

**Bundesamt für Strahlenschutz
BfS**

PSP-Nr.: WS 1004

**Ermittlung von Art und Menge chemotoxischer Stoffe in allen
Arten radioaktiver Abfälle und Bewertung ihrer Freisetzung im
Hinblick auf das Schutzziel des Wasserhaushaltsgesetzes**

ANHANG E:

**STRAHLENCHEMISCHER ABBAU ODER AUFBAU
CHEMOTOXISCHER ORGANISCHER STOFFE
IN RADIOAKTIVEN ABFÄLLEN**

Abschlussbericht

28. Juni 2005

**B. Buchheim
Buchheim Engineering**

H. von Fellenberg, D. Rohr

Dieser Bericht wurde im Auftrag des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) erstellt. Das BfS behält sich alle Rechte vor. Insbesondere darf dieser Bericht nur mit Zustimmung des BfS zitiert, ganz oder teilweise vervielfältigt, bzw. Dritten zugänglich gemacht werden. Dieser Bericht gibt die Meinung und Auffassung des Auftragnehmers wieder und muss nicht in jedem Falle mit der Meinung des BfS übereinstimmen.

Inhaltsverzeichnis Anhang E

Anhang E:Strahlenchemischer Abbau oder Aufbau chemotoxischer organischer Stoffe in radioaktiven Abfällen.....	3
E.1 “Executive Summary”	3
E.2 Einleitung.....	4
E.3 Liste bekannter chemotoxischer organischer Stoffe, Nomenklatur	4
E.4 Resultate.....	5
E.4.1 COGEMA Bituminierte Fällungen und Konzentrate	5
E.4.2 EDTA-Abbau für ausgewählte Gebinde der Herkunftskategorie K.....	7
E.4.3 Radiolytischer Abbau in der gesamten Herkunftskategorie K (Abfälle aus dem Betrieb der Kernkraftwerke)	8
E.4.4 Rangliste der dosisrelevanten Radionuklide für verschiedene Zeithorizonte in der Herkunftskategorie K	11
E.5 Literaturverzeichnis	12

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: Parameterwerte der chemotoxischen organischen Stoffe, welche in den betrachteten Abfallgebinden der COGEMA Bituminierte Fällungen und Konzentrate vorkommen.	5
Tabelle 2: Gebindedaten sowie die kumulierte Zerfallsenergie und Dosis für die 11 Zeithorizonte ab Konditionierung des Abfallgebindes, sowie die anteilmässige bzw. massenmässige radiolytische Umsetzung der betrachteten fünf Stoffe zu den 11 Zeithorizonten.	6
Tabelle 3: Dosis und umgesetzte Menge (Anteil) von EDTA für das ausgewählte DWR-Gebinde K42040DWR0. Die untere Grenze des EDTA-Abbaus entspricht der Annahme, dass die bei den Beta- und Gamma-Zerfällen freigesetzte Energie sich gleichmässig über das ganze Abfallgebinde verteilt, und nicht nur, wie im Normalfall, über das Abfallprodukt.	7
Tabelle 4: Dosis und umgesetzte Menge (Anteil) von EDTA für das ausgewählte SWR-Gebinde K42050SWR0. Die untere Grenze des EDTA-Abbaus entspricht der Annahme, dass die bei den Beta- und Gamma-Zerfällen freigesetzte Energie sich gleichmässig über das ganze Abfallgebinde verteilt, und nicht nur, wie im Normalfall, über das Abfallprodukt.	8
Tabelle 5: Parameterwerte der chemotoxischen organischen Stoffe, welche in der Herkunftskategorie K betrachtet werden.	9
Tabelle 6: Dosis und umgesetzte Menge (Anteil und in kg) für sieben chemotoxische organische Stoffe in der Herkunftskategorie K. Die umgesetzte Menge für die untere Grenze der Dosis (basierend auf Beta/Gamma inkl. Gebinde) wurde der Übersichtlichkeit halber weggelassen, diese Werte ergeben sich aus den hier angegebenen durch Multiplikation mit $95.2 / 148.2 = 0.642$	10
Tabelle 7: Rangliste der für die Gesamtdosis relevanten Nuklide, geordnet nach Zeithorizonten. Alle weiteren, nicht aufgeführten Nuklide tragen gesamthaft weniger als 0.1 % zur Gesamtdosis bis 1 Million Jahre bei.	11

Anhang E: Strahlenchemischer Abbau oder Aufbau chemotoxischer organischer Stoffe in radioaktiven Abfällen

E.1 "Executive Summary"

Dieser Bericht behandelt den radiolytischen Abbau chemotoxischer organischer Stoffe in radioaktiven Abfällen unter Endlagerbedingungen. Diese Stoffe werden aufgrund von charakteristischen Strukturmerkmalen sowie ihrer Eigenschaften und Wirkungen in 9 Verbindungsklassen eingeteilt und nachstehend genannt, ebenso eine Auswahl bekannter Vertreter der jeweiligen Klasse (in Klammern):

1. Alicyclische und aliphatische Verbindungen (γ -Lindan, Aldrin)
2. Halogenierte Benzole und Phenylderivate (Hexachlorbenzol, PCB's)
3. Halogenierte Derivate von Diphenylmethan (DDT)
4. Anellierte Aromaten (Halogenierte Naphthaline, PAK's)
5. Halogenierte Phenole und Phenoxyverbindungen (Trichlorphenol, Diphenylether)
6. Heterocyclische Verbindungen (PCDD, PCDF)
7. Komplexbildner (EDTA, NTA, Oxalsäure, Citronensäure, Weinsäure)
8. Tenside (Alkylsulfonate, Fettalkoholethoxilate, quaternäre Ammoniumverbindungen)
9. Halogenierte Triazine (Atrazin, Simazin)

Aufbau und Zerfall der eingelagerten Radionuklide wurden beispielhaft für ein Gebinde der Abfallsorte "COGEMA Bituminierte Fällungen und Konzentrate" und 12 Zeithorizonte von Null bis eine Million Jahre berechnet. Daraus wurden die radiolytischen Abbauraten für die folgenden in diesen Gebinden enthaltenen Stoffe konservativ berechnet:

Stoff	Masse pro Abfallgebilde [kg]
Tensid F&K (Cemulcat ODS-17)	1,9500
Flockungshilfsmittel (FHM) F&K (Tecprofloc 83/A22)	0,0164
Tributylphosphat F&K	0,1722
Bitumen F&K	122,0000
Dodecan	0,4018

Weiter wurde der anteilmässige radiolytische Abbau von EDTA für zwei ausgewählte Gebinde (eines für DWR, eines für SWR) aus der Herkunftskategorie K (Abfälle aus dem Betrieb der Kernkraftwerke) berechnet. Schliesslich wurde der radiolytische Abbau der in der Gesamtmasse der Herkunftskategorie K enthaltenen chemotoxischen organischen Stoffe berechnet (anteilmässig und absolut) sowie eine Rangliste der dosisrelevanten Nuklide für die verschiedenen Zeithorizonte erstellt.

Gegenstand der durchgeführten Untersuchung ist die quantitative Darstellung der Zusammenhänge zwischen Energiedosis und dem dadurch erzielten Abbau der betrachteten Modellsubstanzen. Abbauprodukte könnten grundsätzlich Kondensationsreaktionen eingehen, doch fehlen kinetische Daten für solche theoretisch denkbare Reaktionen. Darüber hinaus sind die Reaktionsraten von bimolekularen Reaktionen (Reaktionsordnung > 1) abhängig von der Konzentration der einzelnen Reaktanden. Dies führt auch bei grossen Geschwindigkeitskonstanten nur zu geringen Umsatzraten, da die Konzentrationen der an der Reaktion beteiligten Reaktanden gering sind. Weil die Löslichkeit der meisten hier betrachteten Stoffe sehr klein ist, ist klar, dass solche Reaktionen im Endlager keine bedeutende Rolle spielen werden. Generell gilt, dass die Toxizität von Abbau- und Umwandlungsprodukten organischer chemotoxischer Stoffe gegenüber dem Ausgangsprodukt von Stufe zu Stufe abnimmt.

E.2 Einleitung

Für diesen Bericht wurde ein einzelnes Abfallgebilde "COGEMA Bituminierte Fällungen und Konzentrate" quantitativ modelliert und ausgewertet. Diese Abfallsorte wurde gewählt, weil sie als einzige unter den mittel- und hochaktiven Wiederaufarbeitungsabfällen (W) sowie konditionierten Brennelementen (BE) einen nennenswerten Anteil an chemotoxischen organischen Stoffen im Gebinde enthält, welche strahlenchemischen Abbau oder Aufbau erleiden können.

Für die radiolytischen Berechnungen sind die Strahlungsdosen massgebend, d.h. die pro Kilogramm Abfallproduktmasse absorbierte radioaktive Zerfallsenergie, wobei nach LET HOCH (Alpha-Strahlung mit geringer Reichweite) und LET TIEF (Beta- und Gammastrahlung mit höherer Reichweite) unterschieden wird. Konservativ wird hier unterstellt, dass die gesamte radioaktive Zerfallsenergie in der Abfallproduktmasse absorbiert wird und somit zu radiolytischen Prozessen führen kann. Sofern für die betrachteten chemotoxischen organischen Stoffe nicht unterschiedliche G-Faktoren (als Mass, wieviele Moleküle eines gegebenen Stoffes pro 100 eV absorbiertes Strahlungsenergie umgesetzt werden) für LET HOCH und LET TIEF bekannt sind, wird in der radiolytischen Berechnung nicht zwischen LET HOCH und LET TIEF unterschieden.

Aufbau und Zerfall des Nuklidinventars wurden analytisch streng gelöst und die entsprechenden Formeln im Rechenprogramm ORIGEN 2.1 [1] implementiert. Ebenso wurde ORIGEN 2.1 dahin gehend erweitert, dass die pro Nuklid und Zeitschritt erzeugte totale radioaktive Zerfallsenergie berechnet werden kann, welche die Grundlage für die anschliessende Dosisberechnung bildet.

Weiter wurden zwei repräsentative Gebinde einer Abfallsorte (Verdampferkonzentrate, VDK) der Herkunftskategorie K (Betriebsabfälle), je eines für DWR und SWR, ausgewählt und der anteilmässige strahlenchemische Abbau einer Masseneinheit EDTA berechnet.

Schliesslich wurde das gesamte Nuklidinventar der Herkunftskategorie K (Betriebsabfälle KKW) aufsummiert und der strahlenchemische Abbau oder Aufbau einiger ausgewählter organischer Stoffe bzw. chemotoxischer organischer Stoffe berechnet.

E.3 Liste bekannter chemotoxischer organischer Stoffe, Nomenklatur

Die chemotoxischen organischen Stoffe wurden aufgrund von charakteristischen Strukturmerkmalen sowie ihrer Eigenschaften und Wirkungen in 9 Verbindungsklassen eingeteilt, wobei sich die Auswahl der chemotoxischen Stoffe auch nach der Häufigkeit ihrer praktischen Anwendung richtete. Diese 9 Verbindungsklassen werden nachstehend genannt, ebenso eine Auswahl derjenigen Vertreter der jeweiligen Klasse, für die ein G-Wert bekannt war und berücksichtigt wurde.

Klasse 1: Alicyclische und aliphatische Verbindungen (Lindan, Aldrin, Chlordan, Dieldrin, Endrin, Heptachlor, Telodrin, Stroban, Toxaphen, Mirex, Kelevan, Kepone)

Klasse 2: Halogenierte Benzole und Phenylderivate (Hexachlorbenzol)

Klasse 3: Halogenierte Derivate von Diphenylmethan (DDT, seine Abbauprodukte DDE und DDD, Methoxychlor, Dicofol, Perthane)

Klasse 4: Anellierte Aromaten (ohne Beispiel)

Klasse 5: Halogenierte Phenole und Phenoxyverbindungen (Pentachlorphenol, Tetrachlorphenol, Trichlorphenol)

Klasse 6: Heterocyclische Verbindungen (TCDD, TCDF)

Klasse 7: Komplexbildner (EDTA, NTA, Oxalsäure, Citronensäure, Weinsäure, Harnstoff)

Klasse 8: Tenside (Fettaminethoxilat, Fettalkoholethoxilat, Alkylsulfonat, Alkylphenolpolyglykoether, Diethylen glykolmonobutylether, Ethylendiaminpropylenoxid, quaternäre Ammoniumverbindung)

Klasse 9: Halogenierte Triazine (Atrazin, Simazin)

In Uebereinstimmung mit dem BfS werden folgende Begriffe und Begriffsbestimmungen verwendet:

- **Abfallprodukt:** verarbeiteter radioaktiver Abfall ohne Verpackung
- **Abfallgebinde:** endzulagernde Einheit aus Abfallprodukt und Abfallbehälter
- **Abfallbehälter:** Behälter zur Aufnahme eines Abfallproduktes (z.B. Fass, Betonbehälter, Gussbehälter, Container)
- **Abfallmatrix:** Ausgehärtetes Fixierungsmittel, in dem radioaktiver Abfall fixiert ist
- **Fixierungsmittel:** Material zur Fixierung von radioaktivem Abfall (z.B. Glas, Zement/Beton, Bitumen, Kunststoff)

E.4 Resultate

E.4.1 COGEMA Bituminierte Fällungen und Konzentrate

Die Berechnung des radiolytischen Abbaus erfolgte unter folgenden Annahmen und Randbedingungen:

Der radiolytische Abbau beginnt zum Zeitpunkt der Konditionierung der Abfallgebinde, also in jenem Moment, wo das Abfallprodukt durch das Mischen des radioaktiven Abfalls mit dem Fixierungsmittel Bitumen entsteht. Dieser Zeitpunkt ist gemäss Angaben von COGEMA zehn Jahre nach Entladen der Brennelemente aus dem Reaktor. Von diesem Zeitpunkt an werden 11 Zeithorizonte gerechnet (30, 50, 100, 300, 1.000, 3.000, 10.000, 30.000, 100.000, 300.000, 1 Million Jahre).

Die Parameterwerte der untersuchten chemotoxischen organischen Stoffe sind in der nachstehenden Tabelle 1 aufgeführt. Die Tabelle enthält die Molmassen und die G-Werte und daraus berechnet die substanzspezifische radiologische Abbaudosis, bei deren Erreichen der Bruchteil der noch vorhandenen Stoffmasse auf 1/e (ca. 36,8%) gesunken ist, bzw. der Bruchteil der umgesetzten Stoffmasse 63,2% beträgt. Weiter enthält die Tabelle auch die Stoffmassen in kg pro Gebinde

Stoff	Molmasse [g/mol]	G-Wert [Umsetzungen/100eV]	Substanz- spezifische radiologische Abbaudosis (63,2 %) [Gy]
Cemulcat ODS-17	1290,0	7,50E+00	9,97E+05
Tecprofloc 83/A22	94,0	1,60E+00	6,41E+07
Tributylphosphat	266,3	2,50E+00	1,45E+07
Bitumen	900,0	1,70E+00	6,31E+06
Dodecan	170,3	6,70E+00	8,45E+06
Stoff	Masse pro Abfallgebinde [kg]		
Cemulcat ODS-17	1,9500		
Tecprofloc 83/A22	0,0164		
Tributylphosphat	0,1722		
Bitumen	122,0000		
Dodecan	0,4018		

Tabelle 1: Parameterwerte der organischer bzw. chemotoxischer organischer Stoffe, welche in den betrachteten Abfallgebänden der Abfallsorte "COGEMA Bituminierte Fällungen und Konzentrate" vorkommen.

Die folgende Tabelle zeigt die relevanten Gebindeparameter sowie die in den betrachteten Zeithorizonten durch die radioaktiven Zerfälle freigesetzte Energie in Joule. Für die Berechnung der Dosis wird konservativ angenommen, dass die gesamte bei den Zerfällen freigesetzte Energie im Abfallprodukt absorbiert wird. Dadurch erhält man eine obere Grenze für den radiolytischen Abbau im Gebinde. Abschätzungen ergeben, dass dieser Wert die tatsächlich im Abfallprodukt deponierte mittlere Dosis um höchstens 10 bis 15% überschätzt, somit abdeckend ist.

Für die 11 verschiedenen Zeithorizonte nach der Konditionierung sind jeweils die Anteile der umgesetzten Masse jedes untersuchten Stoffes aufgeführt (Angaben in %), sowie die tatsächlich umgesetzte Masse in kg.

Radiolytischer Abbau ausgewählter Stoffe pro Gebinde						
Abfallgebinde/-sorte:	COGEMA Bituminierte Fällungen und Konzentrate					
Basis	1 Gebinde					
Masse Abfallprodukt [kg]	204,0					
Masse Gebinde [kg]	224,0					
Zeit nach Konditionierung [a]	0 a	30 a	50 a	100 a	300 a	1.000 a
Zerfallsenergie kumuliert [J]	0,000E+00	1,479E+08	2,196E+08	3,525E+08	6,698E+08	1,261E+09
Dosis kumuliert [Gy]	0,000E+00	7,250E+05	1,077E+06	1,728E+06	3,283E+06	6,183E+06
Stoff	Umgesetzte Masse (Anteil)					
	0 a	30 a	50 a	100 a	300 a	1.000 a
Cemulcat ODS-17	0,00%	51,66%	66,03%	82,32%	96,28%	99,80%
Tecprofloc 83/A22	0,00%	1,12%	1,66%	2,66%	4,99%	9,19%
Tributylphosphat	0,00%	4,88%	7,16%	11,24%	20,27%	34,73%
Bitumen	0,00%	3,76%	5,53%	8,73%	15,93%	27,88%
Dodecan	0,00%	8,22%	11,96%	18,49%	32,18%	51,88%
Stoff	Umgesetzte Masse [kg]					
	0 a	30 a	50 a	100 a	300 a	1.000 a
Cemulcat ODS-17	0,0000	1,0074	1,2875	1,6053	1,8775	1,9460
Tecprofloc 83/A22	0,0000	0,0002	0,0003	0,0004	0,0008	0,0015
Tributylphosphat	0,0000	0,0084	0,0123	0,0194	0,0349	0,0598
Bitumen	0,0000	4,5868	6,7489	10,6500	19,4384	34,0141
Dodecan	0,0000	0,0330	0,0480	0,0743	0,1293	0,2084
Zeit nach Konditionierung [yr]	3.000 a	10.000 a	30.000 a	100.000 a	300.000 a	1 Mio a
Zerfallsenergie kumuliert [J]	2,071E+09	3,793E+09	6,290E+09	9,412E+09	1,442E+10	2,644E+10
Dosis kumuliert [Gy]	1,015E+07	1,859E+07	3,083E+07	4,614E+07	7,068E+07	1,296E+08
Stoff	Umgesetzte Masse (Anteil)					
	3.000 a	10.000 a	30.000 a	100.000 a	300.000 a	1 Mio a
Cemulcat ODS-17	100,00%	100,00%	100,00%	100,00%	100,00%	100,00%
Tecprofloc 83/A22	14,64%	25,17%	38,17%	51,30%	66,79%	86,75%
Tributylphosphat	50,37%	72,28%	88,09%	95,86%	99,24%	99,99%
Bitumen	41,53%	62,57%	80,40%	91,27%	97,61%	99,89%
Dodecan	69,91%	88,91%	97,39%	99,57%	99,98%	100,00%
Stoff	Umgesetzte Masse [kg]					
	3.000 a	10.000 a	30.000 a	100.000 a	300.000 a	1 Mio a
Cemulcat ODS-17	1,9499	1,9500	1,9500	1,9500	1,9500	1,9500
Tecprofloc 83/A22	0,0024	0,0041	0,0063	0,0084	0,0110	0,0142
Tributylphosphat	0,0867	0,1245	0,1517	0,1651	0,1709	0,1722
Bitumen	50,6657	76,3412	98,0922	111,3530	119,0899	121,8708
Dodecan	0,2809	0,3572	0,3913	0,4001	0,4017	0,4018

Tabelle 2: Gebindedaten sowie die kumulierte Zerfallsenergie und Dosis für die 11 Zeithorizonte ab Konditionierung des Abfallgebindes, sowie die anteilmässige bzw. massenmässige radiolytische Umsetzung der betrachteten fünf Stoffe zu den 11 Zeithorizonten.

Es fällt auf, dass wegen der hohen Dosisleistung ein erheblicher strahlenchemischer Abbau stattfindet. So wird das Tensid Cemulcat ODS-17 in den ersten dreissig Jahren zur Hälfte abgebaut. Aber auch das Fixierungsmittel Bitumen wird massenmässig stark abgebaut: Nach dreissig Jahren (also noch vor dem Referenzzeitpunkt 01.01.2030) sind bereits rund 4.5 kg Bitumen strahlenchemisch abgebaut (verbunden mit einer entsprechenden Gasentwicklung), für den Abbau der Hälfte des gesamten Bitumens sind geschätzte 5000 Jahre nötig.

E.4.2 EDTA-Abbau für ausgewählte Gebinde der Herkunftskategorie K

Für zwei ausgewählte Gebinde mit Betriebsabfällen der Abfallsorte Verdampferkonzentrate (VDK), eines für DWR-VDK und eines für SWR-VDK, wird der anteilmässige radiolytische Abbau von EDTA berechnet. Dabei werden für die Abbaurate zwei Fälle betrachtet: im ersten Fall wird unterstellt, dass die gesamte Energie, welche bei Beta- und Gamma-Zerfällen freigesetzt wird, im Abfallprodukt absorbiert wird; dies stellt eine obere Grenze der zu erwartenden Dosis dar. Im zweiten Fall wird angenommen, dass die bei den Beta- und Gamma-Zerfällen freigesetzte Energie sich gleichmässig über die Gesamtmasse des Abfallgebindes verteilt; dies stellt eine untere Grenze der zu erwartenden Dosis dar. Die Energie, welche bei den Alpha-Zerfällen freigesetzt wird, wird in jedem Fall direkt im Abfallprodukt absorbiert, so dass der Anteil der Alpha-Dosis in beiden Fällen der gleiche ist.

In der folgenden Tabelle sind die Dosis und der radiolytische Abbau von EDTA für das ausgewählte DWR-Gebinde aufgeführt.

EDTA-Abbau für Gebinde der Abfallsorte K42040DWR0							
Gebinde/Abfallsorte:	K42040DWR0 (Betonbehälter I)						
Basis	1 Gebinde						
Masse Abfallprodukt [kg]	689,4 :						
Masse Gebinde [kg]	2612,4 :						
Dosis	01.01.2022	01.01.2030	30 a	50 a	100 a	300 a	1.000 a
Gesamtdosis [Gr]	0,00E+00	4,11E+03	1,07E+04	1,28E+04	1,53E+04	1,65E+04	1,65E+04
Alphadosis [Gr]	0,00E+00	1,58E-01	7,56E-01	1,13E+00	1,97E+00	4,45E+00	9,09E+00
Beta/Gamma Dosis [Gr]	0,00E+00	4,10E+03	1,07E+04	1,28E+04	1,53E+04	1,65E+04	1,65E+04
Beta/Gamma Dosis inkl. Gebinde [Gr]	0,00E+00	1,08E+03	2,82E+03	3,39E+03	4,04E+03	4,35E+03	4,35E+03
Stoff	Umgesetzte Masse (Anteil)						
EDTA	0,00E+00	2,49E-04	6,47E-04	7,77E-04	9,28E-04	9,97E-04	9,98E-04
EDTA (untere Grenze)	0,00E+00	6,56E-05	1,71E-04	2,05E-04	2,45E-04	2,63E-04	2,64E-04
Dosis	3.000 a	10.000 a	30.000 a	100.000 a	300.000 a	1 Mio a	
Gesamtdosis [Gr]	1,65E+04	1,65E+04	1,66E+04	1,68E+04	1,70E+04	1,72E+04	
Alphadosis [Gr]	1,46E+01	2,54E+01	4,04E+01	5,44E+01	6,29E+01	8,54E+01	
Beta/Gamma Dosis [Gr]	1,65E+04	1,65E+04	1,66E+04	1,67E+04	1,69E+04	1,71E+04	
Beta/Gamma Dosis inkl. Gebinde [Gr]	4,35E+03	4,36E+03	4,37E+03	4,41E+03	4,46E+03	4,52E+03	
Stoff	Umgesetzte Masse (Anteil)						
EDTA	9,99E-04	1,00E-03	1,00E-03	1,01E-03	1,02E-03	1,04E-03	
EDTA (untere Grenze)	2,64E-04	2,64E-04	2,65E-04	2,68E-04	2,71E-04	2,75E-04	

Tabelle 3: Dosis und umgesetzte Masse (Anteil) von EDTA für das ausgewählte DWR-Gebinde der Abfallsorte K42040DWR0. Die untere Grenze des EDTA-Abbaus entspricht der Annahme, dass die bei den Beta- und Gamma-Zerfällen freigesetzte Energie sich gleichmässig über das ganze Abfallgebinde verteilt, und nicht nur, wie im Normalfall, über das Abfallprodukt.

Aus der Tabelle ist ersichtlich, dass der radiolytische Abbau von EDTA nicht über rund 0.1% der vorhandenen EDTA-Masse ansteigt, und dass dieser Abbau im Wesentlichen innerhalb der ersten 300 Jahre erfolgt. Die untere Grenze entspricht einem Abbau von knapp 0.028%.

In der folgenden Tabelle sind die Dosis und der radiolytische Abbau von EDTA für das ausgewählte SWR-Gebinde aufgeführt.

EDTA-Abbau für Gebinde der Abfallsorte K42050SWR0							
Gebinde/Abfallsorte:	K42050SWR0 (Betonbehälter I)						
Basis	1 Gebinde						
Masse Abfallprodukt [kg]	689,4 :						
Masse Gebinde [kg]	2612,4 :						
Dosis	01.01.2022	01.01.2030	30 a	50 a	100 a	300 a	1.000 a
Gesamtdosis [Gr]	0,00E+00	3,89E+03	5,70E+03	6,14E+03	6,65E+03	6,90E+03	6,92E+03
Alphadosis [Gr]	0,00E+00	2,41E-01	7,24E-01	1,01E+00	1,65E+00	3,59E+00	8,83E+00
Beta/Gamma Dosis [Gr]	0,00E+00	3,89E+03	5,70E+03	6,14E+03	6,65E+03	6,90E+03	6,91E+03
Beta/Gamma inkl. Gebinde [Gr]	0,00E+00	1,03E+03	1,50E+03	1,62E+03	1,75E+03	1,82E+03	1,83E+03
Stoff	Umgesetzte Masse (Anteil)						
EDTA	0,00E+00	2,36E-04	3,45E-04	3,72E-04	4,03E-04	4,18E-04	4,19E-04
EDTA (untere Grenze)	0,00E+00	6,22E-05	9,11E-05	9,82E-05	1,06E-04	1,10E-04	1,11E-04
Dosis	3.000 a	10.000 a	30.000 a	100.000 a	300.000 a	1 Mio a	
Gesamtdosis [Gr]	6,96E+03	7,06E+03	7,19E+03	7,38E+03	7,61E+03	7,79E+03	
Alphadosis [Gr]	2,18E+01	5,52E+01	1,02E+02	1,42E+02	1,51E+02	1,58E+02	
Beta/Gamma Dosis [Gr]	6,94E+03	7,00E+03	7,09E+03	7,24E+03	7,46E+03	7,63E+03	
Beta/Gamma inkl. Gebinde [Gr]	1,83E+03	1,85E+03	1,87E+03	1,91E+03	1,97E+03	2,01E+03	
Stoff	Umgesetzte Masse (Anteil)						
EDTA	4,21E-04	4,25E-04	4,31E-04	4,40E-04	4,54E-04	4,64E-04	
EDTA (untere Grenze)	1,11E-04	1,13E-04	1,15E-04	1,17E-04	1,21E-04	1,24E-04	

Tabelle 4: Dosis und umgesetzte Masse (Anteil) von EDTA für das ausgewählte SWR-Gebinde der Abfallsorte K42050SWR0. Die untere Grenze des EDTA-Abbaus entspricht der Annahme, dass die bei den Beta- und Gamma-Zerfällen freigesetzte Energie sich gleichmässig über das ganze Abfallgebände verteilt, und nicht nur, wie im Normalfall, über das Abfallprodukt.

Aus der Tabelle ist ersichtlich, dass der radiolytische Abbau von EDTA nicht über rund 0.05% der vorhandenen EDTA-Masse ansteigt, und dass dieser Abbau im Wesentlichen innerhalb der ersten 300 Jahre erfolgt. Die untere Grenze entspricht einem Abbau von rund 0.012%.

E.4.3 Radiolytischer Abbau in der gesamten Herkunftskategorie K (Abfälle aus dem Betrieb der Kernkraftwerke)

In diesem Abschnitt wird das Gesamtinventar der Herkunftskategorie K sowie der radiolytische Abbau der darin enthaltenen chemotoxischen organischen Stoffe betrachtet. Die Parameterwerte für 7 organische Stoffe sind in der nachstehenden Tabelle aufgeführt.

Stoff	Molmasse [g/mol]	G-Wert [Umsetzungen /100eV] LET HOCH	Substanz- spezifische radiologische Abbaudosis (63.2 %) [Gy] LET HOCH	G-Wert [Umsetzungen /100eV] LET TIEF	Substanz- spezifische radiologische Abbaudosis (63.2 %) [Gy] LET TIEF
Citronensäure	192,1	1,60E-01	3,14E+08	8,00E-01	6,28E+07
Oxalsäure	90,0	1,60E-01	6,70E+08	1,60E-01	6,70E+08
Weinsäure	150,0	1,60E-01	4,02E+08	1,60E-01	4,02E+08
Anionische Tenside (DDBSA Na-Salz)	348,5	1,40E-01	1,98E+08	1,40E-01	1,98E+08
EDTA	292,3	4,00E-01	8,25E+07	2,00E+00	1,65E+07
Nichtionische Tenside (Dodecylpolygly.7 ÄO)	494,7	1,00E-01	1,95E+08	1,00E-01	1,95E+08
TCDD	322,0	2,60E-02	1,15E+09	2,60E-02	1,15E+09

Stoff	Masse in Herkunftskategorie K [Mg]
Citronensäure	5,444E+01
Oxalsäure	3,827E+01
Weinsäure	0,000E+00
Anionische Tenside (DDBSA Na-Salz)	9,278E+01
EDTA	2,131E-03
Nichtionische Tenside (Dodecylpolygly.7 ÄO)	1,244E+02
TCDD	0,000E+00

Tabelle 5: Parameterwerte der chemotoxischen organischen Stoffe, welche in der Herkunftskategorie K betrachtet werden.

Die folgende Tabelle enthält die Dosiswerte für das Gesamtinventar der Herkunftskategorie K sowie die anteilmässigen wie auch die absoluten Werte des radiolytischen Abbaus der sieben betrachteten Stoffe.

Radiolytischer Abbau in Herkunftskategorie K							
Basis	Gesamtinventar Herkunftskategorie K						
Masse Abfallprodukt [Mg]	95208,300						
Masse Abfallprodukt + Verfüllmaterial [Mg]	148195,500						
Dosis	01.01.2030	30 a.	50 a.	100 a.	300 a.	1.000 a.	
Gesamtdosis [Gr]	0,00E+00	3,04E+03	3,83E+03	4,79E+03	5,39E+03	5,47E+03	
Alphadosis [Gr]	0,00E+00	8,26E-01	1,31E+00	2,37E+00	5,48E+00	1,20E+01	
Beta/Gamma Dosis [Gr]	0,00E+00	3,03E+03	3,83E+03	4,79E+03	5,38E+03	5,46E+03	
Beta/Gamma inkl. Gebinde [Gr]	0,00E+00	1,95E+03	2,46E+03	3,07E+03	3,46E+03	3,51E+03	
Stoff	Umgesetzte Masse (Anteil)						
Citronensäure	0,00E+00	4,83E-05	6,10E-05	7,62E-05	8,57E-05	8,70E-05	
Oxalsäure	0,00E+00	4,53E-06	5,72E-06	7,14E-06	8,04E-06	8,17E-06	
Weinsäure	0,00E+00	7,55E-06	9,53E-06	1,19E-05	1,34E-05	1,36E-05	
Anionische Tenside (DDBSA Na-Salz)	0,00E+00	1,53E-05	1,94E-05	2,42E-05	2,72E-05	2,77E-05	
EDTA	0,00E+00	1,84E-04	2,32E-04	2,90E-04	3,26E-04	3,31E-04	
Nichtionische Tenside (Dodecylpolygly.7 ÄO)	0,00E+00	1,56E-05	1,96E-05	2,45E-05	2,76E-05	2,81E-05	
TCDD	0,00E+00	2,63E-06	3,32E-06	4,15E-06	4,67E-06	4,75E-06	
Stoff	Masse [kg]	Umgesetzte Masse [kg]					
Citronensäure	5,44E+04	0,000	2,631	3,320	4,149	4,666	4,738
Oxalsäure	3,83E+04	0,000	0,173	0,219	0,273	0,308	0,313
Weinsäure	0,00E+00	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
Anionische Tenside (DDBSA Na-Salz)	9,28E+04	0,000	1,424	1,797	2,246	2,527	2,568

EDTA	2,13E+00	0,000	0,000	0,000	0,001	0,001	0,001
Nichtionische Tenside (Dodecylpolygly.7 ÄO)	1,24E+05	0,000	1,936	2,443	3,054	3,435	3,492
TCDD	0,00E+00	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
Dosis							
		3.000 a.	10.000 a.	30.000 a.	100.000 a.	300.000 a.	1 Mio a.
Gesamtdosis [Gr]		5,52E+03	5,66E+03	5,96E+03	6,59E+03	7,21E+03	7,46E+03
Alphadosis [Gr]		2,26E+01	4,67E+01	8,03E+01	1,10E+02	1,23E+02	1,49E+02
Beta/Gamma Dosis [Gr]		5,50E+03	5,62E+03	5,88E+03	6,48E+03	7,09E+03	7,31E+03
Beta/Gamma inkl. Gebinde [Gr]		3,53E+03	3,61E+03	3,78E+03	4,16E+03	4,55E+03	4,70E+03
Stoff							
		Umgesetzte Masse (Anteil)					
Citronensäure		8,77E-05	8,96E-05	9,39E-05	1,03E-04	1,13E-04	1,17E-04
Oxalsäure		8,24E-06	8,45E-06	8,89E-06	9,83E-06	1,08E-05	1,11E-05
Weinsäure		1,37E-05	1,41E-05	1,48E-05	1,64E-05	1,79E-05	1,86E-05
Anionische Tenside (DDBSA Na-Salz)		2,79E-05	2,86E-05	3,01E-05	3,33E-05	3,65E-05	3,77E-05
EDTA		3,34E-04	3,41E-04	3,57E-04	3,94E-04	4,31E-04	4,45E-04
Nichtionische Tenside (Dodecylpolygly.7 ÄO)		2,83E-05	2,90E-05	3,05E-05	3,38E-05	3,70E-05	3,82E-05
TCDD		4,79E-06	4,91E-06	5,17E-06	5,71E-06	6,26E-06	6,47E-06
Stoff							
		Masse [kg]	Umgesetzte Masse [kg]				
Citronensäure		5,44E+04	4,774	4,878	5,110	5,634	6,166
Oxalsäure		3,83E+04	0,316	0,324	0,340	0,376	0,412
Weinsäure		0,00E+00	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
Anionische Tenside (DDBSA Na-Salz)		9,28E+04	2,591	2,657	2,795	3,090	3,383
EDTA		2,13E+00	0,001	0,001	0,001	0,001	0,001
Nichtionische Tenside (Dodecylpolygly.7 ÄO)		1,24E+05	3,524	3,613	3,801	4,201	4,599
TCDD		0,00E+00	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000

Tabelle 6: Dosis und umgesetzte Masse (Anteil und in kg) für 7 chemotoxische organische Stoffe in der Herkunftskategorie K. Die umgesetzte Masse für die untere Grenze der Dosis (basierend auf Beta/Gamma inkl. Gebinde) wurde der Übersichtlichkeit halber weggelassen, diese Werte ergeben sich aus den hier angegebenen durch Multiplikation mit dem o.g. Massenverhältnis $95.208 \text{ Mg} / 148.195 \text{ Mg} = 0.642$.

Die Tabelle zeigt, dass die umgesetzten Massenanteile sich in der Grössenordnung von rund 6.5 ppm (für TCDD) bis 445 ppm (EDTA) nach einer Million Jahre bewegen. Bei den absoluten umgesetzten Massen dominieren Citronensäure mit rund 6,36 kg und nichtionische Tenside mit rund 4,76 kg. Auch hier geschieht der überwiegende Teil des radiolytischen Abbaus während der ersten rund 1.000 Jahre.

E.4.4 Rangliste der dosisrelevanten Radionuklide für verschiedene Zeithorizonte in der Herkunftskategorie K

Die einzelnen Nuklide tragen unterschiedlich viel bei zur Gesamtdosis. In der nachstehenden Tabelle wurde eine Rangliste erstellt gemäss dem Beitrag der einzelnen Nuklide zur Gesamtdosis in innerhalb eines gegebenen Zeitraumes. Dabei stellt sich heraus, dass eine Gruppe von 7 Nukliden (Cs-137, Ba-137m, Co-60, Ni-63, Sr-90, Y-90, H-3) die Gesamtdosis von 30 bis 3.000 Jahren mit einem Anteil von zusammen über 98% dominieren. Erst nach 10.000 Jahren beginnen einige weitere Nuklide (Ni-59, C-14, Pu-239, Pu-240) eine Rolle zu spielen. Nach 100.000 Jahren gesellen sich noch Tc-99, Cl-36 und Sb-126m dazu. Alle weiteren Nuklide tragen bis 1 Million Jahre gesamthaft nur zu rund 1.1% der Gesamtdosis bei.

In der nachstehenden Tabelle sind die dosisrelevanten Nuklide gemäss ihrem Beitrag in den verschiedenen Zeithorizonten aufgetragen. Bei den in der Tabelle nicht aufgeführten Zeithorizonten gilt die Rangliste des vorangehenden Zeitpunktes.

Rangliste der für die Gesamtdosis relevanten Nuklide												
Dosis in [Gy]												
Cutoff 97%												
Herkunftskategorie K												
Nuklid	30 a	Anteil	kumul.	10.000 a	Anteil	kumul.	100.000 a	Anteil	kumul.	1 Mio a	Anteil	kumul.
CS-137	1,05E+03	34,6%	34,6%	2,10E+03	37,1%	37,1%	2,10E+03	31,9%	31,9%	2,10E+03	28,2%	28,2%
CO-60	9,88E+02	32,6%	67,2%	1,01E+03	17,8%	54,9%	1,01E+03	15,3%	47,2%	1,01E+03	13,5%	41,7%
BA-137M	8,07E+02	26,6%	93,8%	1,61E+03	28,5%	83,4%	1,61E+03	24,5%	71,7%	1,61E+03	21,6%	63,3%
NI-63	1,12E+02	3,7%	97,4%	5,72E+02	10,1%	93,5%	5,72E+02	8,7%	80,4%	5,72E+02	7,7%	71,0%
Y-90	6,18E+01	2,0%	99,5%	1,21E+02	2,1%	95,6%	1,21E+02	1,8%	82,2%	1,21E+02	1,6%	72,6%
SR-90	1,30E+01	0,4%	99,9%	2,54E+01	0,4%	96,1%	2,54E+01	0,4%	82,6%	2,54E+01	0,3%	72,9%
H-3	1,48E+00	0,0%	99,9%	1,82E+00	0,0%	96,1%	1,82E+00	0,0%	82,6%	1,82E+00	0,0%	73,0%
NI-59				1,31E+02	2,3%	98,4%	8,92E+02	13,5%	96,2%	1,48E+03	19,8%	92,8%
C-14				31,72	0,6%	99,0%	45,21	0,7%	96,9%	45,21	0,6%	93,4%
PU-240				2,02E+01	0,4%	99,3%	3,08E+01	0,5%	97,3%	3,08E+01	0,4%	93,8%
PU-239				1,78E+01	0,3%	99,6%	6,78E+01	1,0%	98,4%	7,18E+01	1,0%	94,8%
TC-99							6,13E+01	0,9%	99,3%	2,12E+02	2,8%	97,6%
CL-36							1,59E+01	0,2%	99,5%	6,95E+01	0,9%	98,6%
SB-126M							1,11E+01	0,2%	99,7%	2,22E+01	0,3%	98,9%
CS-135										2,49E+01	0,3%	99,2%
AM-241										6,65E+00	0,1%	99,3%
SB-126										4,42E+00	0,1%	99,3%
PO-213										3,19E+00	0,0%	99,4%
I-129										3,07E+00	0,0%	99,4%
PO-214										3,06E+00	0,0%	99,5%
AT-217										2,75E+00	0,0%	99,5%
PU-242										2,69E+00	0,0%	99,5%
FR-221										2,49E+00	0,0%	99,6%
NP-237										2,41E+00	0,0%	99,6%
PO-218										2,39E+00	0,0%	99,6%
AC-225										2,26E+00	0,0%	99,7%
RN-222										2,18E+00	0,0%	99,7%
PO-210										2,11E+00	0,0%	99,7%
U-234										2,01E+00	0,0%	99,7%
TH-229										1,91E+00	0,0%	99,8%
RA-226										1,90E+00	0,0%	99,8%
U-233										1,90E+00	0,0%	99,8%
TH-230										1,86E+00	0,0%	99,8%
SN-126										1,85E+00	0,0%	99,9%
PU-238										1,40E+00	0,0%	99,9%
U-236										1,35E+00	0,0%	99,9%
ZR-93										1,13E+00	0,0%	99,9%
Summe Tabelle	3,03E+03			5,64E+03			6,57E+03			7,45E+03		
Anteil aller Nuklide	99,9%			99,6%			99,7%			99,9%		
Summe alle Nuklide	3,03E+03			5,66E+03			6,59E+03			7,46E+03		

Tabelle 7: Rangliste der für die Gesamtdosis relevanten Nuklide, geordnet nach Zeithorizonten. Alle weiteren, nicht aufgeführten Nuklide tragen gesamthaft weniger als 0.1 % zur Gesamtdosis bis 1 Million Jahre bei.

E.5 Literaturverzeichnis

- [1] ORIGEN 2.1 Isotope Generation and Depletion Code, Matrix Exponential Method, RSICC Computer Code Collection CCC 371, Oak Ridge National Laboratory, 1991
- [2] G-Wert Tensid + FHM: Radiation Chemistry of Organic Compounds (1960) p. 165
- [3] G-Wert TBP: Kerntechnik 55 (1990) No. 3, S. 136
- [4] G-Wert Bitumen: Report KBS-8103
- [5] G-Wert Dodecan: Nuclear Instruments and Methods 153 (1978) p. 591