Bewertung eines Endlagersystems in einer Tongesteinsformation größerer Mächtigkeit (T1) - Ergebnisse aus dem Vorhaben RESUS.

SKB (2010): Fuel and canister process report for the safety assessment SR-Site. TR-10-46, Svensk Kärnbränslehantering AB.