

Strahlenschäden im Steinsalz

09.03.2006 (391. Sitzung)

1 **Veranlassung**

Bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle in Steinsalz wird die von den Abfallgebänden emittierte Strahlung im umgebenden Steinsalz absorbiert. Bei diesem Vorgang kommt es unter bestimmten Bedingungen durch γ -Quanten zur Bildung von Strahlenschäden, wobei die Kristallstruktur des Halits gestört und das NaCl über einen komplexen Reaktionsmechanismus in seine Bestandteile zerlegt wird. Diese sind in elementarer Form als kolloidales Natrium und Chlorgas im Kristallgitter nachweisbar und liegen dispers verteilt vor. Verknüpft ist dieser Prozess mit der Speicherung von Energie, die pro Strahlenschaden in erster Näherung der Bindungsenergie von NaCl entspricht. Reagieren kolloidales Natrium und Chlorgas miteinander, wird die gespeicherte Energie wieder freigesetzt.

Zum Thema der Strahlenschäden im Steinsalz hat es in den 80-er und zu Beginn der 90-er Jahre in Deutschland verschiedene wissenschaftliche Untersuchungen gegeben, die sich auf Experimente im Labor und in-situ abgestützt haben. Seitdem werden entsprechende Forschungsarbeiten aktiv im Wesentlichen nur noch in den Niederlanden durchgeführt. Im Zusammenhang mit der Arbeit des Arbeitskreises Auswahlverfahren Endlagerstandorte (AkEnd) ist die Diskussion über die Bildung von Strahlenschäden erneut aufgekommen. Im Vordergrund stand dabei die Frage, ob es durch eine schnelle, möglicherweise explosionsartig ablaufende Rückreaktion der Bestrahlungsprodukte zu einer Schädigung der geologischen und geotechnischen Barrieren des Endlagers kommen kann. Da die Erörterung wirtsgesteinsspezifischer Einzelfragen aber nicht Teil der AkEnd-Beauftragung durch das BMU war, hat der AkEnd beim BfS angeregt, eine Literaturstudie zum aktuellen Stand der Diskussion über die Bildung von Strahlenschäden im Steinsalz in Auftrag zu geben; diese Studie wurde von der GRS erstellt [1].

Wegen der möglichen sicherheitstechnischen Bedeutung dieser Frage für die Endlagerung hochradioaktiver Abfälle in Steinsalz hat sich der RSK-Ausschuss VER- UND ENTSORGUNG des Themas „Strahlenschäden“ angenommen. Er hat darum gebeten, dass – ggf. unter externer Zuarbeit – Sachstand, Bewertung und Lösungsmöglichkeiten zu diesem Thema zusammengestellt werden sollen. Der Ausschuss hat auf seiner 30. Sitzung am 25./26.09.2003 und auf seiner 33. Sitzung am 19./20.01.2004 sowie unter Hinzuziehung von Experten auf seiner 35. Sitzung am 13.05.2004 darüber beraten; diese Experten waren Herr Dr. Mönig von der GRS Braunschweig und Prof. den Hartog/Universität Groningen. Der Inhalt der Präsentationen sowie die Diskussion zugehöriger Fragestellungen sind dem Ergebnisprotokoll der 35. Sitzung zu entnehmen [2]. Die RSK wurde in ihrer 381. Sitzung am 31.03.2005 über die diesbezüglichen

Beratungen im RSK-Ausschuss VER- UND ENTSORGUNG informiert. Der Stellungnahme-Entwurf wurde in der 391. RSK-Sitzung am 09.03.2006 beraten und verabschiedet.

2 Sachstand

2.1 Entstehung von Strahlenschäden

Die Energie der γ -Strahlung wird im Salz überwiegend in Wärme umgewandelt und nur ein geringer Anteil führt zu Strahlenschäden. Strahlenschäden manifestieren sich im Kristallgitter des Halits, sobald eine Mindestdosis von einigen Megagray ($1 \text{ MGy} = 10^6 \text{ J/kg}$) eingestrahlt worden ist. Der Umfang der Strahlenschäden hängt dann von der Dosisleistung und der Dosis ab. Bei gleicher Dosisleistung sind die Strahlenschäden weitgehend proportional zur Dosis und somit die Strahlenschäden bezogen auf die Dosis in etwa konstant. Bei hohen Dosisleistungen sind die Strahlenschäden bezogen auf die Dosis stets geringer. Unter diesen Bedingungen weisen die bei der Absorption der γ -Quanten gebildeten primären Defektzentren, die instabile Zwischenprodukte auf dem Reaktionspfad darstellen, eine höhere steady-state-Konzentration auf, so dass Rekombinationen zwischen ihnen, die zur Ausheilung führen, begünstigt werden.

Der Umfang der Strahlenschäden hängt auch von der Temperatur und der Zusammensetzung des Steinsalzes ab. Bei der Temperaturabhängigkeit gibt es bei den experimentell untersuchten hohen Dosisleistungen ein Maximum für die Strahlenschäden bei etwa $100 \text{ }^\circ\text{C}$. Bei geringeren Dosisleistungen ist das Maximum der Strahlenschäden bei geringeren Temperaturen zu erwarten. Die Anwesenheit von Spurenelementen im Halit kann sowohl zu einer Erhöhung als auch zu einer Verringerung der Strahlenschädenbildung führen.

Die Energie der von Abfällen emittierten γ -Quanten liegt im Bereich von 100 keV bis etwas oberhalb von 1 MeV . In diesem Energiebereich werden ihre Wechselwirkungen mit der Materie durch den Compton-Effekt bestimmt. Die für einen einzelnen Ionisationsschritt im Salzkristallgitter erforderliche Energie liegt jedoch nur bei einigen eV. Der Mechanismus der Strahlenschädenbildung hängt nicht vom Energiespektrum der Strahlung ab.

Zur Beschreibung der qualitativen Abhängigkeit der Strahlenschädenbildung von den Parametern Dosis, Dosisleistung und Temperatur existieren einfache Modelle. Danach ist die Strahlenschädigung mit den Dosisleistungen über eine Wurzelfunktion verknüpft. Höhere Dosisleistungen führen aufgrund der Rekombination der Defektzentren zu geringeren Strahlenschäden bezogen auf die Dosis als geringere Dosisleistungen. Allerdings erklären diese Modelle nicht einige der experimentell beobachtbaren Phänomene. Außerdem ist die experimentelle Datenbasis zur Überprüfung von Modellvorstellungen oder zur Anpassung der Modellparameter recht begrenzt. So sind diese Modelle in Bezug auf den quantitativen Einfluss der Dosisleistung nicht verifizierbar.

2.2 Bedingungen bei der Einlagerung von HAW

Wenn hochradioaktive Abfälle in dickwandigen Behältern, wie z. B. Pollux-Behältern endgelagert werden, können wegen der Abschirmwirkung durch die Behälter praktisch keine Strahlenschäden im umgebenden Steinsalz auftreten, da die Gesamtdosis im Steinsalz zu gering ist. Die nachfolgenden Betrachtungen

beziehen sich daher nur auf HAW-Kokillen oder andere hochradioaktive Abfälle, die in dünnwandigen Behältern endgelagert werden sollen.

Die Dosisleistung an der Oberfläche der HAW-Kokillen beträgt entsprechend den Ergebnissen der laufenden Messungen an den schon vorhandenen Abfallkokillen im Mittel etwa 500 Gy/h. Bis zum Zeitpunkt der Einlagerung ist nahezu von einer weiteren Halbierung der Dosisleistung auszugehen, so dass in den nachfolgenden Überlegungen von einer anfänglichen Dosisleistung im Endlager von 300 Gy/h ausgegangen wird. Die sich daraus ergebende Dosis an der Gesteinsoberfläche beträgt etwa 100 MGy, von denen der überwiegende Teil in den ersten 200 Jahren eingestrahlt wird.

Die Dosisleistung und damit auch die Dosis im Steinsalz werden in zunehmendem radialem Abstand zum Bohrloch durch die Abschirmwirkung des Steinsalzes herabgesetzt. Diese lässt sich durch eine Halbwertsdicke von etwa 5 cm charakterisieren, so dass die Strahlenschäden auf einen Bereich von 30 bis 50 cm im Umfeld der Abfallkokillen begrenzt bleiben.

2.3 Effizienz der Strahlenschädigung

Die Energie der γ -Strahlung wird im Salz überwiegend in Wärme umgewandelt und nur ein geringer Anteil führt zu Strahlenschäden. Dieser Anteil wird auch als Effizienz der Strahlenschädigung bezeichnet, die den Quotienten der durch die Strahlenschäden gespeicherten Energie und der im Salz absorbierten Energie der γ -Quanten darstellt. Wegen des bei gleicher Dosisleistung proportionalen Zusammenhanges zwischen Strahlenschädigung und absorbierter Dosis kann die Effizienz der Strahlenschädigung als einfacher Vergleichsmaßstab zur Bewertung der Ergebnisse von Bestrahlungsversuchen mit sehr unterschiedlichen experimentellen Randbedingungen herangezogen werden.

Bei hohen Dosisleistungen, die verwendet werden, um eine ausreichend hohe Dosis innerhalb einer vergleichsweise kurzen Versuchszeit von wenigen Wochen zu erreichen, beträgt die Effizienz der Strahlenschädigung etwa 0,07 %. Dieser Zahlenwert wurde durch Bestrahlungsversuche in Beschleunigern und in Abklingbecken für Temperaturen von 100 °C ermittelt. Bei Bestrahlungsversuchen in Beschleunigern wurden mit einer Dosisleistung oberhalb von 1 MGy/h Dosen von vielen 100 MGy erzielt. Die Dosisleistung in den Abklingbecken ist im allgemeinen zeitlich stark veränderlich. Typischerweise wurde dabei eine Dosis von 100 MGy in wenigen Wochen erreicht, was einer mittleren Dosisleistung von 0,2 MGy/h entspricht.

Die Dosisleistungen in den Bestrahlungsversuchen liegen damit um einen Faktor 1.000 oder mehr über der anfänglichen Dosisleistung im Umfeld der HAW-Kokillen. Bei Gültigkeit des nach den einfachen Modellen bestehenden Zusammenhangs zwischen der Strahlenschädigung und der Dosisleistung über eine Wurzelfunktion ist von einer Unterschätzung der Strahlenschäden bei den hohen Dosisleistungen um mindestens einen Faktor 30 auszugehen. Eine experimentelle Bestätigung der quantitativen Abhängigkeit der Strahlenschädenbildung von der Dosisleistung steht noch aus.

Bestrahlungsversuche mit geringeren Dosisleistungen wurden im Forschungsbergwerk Asse und im Endlager für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM) durchgeführt. Beim Co-60-Versuch im Forschungsbergwerk Asse wurde eine Dosis von 5 MGy an der Gesteinsoberfläche innerhalb von drei Jahren erzielt, was einer mittleren Dosisleistung von etwa 200 Gy/h entspricht. Im Untertagemessfeld im Endlager

für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM-UMF) wurde eine Dosis von 420 MGy innerhalb von 15 Jahren erzielt, was einer mittleren Dosisleistung von 3.200 Gy/h entspricht. Derzeit beträgt die Dosisleistung noch 1.000 Gy/h. Die durch diese Untersuchungen abgedeckten Bereiche der Dosis und Dosisleistung sind in der nachfolgenden Abbildung im Vergleich zu den bei der Endlagerung während der ersten 200 a herrschenden Bedingungen dargestellt.

Nur für den Co-60-Versuch liegen bisher Messergebnisse zum Ausmaß der Strahlenschädigung vor. Bestrahlte Proben aus dem Untertagemessfeld im Endlager für radioaktive Abfälle Morsleben stehen bisher nicht zur Verfügung, da zu ihrer Gewinnung erst die in den Bohrlöchern befindlichen Strahlenquellen ausgelagert werden müssten. Bei den Nachuntersuchungen zum Co-60-Versuch wurde für Salzproben mit der höchsten γ -Dosis ein Gehalt an kolloidalem Natrium von weniger als 0,025 mol% festgestellt. Ermittelt man für den Versuch rein formal eine Effizienz der Strahlenschädigung, dann beträgt diese höchstens 0,04 %.

Es bestehen jedoch in der Fachwelt erhebliche Zweifel an der Belastbarkeit der aus dem Co-60-Versuch ermittelten Effizienz der Strahlenschädigung. Der formal ermittelte Wert für die Effizienz der Strahlenschädigung liegt unterhalb des Wertes, der für erheblich höhere Dosisleistungen gemessen worden ist. Dies könnte auf die hohen Temperaturen von etwa 200 °C während des Co-60-Versuchs im umgebenden Steinsalz zurückzuführen sein, bei denen die Effizienz der Strahlenschädigung geringer als bei niedrigeren Temperaturen ist. Allerdings ist nach Abschätzungen mit den einfachen Modellen bei diesen Temperaturen überhaupt keine Strahlenschädenbildung zu erwarten. Eine mögliche Interpretation des Versuchsergebnisses besteht darin, dass die Strahlenschäden nicht während der Phase hoher Temperaturen sondern erst nach dem Ausschalten der Wärmequelle entstanden sind. Dann wären die Strahlenschäden auf eine erheblich kleinere Dosis zu beziehen und man würde zu deutlich höheren Werten der Effizienz der Strahlenschädigung kommen, die aber wegen des transienten Temperaturverhaltens nicht quantifiziert werden können.

Belastbarere Werte für die Effizienz der Strahlenschädigung könnten sich gegebenenfalls aus einem Vergleich mit den Ergebnissen aus dem Untertagemessfeld des Endlagers für radioaktive Abfälle Morsleben ergeben. Hierbei lagen die Temperaturen über eine lange Zeit bei 100° C und sind zwischenzeitlich auf etwa 50° C abgeklungen. Insbesondere liegt aber die Dosis eher in dem Bereich, der auch für ein Endlager zu erwarten ist.

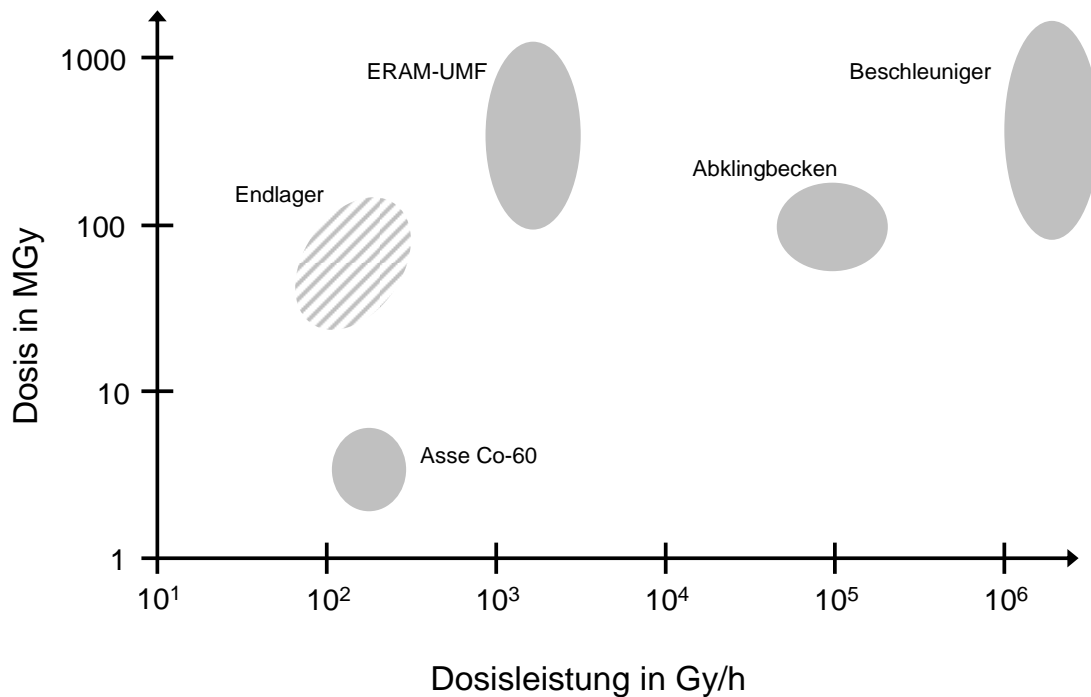


Abbildung: Experimentell abgedeckte Bereiche der Dosis und Dosisleistung im Vergleich zu den Bedingungen in einem Endlager für hochradioaktive Abfälle

2.4 Explosionsartige Rückreaktionen

Explosionsartige Rückreaktionen stellten sich in Experimenten mit hohen Dosisleistungen von ca. 10⁶ Gy/h erst ab einem Gehalt an kolloidalem Natrium von 7,5 mol% ein. Ein entsprechender Schwellenwert für geringe Dosisleistungen ist bisher nicht ermittelt worden.

3 Bewertung

Bei der Bewertung der möglichen Auswirkungen der Strahlenschädenbildung auf die Sicherheit eines Endlagers für hochradioaktive Abfälle im Steinsalz ist zu berücksichtigen, dass Unsicherheiten auch bei einer verbesserten Lage im Bezug auf die Ergebnisse experimenteller Untersuchungen bestehen bleiben.

Es wird immer notwendig sein, die Ergebnisse experimenteller Untersuchungen auf die bei der Endlagerung herrschenden Randbedingungen zu extrapolieren, da Versuche, bei denen mit endlagerrelevanten Dosisleistungen entsprechende Bestrahlungsdosen wie in einem Endlager erreicht werden, nicht durchführbar sind. Meist werden daher experimentelle Untersuchungen im Zeitraffermaßstab durchgeführt, bei denen hohe Dosisleistungen verwendet werden. Bei Versuchen mit endlagerrelevanten Dosisleistungen werden dagegen in überschaubaren Versuchszeiten nur γ -Dosen erreicht, bei denen es noch nicht zu einer

nennenswerten Strahlenschädenbildung kommt. Somit kommt einer Validierung der für die Extrapolation herangezogenen Modellvorstellungen eine erhöhte Bedeutung zu.

3.1 Schwellenwert für explosionsartige Rückreaktionen

Bei einer Dosis von 100 MGy, die in einem Endlager für hochradioaktive Abfälle an der Gesteinsoberfläche zu erwarten ist, ergibt sich unter Zugrundelegung einer Effizienz der Strahlenschädigung von 0,07 % ein Gehalt an kolloidalem Natrium von 0,8 mol%. Dieser Wert liegt deutlich unter dem experimentell ermittelten Schwellenwert für eine mögliche explosionsartige Rückreaktion von 7,5 mol%. Die Bestrahlungsversuche, bei denen der Wert für die hierbei verwendete Effizienz der Strahlenschädigung ermittelt wurde, sind jedoch bei deutlich höheren Dosisleistungen durchgeführt worden als im Umfeld einer HAW-Kokille im Endlager zu erwarten ist. Korrigiert man die gemessenen Werte für die Effizienz der Strahlenschädigung auf der Basis der einfachen Modelle mit dem in Abschnitt 2.3 genannten Faktor 30, dann wäre von einem Wert von 2,1 % auszugehen. Bei einer Dosis von 100 MGy ergäbe sich damit ein Gehalt an kolloidalem Natrium von 25 mol%, der deutlich über dem Schwellenwert für eine mögliche explosionsartige Rückreaktion von 7,5 mol% liegt.

Es ist nicht geklärt, ob es zulässig ist, den bei sehr hohen Dosisleistungen ermittelten Schwellenwert auf die um mehrere Größenordnungen niedrigeren endlagerrelevanten Dosisleistungen zu übertragen. Für diese Bedingungen besteht auch die Möglichkeit, dass der Schwellenwert für explosionsartige Rückreaktionen anders ist als Extrapolationen auf der Basis einfacher Modelle anzeigen.

Belastbare Zahlenwerte für die Effizienz der Energiespeicherung bzw. den Schwellenwert für mögliche explosionsartige Rückreaktionen bei den Verhältnissen im Endlager sind noch nicht entwickelt.

3.2 Mögliche Auswirkungen der Strahlenschädenbildung

Die Strahlenschädenbildung geht mit einer Speicherung von Energie im Salzkristallgitter einher. Diese Energie kann durch die Rückreaktion der beiden reaktionsfähigen Bestrahlungsprodukte kolloidales Natrium und Chlorgas wieder freigesetzt werden. Für die Bewertung der möglichen Auswirkungen eines solchen Prozesses auf das Endlager ist die Zeitskala für die Rückreaktion von Bedeutung.

Bei einer langsamen Rückreaktion von kolloidalem Natrium und Chlorgas wird Wärme freigesetzt. Diese ist im Vergleich zur absorbierten γ -Energie im umgebenden Gebirge und insbesondere zum Wärmeeintrag in das Gebirge aus der Wärmeleistung der Abfallkokillen verschwindend gering. Aus Sicht der RSK ist daher bei einer langsamen Rückreaktion praktisch mit keinerlei Auswirkungen zu rechnen.

Bei einer explosionsartigen Rückreaktion der gesamten gespeicherten Energie kommt es zu deutlichen Temperaturerhöhungen sowie zu Erhöhungen der Gebirgsdrücke. Dabei ist eine lokale Beeinträchtigung der Barrierenintegrität im Bereich von wenigen 10 cm um die Bohrlöcher herum möglich. Wegen der abschirmenden Wirkung des Gebirges werden die Rückreaktionen aber auf das unmittelbare Umfeld eines Bohrlochs begrenzt bleiben. Die Integrität der Barriere Salzgestein insgesamt wird dadurch nicht beeinflusst.

4 Schlussfolgerungen

Selbst bei Unterstellung explosionsartiger Rückreaktionen kann eine Beeinträchtigung der Integrität der Barriere Salzgestein insgesamt durch Strahlenschäden ausgeschlossen werden. Um darüber hinaus im Rahmen eines Sicherheitsnachweises explosionsartige Rückreaktionen nicht unterstellen zu müssen, bestehen zwei prinzipielle Möglichkeiten:

- Es können technische Maßnahmen ergriffen werden, die eine Abschirmung des umgebenden Salzgesteins bewirken und so die Dosis im umgebenden Gebirge reduzieren. Als Abschirmung kommen Behälter mit einer entsprechenden Wandstärke oder die Verwendung von neutralem Versatzmaterial in Frage. Um den Gehalt an kolloidalem Natrium in ausreichendem Maße zu verringern, würde vermutlich ein zusätzlicher Stahlbehälter mit einer Wandstärke von wenigen Zentimetern ausreichen.
- Die Abhängigkeit der Effizienz der Strahlenschädigung von der Dosisleistung basiert auf Abschätzungen und ist experimentell nicht belegt und der Schwellenwert für explosionsartige Rückreaktionen ist nur für hohe Dosisleistungen ermittelt worden. Mit entsprechenden Forschungsarbeiten könnten die Dosisleistungsabhängigkeit der Effizienz der Strahlenschädigung und den Schwellenwert für explosionsartige Rückreaktionen auch für kleinere Dosisleistungen belastbar ermittelt werden.

Falls sich keine deutlich erhöhte Effizienz der Strahlenschädigung zeigt und der Schwellenwert für explosionsartige Rückreaktionen auch für kleine Dosisleistungen verwendbar ist, können explosionsartige Rückreaktionen ausgeschlossen werden, und das Problem ist als gelöst anzusehen

Aus Sicht der RSK wird wegen der geringen Ausdehnung des von den Auswirkungen etwaiger Strahlenschäden betroffenen Bereichs durch die mögliche Strahlenschädenbildung im Steinsalz die grundsätzliche Eignung von Steinsalz als Endlagermedium für hochradioaktive Abfälle nicht in Frage gestellt.

Literatur

- [1] J. Mönig/GRS
Literaturstudie über die Fortentwicklung des Kenntnisstandes seit 1997 zur Bildung von Strahlenschäden in Alkalihalogeniden
Juli 2002, GRS-A 3058

- [2] Ergebnisprotokoll der 30. Sitzung des RSK-Ausschusses VER- UND ENTSORGUNG
am 25./26.09.2003