

**WEGE ZUM EFFIZIENTEN RÜCKBAU
VON REAKTORKOMPONENTEN UND BETON-
ABSCHIRMUNG: BERECHNUNG DES AKTIVITÄTS-
INVENTARS UND DEREN VALIDIERUNG
AN BOHRKERNEN SOWIE MOBILITÄTS-
UNTERSUCHUNGEN VON RADIONUKLIDEN – WERREBA**

**PROJEKT ZUM FÖRDERKONZEPT „FORKA – FORSCHUNG
FÜR DEN RÜCKBAU KERntechnischer ANLAGEN“
FÖRDERKENNZEICHEN: 15S9412**

Abschlussbericht

J. Konheiser, A. Barkleit, E. Pönitz

J. Konheiser, A. Barkleit und E. Pönitz

**„Wege zum effizienten Rückbau von
Reaktorkomponenten und Betonabschirmung:
Berechnung des Aktivitätsinventars und deren
Validierung an Bohrkernen sowie
Mobilitätsuntersuchungen von Radionukliden“ –
WERREBA**

Abschlussbericht

Projekt zum Förderkonzept „FORKA – Forschung für den Rückbau
kerntechnischer Anlagen“ Förderkennzeichen: 15S9412

Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf e.V. (HZDR),
Institut für Ressourcenökologie (IRE)

Oktober 2023

Das diesem Bericht zugrundeliegende Vorhaben wurde mit Mitteln des
Bundesministeriums für Bildung und Forschung unter dem
Förderkennzeichen 15S9412 gefördert

GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium
für Bildung
und Forschung

Druckausgabe: ISSN 2191-8708

Elektronische Ausgabe: ISSN 2191-8716

Die elektronische Ausgabe erscheint unter Creative Commons License (CC BY 4.0):

<https://www.hzdr.de/publications/Publ-37611>

[urn:nbn:de:bsz:d120-qucosa2-872805](https://nbn-resolving.org/urn:nbn:de:bsz:d120-qucosa2-872805)

2023

Herausgegeben vom

Helmholtz-Zentrum Dresden - Rossendorf

Bautzner Landstraße 400

01328 Dresden

Germany

J. Konheiser, A. Barkleit and E. Pönitz

„Methods for efficient removal of reactor components and concrete shielding: Calculation of the activity inventory and the validation on drilling cores as well as mobility investigations of radionuclides“ – WERREBA

Final Report

Project on the funding concept „FORKA – Forschung für den Rückbau kerntechnischer Anlagen“ Funding reference number: 15S9412

Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf e.V. (HZDR),
Institute of Resource Ecology (IRE)

October 2023

GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium
für Bildung
und Forschung

The project on which this report is based was funded by the Federal Ministry of Education and Research under the funding code 15S9412.

Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung.....	7
Abstract	8
1 Ziele und Aufgabenstellung	9
2 Stand von Wissenschaft und Technik zu Projektbeginn	10
2.1 Neutronenfluenz- und Aktivierungsrechnungen	11
2.2 Radiologische und chemische Charakterisierung	12
3 Bisherige Arbeiten	14
3.1 Neutronenfluenz- und Aktivitätsberechnung	14
3.2 Radiologische und physikochemische Untersuchungen	16
4 Ausführliche Darstellung der Ergebnisse.....	16
4.1 Extraktion von Proben aus RDB, Reaktordeckel und Betonabschirmung....	16
4.1.1 RDB	16
4.1.2 Reaktordeckel.....	17
4.1.3 Betonabschirmung.....	18
4.2 Experimentelle Bestimmung der Aktivitäten im Stahl und Beton	21
4.2.1 Aktivitätsbestimmung in Stahlproben	21
4.2.2 Aktivitätsbestimmung in Betonproben.....	23
4.3 Strukturelle Charakterisierung des Radionuklidinventars im Beton.....	26
4.3.1 Bestimmung der kristallinen Phasen.....	26
4.3.2 Bestimmung der Porengrößen im Beton.....	32
4.3.3 Untersuchungen zum Auflösungsverhalten von Beton	33
4.4 Berechnung der Neutronenfluenz- und Aktivitätsverteilungen	34
4.4.1 Modellentwicklung.....	34
4.4.2 Varianzreduzierende Methoden	35
4.4.3 Neutronenfluenzrechnungen und Validierung.....	38
4.4.4 Bestimmung der Neutronenfluenzverteilung	40
4.4.5 Aktivitätsbewertung der Materialproben.....	42
4.4.6 Aktivitätsprofil im Reaktordruckbehälter	43
4.4.7 Aktivitätsbewertung Reaktordeckel.....	44
4.4.8 Zeitliche Evolution der Aktivitäten	45
4.4.9 Vergleich der gemessenen und berechneten spezifischen Aktivitäten .	48
5 Nutzen und Verwertung.....	51

6	Zusammenfassung und Schlussfolgerungen.....	53
7	Literaturverzeichnis	55

Kurzfassung

Das Ziel des Vorhabens war es, genaue Kenntnisse über die entstandenen radioaktiven Nuklide während des Leistungsbetriebs eines Kernkraftwerkes, die zeitliche Veränderung der Aktivität und die daraus resultierende Verteilung der Aktivität in den einzelnen Phasen des Rückbaus zu erhalten. Die Aktivitätsverteilungen sollten dabei anlagenspezifisch für den Reaktor-druckbehälter (RDB), dessen Einbauten, den Reaktordeckel und die Betonabschirmung (biologisches Schild) bestimmt werden. Dabei lag der Schwerpunkt besonders auf der experimentellen Bestimmung der Nuklidzusammensetzung sowie deren Aktivität und chemischen Bindung im Material. Die Untersuchungen wurden an Originalmaterial sowohl aus dem RDB als auch aus dem Beton durchgeführt und dienen auch der Validierung und Verifizierung der durchgeführten Rechnungen.

Im Fall der stark aktivierten Reaktorkomponenten könnten den Behörden und Betreibern Informationen bereitgestellt werden, ob neben der direkten Zerlegung die Methode der Abklinglagerung als eine ökologische und wirtschaftliche Alternative in Betracht kommt. Mit einer möglichen Zwischenlagerung könnten sowohl die endzulagernde aktive Abfallmenge reduziert als auch wertvolle Metalle wieder recycelt werden. Zusätzlich wird die Strahlenbelastung für das Rückbaupersonal verringert.

Im Fall der Betonabschirmung wurden Aussagen zur möglichen chemischen Mobilität der Radionuklide getroffen, welche direkten Einfluss auf die Rückbaustrategie und die Endlagerung hat. Denn für beides ist nicht nur die absolute Menge, sondern auch die strukturelle Einbindung der Radionuklide im Beton wichtig. Diese ist entscheidend für die Stabilität der Bindung der Radionuklide im Beton und damit für den Umfang und die Kinetik möglicher Auflösungen mit Übergang in die wässrige Phase während des Rückbaus und im Endlager.

Abstract

The aim of the project was to obtain accurate information on the radioactive nuclides generated during the operation phase of a nuclear power plant, the change in activity over time and the resulting distribution of activity in the single phases of decommissioning. The activity distributions are to be determined system-dependent for the reactor pressure vessel (RPV), its internals, the reactor lid and the concrete shielding (biological shielding). The focus is mainly on the experimental determination of the nuclide composition, their activity and chemical fixation in the material. The investigations were carried out on original material from both the RPV and the concrete and will be used for validation and verification of the performed calculations.

In the case of the highly activated reactor components, information could be provided to the regulatory authorities and operators as to whether, in addition to direct dismantling, the decay storage method could be considered as an ecological and economic alternative. With a possible interim storage, both the volume of the finally stored waste could be reduced and potentially valuable metals could be recycled. In addition, radiation exposure for decommissioning personnel would be reduced.

In the case of concrete shielding, statements are made for nuclides on their possible chemical mobility, which has a direct influence on the decommissioning strategy and the final storage. For both, not only the absolute volume, but also the structural integration of the radionuclides in the concrete is important. This is decisive for the stability of the fixation of the radionuclides in the concrete and thus for the quantity and the kinetics of possible dissolution with transition into the aqueous phase during decommissioning and in the final repository.

1 Ziele und Aufgabenstellung

Das Ziel des Vorhabens war es, genaue Kenntnisse über die entstandenen aktiven Nuklide während des Leistungsprozesses eines Kernkraftwerkes (KKW), deren zeitlichen Aktivitätsverlauf und die daraus resultierende Aktivitätsverteilung in den einzelnen Phasen des Rückbauprozesses zu erhalten. Die Aktivitätsverteilungen sollten dabei anlagenspezifisch für den Reaktordruckbehälter (RDB), den Reaktordeckel und die erste Betonabschirmung (in vielen Kraftwerken als biologisches Schild bezeichnet) bestimmt werden. Dabei lag der Schwerpunkt des Projektes besonders auf der experimentellen Bestimmung der Nuklidzusammensetzung, deren Aktivität und deren chemischen Bindungen im Material.

Die Untersuchungen wurden an Originalmaterial aus den Blöcken 1, 2 und 8 des KKW Greifswald ausgeführt und dienten gleichzeitig der Validierung und Verifizierung der Rechnungen. Es standen Proben aus dem RDB, dem Reaktordeckel und dem biologischen Schild (Beton) zur Verfügung. Die Bohrkern aus dem RDB (Trepans) waren bereits im HZDR verfügbar. Die Proben aus dem Reaktordeckel und der Betonabschirmung wurden innerhalb des Projektes gewonnen. Mit diesen Proben wurden entstandene Aktivitäten über die gesamte Tiefe der Bauteile untersucht und eine Validierung der Rechnung über die gesamte Breite durchgeführt. Unter Einsatz von spektroskopischen und mikroskopischen Techniken sollte auch geklärt werden, in welcher Form wesentliche Radionuklide (Relevanz auf Basis der Aktivitätsberechnungen und -messungen) in den Feststoff eingebunden sind. Daraus lassen sich Aussagen zur Stabilität der Einbindung, mögliche Lösungsszenarien und deren Kinetik sowie die Speziation der Radionuklide beim Übergang in die wässrige Phase ableiten. Letztere wiederum ist ganz entscheidend für die Mobilität der Radionuklide in der Umwelt, aber auch für deren Bioverfügbarkeit, sowohl während des Rückbaus als auch im Endlager.

Das Fundament für die rechnerische Bestimmung der Aktivitätsverteilungen bildeten genaue dreidimensionale Neutronenflussrechnungen, die auf Basis der individuellen Leistungsgeschichten der einzelnen Reaktoren berechnet wurden. Auf Basis der örtlichen Flusspektren und einer genauen Kenntnis der Materialzusammensetzung wurde die entstandene Menge von Radionukliden und deren Verteilungen abgeschätzt. Während der RDB durch seine hohe Aktivität hervorsteicht, ist es beim Beton die anfallende Menge, die das Hauptvolumen des endzulagernden Abfalls darstellt.

Für die Berechnungen der Neutronenflüssen wurde das international viel verwendete Monte-Carlo (MC) Programm MCNP6 [1] eingesetzt. Außerdem stand das MC-Programm TRAMO [2] zur Verfügung. Der TRAMO Code ist eine In-house Entwicklung des HZDR speziell für reaktordosimetrische Rechnungen und wurde bereits in früheren Projekten für die Berechnung von Neutronenflüssen in den Greifswalder RDB verwendet.

Ein Schwerpunkt bei diesen Rechnungen lag, wegen der tiefen Durchdringungen, in der Optimierung der Rechnungen in Bezug auf die Varianz. Unabhängig von der Nutzung der Parallelisierung war eine konsequente Anwendung varianzreduzierender Methoden unabdingbar, um bei vernünftigen Rechenzeiten statistisch abgesicherte Ergebnisse zu erzielen.

Durch die verifizierten Rechnungen ist es möglich, im Fall der stark aktivierten Reaktorkomponenten (z.B. RDB) den Behörden und Betreibern Informationen über den zeitlichen Verlauf der Aktivitäten bereitzustellen und ob eine Abklinglagerung, wie sie in Greifswald durchgeführt wird, als eine ökologische und wirtschaftliche Alternative zur üblichen direkten Zerlegung auch für andere Anlagen in Betracht kommt. Mit einer möglichen Zwischenlagerung könnte die endzulagernde aktive Abfallmenge reduziert werden und wertvolle Metalle könnten wieder in den Wertstoffkreislauf zurückgeführt werden. Zusätzlich wird die Strahlenbelastung für das Rückbaupersonal verringert. Für die Betonabschirmung wurden Aussagen für einzelne Nuklide zu ihrer Aktivitätsverteilung und der strukturellen Einbindung im Beton getroffen.

Ein weiteres sehr wichtiges Ziel war die Nachwuchsförderung zum Kompetenzerhalt auf diesem Gebiet. Deshalb wurden im Rahmen des Projektes am HZDR, Institut für Ressourcenökologie (IRE) in Zusammenarbeit mit der Technischen Universität Dresden (TUD) eine Promotionsarbeit (PhD), eine Masterarbeit (MSc) und zwei Bachelorarbeiten (BSc) angefertigt.

Die Ziele des Projektes beziehen sich auf die Förderbekanntmachung „FORKA – Forschung für den Rückbau kerntechnischer Anlagen“ des BMBF vom 31.08.2017, darin auf den Förderungsschwerpunkt „Abfallbehandlung, Abfalldeklaration, Zwischenlagerung“, speziell auf die Unterpunkte „Zerstörungsfreie Deklaration bzw. Analyse von (Alt-) Abfällen (z. B. innovative Analyseverfahren)“ und „Konzepte zur Vermeidung von sekundären radioaktiven Abfällen“.

2 Stand von Wissenschaft und Technik zu Projektbeginn

Mit dem Beschluss der deutschen Regierung zum Ausstieg aus der Kernenergienutzung steht mittelfristig die Bewältigung des Rückbaus der einzelnen Kernkraftwerke an. Neben den Brennelementen sind die RDB inklusive deren Einbauten und die reaktornahen Konstruktionselemente, hier insbesondere die des Betons inklusive seiner Bewehrung aus der ersten biologischen Abschirmung, die Hauptquelle der anfallenden radioaktiven Materialien. Die dort während des Betriebes herrschende hohe Neutronenstrahlung führte zu erheblichen Aktivierungen des Materials, welche sich durch Dekontamination nicht beseitigen lassen. Deshalb stellt die Konditionierung bzw. Entsorgung dieser Elemente eine der großen Herausforderungen dar.

Eine mechanische Zerlegung der stark aktivierten Reaktorkomponenten bereits wenige Jahre nach der Abschaltung ist zurzeit die Standardmethode. Diese Methode ist ausgesprochen kostenintensiv und erfordert besondere Maschinen, um eine Zerlegung ohne oder mit nur sehr

geringer Strahlenbelastung für das Bedienungspersonal zu ermöglichen. Deshalb ist neben dieser die Methode der Abklinglagerung als eine Alternative bei diesen Komponenten anzusehen. Diese Methode wird bereits bei den Großkomponenten des KKW Greifswald getestet. Die GRS GmbH hat deshalb in den Jahren 2008 bis 2011 zusammen mit Brenk Systemplanung GmbH im Auftrag des Bundesamtes für Strahlenschutz das Abklingverhalten der Großkomponenten mit Hilfe des DORTAKTIV-Softwarepaketes (Kopplung des 2D-Neutrontransportcodes DORT [3] mit dem Aktivierungscode ORIGEN [4]) untersucht. Die Ergebnisse zeigen, dass die Abklinglagerung von Großkomponenten technisch machbar und beherrschbar ist und sowohl unter betriebswirtschaftlichen Aspekten als auch in Bezug auf eine Minimierung der Strahlenbelastung involvierter Arbeitskräfte Vorteile gegenüber einer direkten Zerlegung aufweist. Außerdem konnte abgeschätzt werden, dass mit Ausnahme der Reaktoreinbauten nahezu alle anderen Komponenten vollständig dem Stoffkreislauf wieder zugeführt werden können.

2.1 Neutronenfluenz- und Aktivierungsrechnungen

Voraussetzung dafür sind genaue Neutronenfluenzrechnungen, die die Basis der anschließenden Aktivierungsrechnungen bilden, um eine strahlentechnische und wirtschaftliche Bewertung einer möglichen Abklinglagerung durchführen zu können. Ein Hauptproblem bei der Beurteilung dieser berechneten Ergebnisse ist, dass zurzeit nur ganz wenige experimentelle Daten für deren Validierung zur Verfügung stehen. Einige der experimentellen Daten, die in dem oben genannten Vorhaben (interner GRS Bericht A-3626) verwendet wurden, stammen hauptsächlich aus dem vom BMWi geförderten Projekt (Vorhaben-Nr. 1501331 [5], Teil A 4.4), das vom HZDR unter Mitwirkung der EWN Entsorgungswerk für Nuklearanlagen GmbH bearbeitet wurde. Bei den Vergleichen zwischen berechneten und experimentellen Daten wurden aber Differenzen festgestellt, die eine Reihe von Fragen aufwarfen.

Das eigentliche Ziel dieser Projekte waren Nachbestrahlungsuntersuchungen von RDB-Bohrkernen (Trepans) aus dem stillgelegten KKW Greifswald. Dafür wurden für die gewonnenen Trepans hochaufgelöste integrale Neutronenfluenzwerte mit TRAMO berechnet [2]. Zur Validierung der Ergebnisse wurden Aktivitätsmessungen an ausgesuchten Nukliden durchgeführt [6]. So wurden die für den Rückbau wichtigen Nuklide ^{63}Ni und ^{99}Tc bestimmt. Allerdings sind nur aus zwei Bohrkernen (30 cm und 110 cm über der Kernunterkante) wenige Proben für den Vergleich mit den Rechnungen untersucht worden. Diese zeigten eine gute Übereinstimmung. Weiterführende Rechnungen wurden von der Schweizer Nationalen Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (Nagra) ausgeführt. Bei diesen Rechnungen wurden zusätzlich Neutronenflüsse außerhalb des RDB und die daraus resultierende Aktivierung bestimmt, um die Entsorgung der radioaktiven Abfälle besser planen zu können [7]. Eine ähnliche Arbeit

wurde auch von der Wissenschaftlich-Technischen Ingenieurberatung (WTI) GmbH durchgeführt [8]. Zu diesem Zweck wurden detaillierte Rechenmodelle einzelner Siedewasserreaktoren für verschiedene Transportprogramme wie z.B. MCNP6 [1] und TORT [3] entwickelt, um eine möglichst großräumige Neutronenverteilung zu berechnen. Ein Ergebnis war, dass die Aktivitäten mit der Entfernung vom Reaktorkern nicht gleichmäßig abnehmen, sondern durch Inhomogenitäten in der Abschirmung, wie z.B. bei Durchführungen, stark erhöht sein können. Punktuell wurden die Ergebnisse mittels Aktivierungsfolien an einem laufenden Reaktor überprüft. Die Vergleiche zeigten aber, dass die Unsicherheiten noch sehr groß sind und eine Validierung der Modelle und Rechenverfahren an zusätzlichen Experimenten zwingend erforderlich ist [8]. Eine Verifikation von entsprechenden Rechnungen an realen Betonproben, wie sie in dem Projekt WERREBA durchgeführt wurden, ist dem Antragsteller nicht bekannt.

Bei den Berechnungen der Neutronenfluenzen wird hauptsächlich das Monte-Carlo Verfahren verwendet. Es ist eine stochastische Methode, die auf Basis einer sehr großen Zahl gespielter Zufallsprozesse die Transportgleichung löst. Der Vorteil dieser Methode liegt in der Möglichkeit, sowohl komplexe geometrische als auch physikalische Systeme bzw. Modelle sehr genau abzubilden. Von Nachteil ist, dass die erzielten Werte nur eine Annäherung an die exakten Ergebnisse darstellen und dass der Rechenaufwand für statistisch abgesicherte Ergebnisse meist relativ hoch ist. Aber die Monte-Carlo-Methode ist mit einem minimalen sequentiellen Overhead sehr gut parallelisierbar und damit kann die Konvergenzgeschwindigkeit extrem verbessert werden. Mit geeigneten Varianzreduzierenden Methoden können deshalb jetzt bei vernünftigen Rechenzeiten auch räumlich sehr tiefe Durchdringungen berechnet werden.

Für die Bestimmung der Aktivitäten werden spezielle Aktivierungsprogramme eingesetzt. Einer der am häufigsten verwendeten Codes für die Durchführung der Berechnungen ist ORIGEN2 [4]. Mit dem Code ist es möglich, bei vorgegebenen Bestrahlungszeiten und unter Berücksichtigung der Zerfallszeiten die Erzeugung und den Zerfall von Radionukliden während der gesamten Betriebsdauer und der Stilllegung des Reaktors zu berechnen. In mehreren Publikationen der IAEA [9, 10] werden die Verfahren und Methoden ausführlich beschrieben.

2.2 Radiologische und chemische Charakterisierung

Der Beton der biologischen Abschirmung inklusive der Bewehrung stellt volumenmäßig den größten Anteil an aktiviertem Material dar und beeinflusst damit entscheidend das Entsorgungskonzept für aktive Abfälle der einzelnen Anlagen. Außerdem stellt auch der Abriss dieser Anlagenteile eine sicherheitstechnische Herausforderung dar. Durch den dabei entstehenden radioaktiv belasteten Staub werden an die Abbrucharbeiten besondere arbeitsschutztechnische Bedingungen gestellt.

Deshalb ist eine radiologische und chemische Charakterisierung des anfallenden Materials eine zwingende Voraussetzung für den Rückbau. Im Allgemeinen werden Betonproben aus Kernkraftwerken hauptsächlich gammaspektroskopisch untersucht und auf dessen Basis quantitativ der Nuklidvektor bestimmt. Die Erfassung von Alpha- und Betastrahlern über z. B. Liquid Szintillation Counting (LSC) wird üblicherweise nur für Tritium (^3H) und ^{14}C vorgenommen, da diese den größten Beitrag zur Aktivität leisten [11]. Eine Ausweitung dieser Methode auf weitere Radionuklide, z. B. ^{63}Ni , ^{55}Fe und ^{41}Ca , ist aber prinzipiell möglich [12-14] und hängt vom konkreten Nuklid-Vektor ab. Grundsätzlich geeignet für analytische Aufgaben im Tracer-Bereich sind auch massenspektrometrische Methoden (z.B. inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) und accelerator mass spectrometry (AMS)) [15-17].

Jede seriöse quantitative Vorhersage der Rückhaltung bzw. möglichen Freisetzung von Radionukliden in Beton- und Zementmaterialien, die für eine Sicherheitsbewertung beim Rückbau von kerntechnischen Anlagen unabdingbar ist, erfordert das Verständnis der Wechselwirkung dieser Radionuklide mit den sorbierenden Hauptbestandteilen von Zementstein, den Calciumsilikathydrat(CSH)-Phasen.

Die Bindung von Erdalkali- (Ca, Sr, Ba) und Übergangsmetallionen (Fe, Co, Ni) an Beton bzw. CSH-Phasen ist überwiegend sehr fest, wie verschiedene Sorptions- und Leachingexperimente zeigen. Dabei werden die zwei- bzw. dreiwertigen Metallionen entweder in die CSH-Struktur eingebaut (ein meist irreversibler Prozess) oder sind stark an der Oberfläche sorbiert (ein eher reversibler Prozess) [18-25]. Es konnte aber auch gezeigt werden, dass die organischen Zusatzstoffe im Zement (Plasticizer) in der Lage sind, die Metallionen, zumindest teilweise, wieder zu mobilisieren [26, 27].

Weitere Untersuchungen zeigten, dass CSH-Phasen in der Lage sind, auch Actinide und Lanthanide in unterschiedlichsten Oxidationsstufen (divalent bis hexavalent) zu immobilisieren [20, 28-35]. Dies erfolgt sowohl über Oberflächensorptionsprozesse (eher reversibel) als auch über den Einbau in die CSH-Struktur (typischerweise irreversibel). Die jeweils dominierenden Prozesse beeinflussen signifikant das Zeitverhalten und den Umfang der (z.B. auf Deponien) zu erwartenden Laugungsvorgänge.

Der Nachweis der gebildeten Radionuklid-Spezies sowohl in CSH-Phasen als auch in fein zerkleinerten Betonproben kann dabei mittels spektroskopischer Methoden wie zeitaufgelöste Laserfluoreszenz- (TRLFS), Infrarot- (IR) bzw. Raman- oder auch Kernmagnetresonanzspektroskopie (NMR) oder Methoden unter Nutzung von Röntgenstrahlung, wie z.B. Röntgendiffraktometrie (XRD), geführt werden [20, 30-37]. Die Bestimmung der räumlichen Verteilung der im Beton vorliegenden Radionuklid-Spezies ist mittels ortsauflösender Methoden wie μTRLFS bzw. Raman-Mikroskopie oder anderer Synchrotron-basierter und elektronenmikroskopischer Methoden möglich [24, 25, 32, 33, 35, 38]. Diese Untersuchungen gestatten, kom-

biniert mit strukturtheoretischen Grundlagen zum Einbau von Radionukliden in diese Wirtsphasen, zusätzliche Rückschlüsse bezüglich der wechselwirkenden Mineralphasen bzw. beteiligter Korngrenzflächen.

3 Bisherige Arbeiten

3.1 Neutronenfluenz- und Aktivitätsberechnung

Seit Jahrzehnten ist die Reaktordosimetrie ein Forschungsgebiet am HZDR. So wurde speziell für Berechnungen von Neutronen- und Gammafluenzen im RDB und deren Umgebung am ehemaligen Institut für Sicherheitsforschung des HZDR (jetzt IRE zugehörig) das umfangreiche Codesystem TRAMO [2] entwickelt und im Rahmen verschiedener nationaler und internationaler Projekte erfolgreich eingesetzt, wie z.B. bei REDOS [39].

Neben dem zentralen Monte-Carlo-Transportcode TRAMO, der reaktortypische dreidimensionale Geometrien behandeln kann, umfasst das Codesystem auch Programme zur Erzeugung und Aufbereitung von effektiven Gruppenwirkungsquerschnitten. Diese gestatten den Zugriff auf aktuelle Daten aus internationalen Bibliotheken evaluierter Kerndaten, wie z.B. ENDF/BVII [40]. Ergänzt wird das System durch das Programm TRAWEL [2], welches auf der Basis eines rekursiven Monte-Carlo-Verfahrens optimale zonen- und energieabhängige Gewichte berechnet.

Die Neutronen/Gamma-Transportsimulationen mit TRAMO wurden sowohl an Hand von Vergleichen mit Ergebnissen anderer Codes (z.B. MCNP6 [1] und DORT [3]) als auch mit Aktivierungsmessungen validiert. Die Aktivierungsmessungen basierten auf Metallfolien, die in den meisten Fällen an der Außenwand vom RDB befestigt und innerhalb eines Zyklus bestrahlt wurden. So wurden im Rahmen der Wissenschaftlich-Technischen Zusammenarbeit (WTZ) mit Russland verschiedene Projekte (Nr. 1501260 mit Laufzeit vom 1. Mai 2002 bis zum 31. Januar 2006 sowie Nr. 1501331 mit Laufzeit vom 1. Oktober 2006 bis zum 30. September 2010) gefördert, bei denen diese Vergleiche jeweils einen Teil der Projektarbeiten darstellten. In den Projekten waren verschiedene Einzelziele definiert. So wurden im Vorhaben 1501260, Teil A 4.5 Neutronenfluenzen in Voreilproben von einem russischen Reaktor des Typs WWER-1000 berechnet [41]. Durch ihre Lagen auf dem Eisenreflektor und somit oberhalb des Reaktorkerns war die Verwendung von 3D Programmen geboten. Für die Berechnung wurden TRAMO und MCU (russischer MC-Code) [42] eingesetzt. In den Surveillance-Probenbehälter wurden verschiedene Neutronenfluenzmonitore eingesetzt. Die Vergleiche zwischen den berechneten und gemessenen Aktivitäten zeigten eine sehr gute Übereinstimmung. Die Differen-

zen waren, von wenigen Ausnahmen abgesehen, kleiner 5%. Ein wichtiges Ergebnis des Projektes war, dass innerhalb der Probenbehälter ein sehr starker Flussgradient existiert und die Proben sehr unterschiedliche Fluenzen erfahren haben. Außerdem wurde in diesen zwei Projekten die Strahlenbelastung der Supportkonstruktion sowohl beim WWER-440 (Vorhaben-Nr. 1501331, Teil A 4.3) [46] als auch beim WWER-1000 (Vorhaben-Nr. 1501260, Teil A 4.3) [47] berechnet. Zum Einsatz kam hier neben TRAMO [2] der deterministische Code DORT [3] unter Verwendung der Synthesemethode. Die Ergebnisse konnten ebenfalls an Hand von Messungen validiert werden. Es zeigte sich, dass oberhalb des Kernbereiches bessere Ergebnisse mit dem Programm TRAMO erzielt wurden als mit der Synthesemethode, die für diese Bereiche an ihre Grenzen stößt.

Allgemein zeigen die erzielten Ergebnisse den hohen Validierungsgrad von Neutronenfluenzrechnungen im Bereich des RDB, speziell den des Codes TRAMO.

Ein anderer Weg wurde hingegen im Teil A 4.4 des oben genannten WTZ Vorhabens 1501331 besprochen. Wie bereits erwähnt, wurden für Nachbestrahlungsuntersuchungen im KKW Greifswald Neutronenfluenzen für aus dem RDB entnommene Bohrkerne berechnet [5]. Zur Validierung der Ergebnisse standen hier keine Standardmonitore zur Verfügung, sondern es konnte nur auf Aktivitäten zurückgegriffen werden, die durch Neutronenaktivierung im Stahl selbst entstanden sind. Wegen der großen Zeitspanne zwischen dem Abschalten des KKW's und der Messung kamen nur Nuklide mit relativ langen Halbwertszeiten in Betracht, wie z.B. die Aktivitäten von ^{63}Ni und ^{99}Tc . Diese spielen auch beim Rückbau eine bedeutende Rolle. Tabelle 1 zeigt die C/E Verhältnisse (Calculation/Experiment). Wenn man berücksichtigt, dass die Aktivierung durch thermischen Einfang entsteht und damit größere statistische Unsicherheiten in den Rechnungen existieren, sind die erzielten C/E Werte relativ gut. Dieses Projekt initialisierte auch die Idee für das Projekt WERREBA und bildete die Basis für eine erfolgreiche Bearbeitung.

Tabelle 1: ^{63}Ni und ^{99}Tc Aktivitäten und C/E-Verhältnisse von verschiedenen Proben

	Block 1 (Schweißgut)		Block 4 (Plattierung)	
Höhe vom Coreboden/ Abstand von der RDB-Innenseite	30/4.5 cm	30/7.0 cm	30/0.4 cm	110/0.4 cm
^{63}Ni				
Berechnete Aktivität	7538	3153	4320200	5906100
Gemessene Aktivität	11200	5200	8290000	10400000
C/E-Verhältnis	0.67	0.61	0.52	0.57
^{99}Tc				
Berechnete Aktivität	20.3	14.7	3.9	5.1
Gemessene Aktivität	28.9	21.2	<7	<25
C/E Verhältnis	0.70	0.69		

3.2 Radiologische und physikochemische Untersuchungen

Gammaspektrometrische Untersuchungen verschiedenster Nuklide in den unterschiedlichsten Materialien und Geometrien sowie LSC für Alpha- und Betastrahler als auch Alphaspektrometrie gehören zu den Standardanalysemethoden im IRE des HZDR.

Die für WERREBA geplanten Untersuchungen stellten eine logische Fortführung bisheriger Arbeiten im Rahmen des vom BMWi geförderten Projektes „GRAZ - Geochemische Radionuklidrückhaltung an Zementalterationsphasen“ (Projekt-Nr. 02E11415B) dar. Im GRAZ-Projekt wurde die Freisetzung bzw. Rückhaltung endlagerrelevanter Radionuklide (Cm, Eu und U) in Systemen mit Zementphasen untersucht, namentlich von definierten CSH-Modellphasen mit unterschiedlichen Ca/Si-Verhältnissen und Zementstein unter hyperalkalinen Bedingungen bei mittleren bis hohen Ionenstärken. Es wurden quantitative Parameter zur geochemischen Radionuklidrückhaltung an Zementalterationsphasen in Batchexperimenten ermittelt. Weiterhin lieferten spektroskopische Methoden (TRLFS, site-selective TRLFS) die Speziation der gebildeten Oberflächenkomplexe bzw. beschreiben den strukturellen Einbau der Radionuklide in die Zementphasen auf molekularer Ebene, um ein mechanistisches Verständnis der zugrundeliegenden Prozesse zu erlangen. Unter Anwendung weiterer spektroskopischer/analytischer Methoden (z. B. IR, XRD, REM) wurde die Stabilität der Radionuklid/Zementphasen-Bindung über längere Zeiträume verfolgt und mineralogische Änderungen (Umkristallisationen, Bildung von Sekundärphasen) nachgewiesen [35, 45].

4 Ausführliche Darstellung der Ergebnisse

4.1 Extraktion von Proben aus RDB, Reaktordeckel und Betonabschirmung

4.1.1 RDB

Für die Aktivierungs- und Strukturanalysen von RDB-Proben wurden Bohrkern (Trepanns, siehe Abbildung 1) genutzt, die für bruchmechanische Untersuchungen gewonnen wurden. Zum Teil konnten Proben verwendet werden, die aus bruchmechanischen Versuchen stammten. Andere mussten aus dem ganzen Bohrkern herausgetrennt werden. Entsprechende Maschinen stehen im HZDR in den Heißen Zellen zur Verfügung.

Die meisten Proben stammten aus den RDB der Blöcke 1 und 2. Als Vergleichsmaterial wurden inaktive Proben vom dem Block 8, welcher nie in Betrieb war, verwendet.

Um experimentell die Aktivität in Bezug auf ihre Lage zum Kern zu bestimmen, wurden Stahlproben aus Bohrkernen untersucht, die aus unterschiedlichen vertikalen Höhenpositionen des RDBs stammen. Die meisten Bohrkern im Bereich des Reaktorkerns waren bereits im Rahmen früherer Projekte aufbereitet und bruchmechanisch untersucht worden, so dass hier Proben aus den Bruchstücken der bruchmechanischen Tests verwendet werden konnten. Dagegen waren die Bohrkern oberhalb und unterhalb des Kern nicht untersucht worden und wurden deshalb für die Gewinnung der Analyseproben für dieses Projekt entsprechend aufgetrennt.

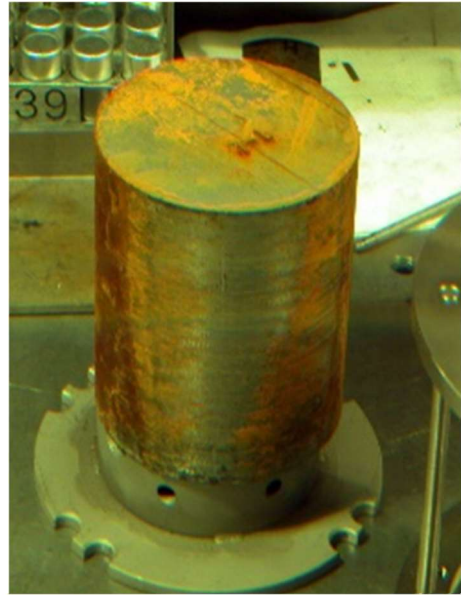


Abbildung 1: Trepan aus dem RDB

Insgesamt wurden rund 10 Proben über einen Höhenbereich von fast 5 m des RDB untersucht, was auch für die Validierung der Rechnungen sehr vorteilhaft war.

4.1.2 Reaktordeckel

Originalmaterial zu bekommen ist immer sehr schwierig, da einerseits das Zeitfenster zwischen der Zerlegung und Verpackung meistens sehr klein ist und andererseits viele Betreiber den zusätzlichen Aufwand mit den Behörden scheuen. Deshalb war es eine einmalige Chance, dass der Reaktordeckel 2 im Laufe des zweiten Quartals 2019, also

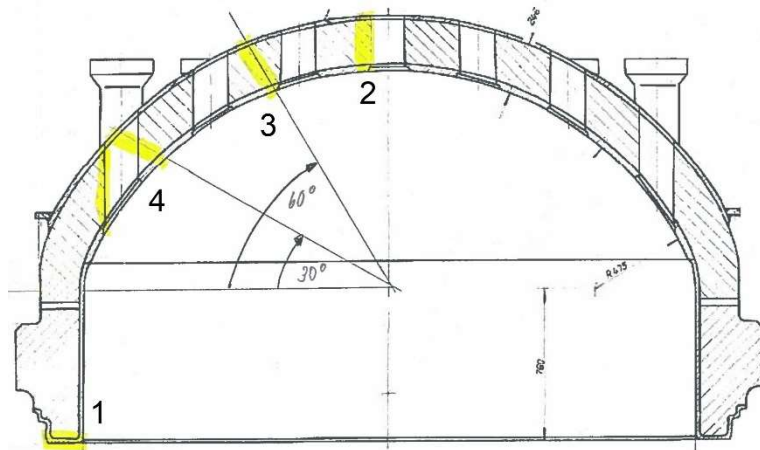


Abbildung 2: Reaktordeckel mit eingezeichneten Probenorten

innerhalb der Projektlaufzeit, zerlegt wurde und Proben für eine radiochemische Analyse gewonnen werden konnten. Damit können mögliche Streaming-Effekte im Bereich des Reaktordeckels experimentell untersucht werden, die bei weit entfernten Konstruktionselementen

höhere Aktivitäten erzeugen. Gerade diese experimentellen Ergebnisse ermöglichen die Überprüfung der komplexen geometrischen Modelle in den Rechnungen. Um einen Vergleich zu ermöglichen, ist eine exakte Dokumentation der Probenentnahmepunkte sehr wichtig.

Die Gewinnung der Proben erfolgte hierbei in drei Schritten. In einem ersten Schritt wurden die Probenentnahmepunkte auf dem Reaktordeckel markiert und dokumentiert. Abbildung 2 zeigt die vier vorgesehenen Entnahmeorte: 1. Reaktordeckelflansch, 2. Reaktordeckelkuppe, 3. bei rund 60° und 4. am Steuerstabdurchbruch.

In einem zweiten Schritt wurde der Reaktordeckel grob vorzerlegt und mittels einer Bandsäge entsprechend weiter zerlegt. Die „Nachzerlegung“ erfolgte so, dass an den entsprechenden Stellen Materialproben von mindestens 10 x 10 mm über die gesamte Wandstärke entstanden.

Abbildung 3 zeigt die Probenstücke, die aus dem Reaktordeckel gesägt wurden. Neben den Materialproben direkt aus dem Deckel wurde auch ein Steuerstabstutzen zur Verfügung gestellt.

Leider kam es auf Grund äußerer und vom Betreiber nicht beeinflussbaren Gründen zu Verzögerungen, so dass die Proben erst im April 2021 vom Kraftwerk zum HZDR transportiert werden konnten und somit erst ab Mai 2021 zur Verfügung standen. Aus zeitlichen Gründen konnten deshalb innerhalb des WERREBA-Projektes keine experimentellen Untersuchungen an den Reaktordeckelproben durchgeführt werden. Die Proben stehen aber mit Genehmigung von EWN Greifswald für weiterführende zukünftige Projekte vollständig zur Verfügung.



Abbildung 3: Materialproben aus dem Reaktordeckel von Block 2

4.1.3 Betonabschirmung

Die Probenahme vom Beton wurde im Unterauftrag von EWN Greifswald ausgeführt. Trotz der etwas längeren Laufzeit des Blocks 1 wurde für die Extraktion der Bohrkern der Reaktor-schachtraum des Blockes 2 gewählt. Der Grund ist, dass im Block 1, wegen des Einsatzes von Abschirmkassetten, kleinere Neutronenfluenzen im RDB berechnet wurden als im Block 2. Somit konnte für Block 2 eine etwas stärkere Neutronenaktivierung auch in den Betonstrukturen erwartet werden.

Die Planung der Probenorte lag beim HZDR. Entscheidend für deren Festlegung war primär die zu erwartende Aktivität, aber auch die Machbarkeit und der nötige Aufwand wurden betrachtet. Es wurden insgesamt zwei Beprobungskampagnen in den Jahren 2019 und 2020 geplant. In der ersten Kampagne sollten 7 Proben entnommen werden, und in Abhängigkeit der Ergebnisse sollten in einer zweiten Kampagne bis zu 3 weitere Proben entnommen werden.

Leider konnten nicht alle der festgelegten Probenorte realisiert werden. So konnten die geplanten vertikalen Bohrungen durch eine ringförmige Plattform im oberen Bereich des RDB-Schachtes nicht durchgeführt werden, da die Betonstruktur an dieser Stelle es nicht zulässt, hier mit trockener Bohrtechnik zu arbeiten. Auch die Bohrungen im Bereich des ehemaligen Ringbehälters mussten azimuthal verschoben werden, da die vorgesehenen Positionen mit Durchführungen verbaut waren. Zusätzlich wurde vereinbart, dass auch Proben von der Raumauskleidung oder eines Durchführungsrohres bereitgestellt werden sollen.

Abbildung 4 zeigt die endgültigen Positionen der Bohrkerne, die nach Rücksprache mit dem HZDR festgelegt wurden, und Tabelle 2 zeigt die Positionen, an denen Bohrkerne extrahiert wurden.

Vier der Bohrkerne (Schwer- bzw. Strahlenschutzbeton) wurden im Bereich der Durchführungen für die Hauptumwälzleitungen und weitere vier (Normalbeton) im Reaktorschachtraum unterhalb des RDBs genommen. Bohrkerne 1, 2 und 3 decken verschiedene Höhen ab. Der Vergleich von berechneten und gemessenen Aktivitäten ermöglicht eine Überprüfung der Abschirmwirkung des Ringwasserbehälters. Bohrkern 4 wurde in der gleichen Höhe genommen wie Bohrkern 3, aber unter einem anderen Winkel und kann einen Hinweis auf die Winkelabhängigkeit der Neutronenaktivierung liefern. Bohrkern 5 stammt aus der Seitenwand des Reaktorschachtraums in Höhe der Belüftungsrohre (in Abbildung 4 sichtbar) und des Zugangs. Die Bohrkerne 6, 7 und 8 stammen aus dem Boden des Reaktorschachtraums. Für Bohrkern 7 wurde die Position so gewählt, dass sie unterhalb des Spalts zwischen RDB und Ringwasserbehälter liegt (Vergleiche

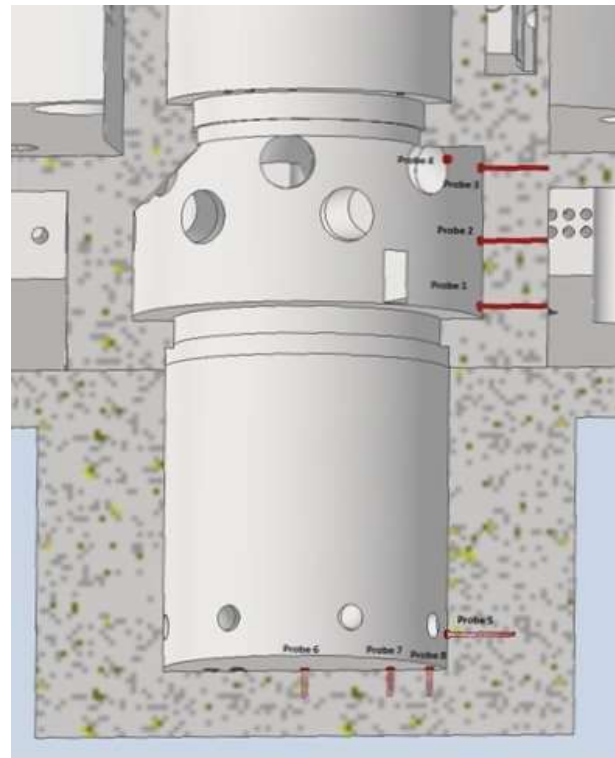


Abbildung 4: Positionen der entnommenen Bohrkerne aus der biologischen Abschirmung und dem Fundament am Block 2

Kapitel 4.4.4). Für Bohrkerne 6 und 8 werden etwas kleinere Neutronenfluenzen erwartet als für Bohrkern 7.

Tabelle 2: Positionen der Bohrkerne aus dem Beton des Blockes 2. Angaben der Höhen und Radien beziehen sich auf die von EWN zur Verfügung gestellten Bauzeichnungen und werden auch in Abbildung 13 verwendet.

Probe 1:	0°	(Achse II) in Höhe von -0,6 m
Probe 2:	0°	in Höhe von 0,9 m
Probe 3:	0°	in Höhe von 2,56 m
Probe 4:	30°	in Höhe von 2,56 m
Probe 5:	0°	in Höhe -8,1 m
Probe 6:		am Boden des Reaktorschachtraumes und in der Reaktorachse
Probe 7:	0°	am Boden des Reaktorschachtraumes mit Radius 1,95 m
Probe 8:	0°	am Boden des Reaktorschachtraumes mit Radius 2,85 m

Die Bohrkerne wurden in zwei Etappen gewonnen. Die Proben 1, 2, 5, 7 und 8 wurden in einem ersten Schritt genommen und in einem zweiten die Proben 3, 4 und 6 sowie die Probe der Raumauskleidung bzw. vom Durchführungsrohr. Die Aufteilung war erforderlich, da für die zweite Probenahme ein Gerüst im Reaktorschachraum aufgestellt werden musste.

Auch hier ist es zu erheblichen Verzögerungen bei der Bereitstellung der Proben gekommen. Auf Grund der außergewöhnlichen Situation 2020 (Corona) konnten nur begrenzt Gespräche mit der Behörde stattfinden und die entsprechende Genehmigung für das Ausführen der Bohrungen wurde erst Frühjahr 2021 erteilt, so dass die Proben erst im Juni 2021 (Charge 1) und November 2021 (Charge 2) aus Greifswald zum HZDR geliefert wurden.

Die Abbildung 5 zeigt drei Bilder von den Bohrkernen aus dem biologischen Schild und dem Fundament des Blockes 2. Bei den rötlichen Bohrkernen handelt es sich um den Schwerbeton.



Abbildung 5: Bohrkerne aus dem biologischen Schild und dem Fundament des Blockes 2

Die hellgrauen Bohrkerne im linken Bild bestehen aus Estrich und Normalbeton. Sehr deutlich sieht man die Heterogenität des Betons mit sehr vielen Einschlüssen, die zum Bruch der Bohrkerne schon bei der Gewinnung führten. Längere Fragmente konnten nur im Bereich des Fundamentes gewonnen werden.

4.2 Experimentelle Bestimmung der Aktivitäten im Stahl und Beton

4.2.1 Aktivitätsbestimmung in Stahlproben

Aus den RDB der Blöcke 1 und 2 wurden Stahlproben aus dem Grundmaterial und aus der Schweißnaht aus verschiedenen Höhen radioanalytisch untersucht. Mittels Gammaskopie wurde der ^{60}Co -Gehalt und mittels LSC nach oxidativer Verbrennung der ^{14}C -Gehalt quantitativ bestimmt. Für die ^{60}Co -Bestimmung wurden Plättchen der Größe $10 \times 10 \times 2 \text{ mm}^3$ mit einem hochreinen Germanium-(HPGe-) Detektor (EG&G Ortec-Ametek) entweder bei geringerer Aktivität direkt auf dem Detektor oder bei hoher Aktivität mit einem Abstand von 8 cm vom Detektor gemessen und mit der Software InterWinner 8.0 ausgewertet. Für jede Position wurden mindestens 3 unabhängige Messungen durchgeführt. Für die ^{14}C -Bestimmung wurden Plättchen der Größe $10 \times 5 \times 1 \text{ mm}^3$ oxidativ verbrannt (Hidex 600 OX Oxidizer) und das entstandene CO_2 direkt im Verbrennungsofen in LSC-Vials eingeleitet, welche automatisch mit dem speziell für ^{14}C vorgesehenen LSC-Cocktail RadioCarbon (Fa. Hidex) gefüllt wurden. Die Aktivitätsmessungen wurden mit dem LSC-Gerät Hidex 600 SL ausgeführt und der zugehörigen Software MikroWin ausgewertet. Hier wurden mindestens 2 unabhängige Messungen durchgeführt. Die Probenpositionen und zugehörigen Messergebnisse für ^{60}Co und ^{14}C sind in Tabelle 3 aufgelistet und die Messergebnisse in Abbildung 6 graphisch dargestellt.

Tabelle 3. Probenpositionen sowie ^{60}Co - und ^{14}C -Messergebnisse der RDB-Stahlproben (Bezugsdatum der Aktivitäten: 31.12.2020)

Probe	Position			^{60}Co (Bq/g)	^{14}C (Bq/g)
	Axial bzgl. Boden Reaktorkern (cm)	Azimuthal ($^\circ$)	Horizontal von innerer Wand (mm)		
Block 1, Grundmaterial					
1-3-1	275	300	7.5	735 ± 68	11 ± 7
1-3-2			39	273 ± 50	3 ± 2
1-3-3			71	208 ± 17	1.5 ± 0.6
1-3-4			102.5	223 ± 16	1.1 ± 1.6
Block 1, Grundmaterial					
1-4-1	72	330	8	$(1.45 \pm 0.01) \text{ E}+05$	n.d.
1-4-8			66	$(1.16 \pm 0.02) \text{ E}+04$	n.d.
1-4-16			132	$(4.74 \pm 0.1) \text{ E}+03$	n.d.
Block 2, Schweißnaht					
2-4-1	-161	300	7.5	8.0 ± 1.3	0.85 ± 0.99
2-4-2			39	4.3 ± 1.3	0.31 ± 0.03
2-4-3			71	7.4 ± 1.5	0.21 ± 0.07
2-4-4			102.5	7.4 ± 2.1	0.80 ± 0.99

Die Aktivierung ist in der Höhe des Reaktorkerns (1-4) um Größenordnungen höher als an den Positionen, die ober- (1-3) bzw. weit unterhalb (2-4) der Kernebene liegen (siehe Abb. 6).

Es ist deutlich zu erkennen, dass, wie erwartet, die Aktivierung bei den Trepann 1-4 und 1-3 von der Innenseite des RDB zur Außenseite hin abnimmt. Im Gegensatz dazu ist beim Trepann 2-4 nach außen hin eine erneute Zunahme der ^{60}Co - und ^{14}C -Aktivitäten gemessen worden. Eine Erklärung hierfür wird im Kapitel 4.4 folgen.

Zusätzlich wurden für die exakten Aktivitätsberechnungen die Elementzusammensetzungen der Stahlproben (Grundmaterial und Schweißnaht) aus den Blöcken 1 und 2 sowie zum Vergleich von inaktiven Proben aus Block 8 mittels optischer Funkenspektrometrie (OES) quantitativ bestimmt. Dafür wurden Plättchen der Größe $10 \times 10 \times 2 \text{ mm}^3$ mit Zirkon-Schleifpapier (Körnung P60) poliert, mit Ethanol gereinigt und anschließend direkt mit dem Funkenspektrometer SpectroMAXx (Spectro Ametek) analysiert. Die Messergebnisse sind in Tabelle 4 zusammengefasst.

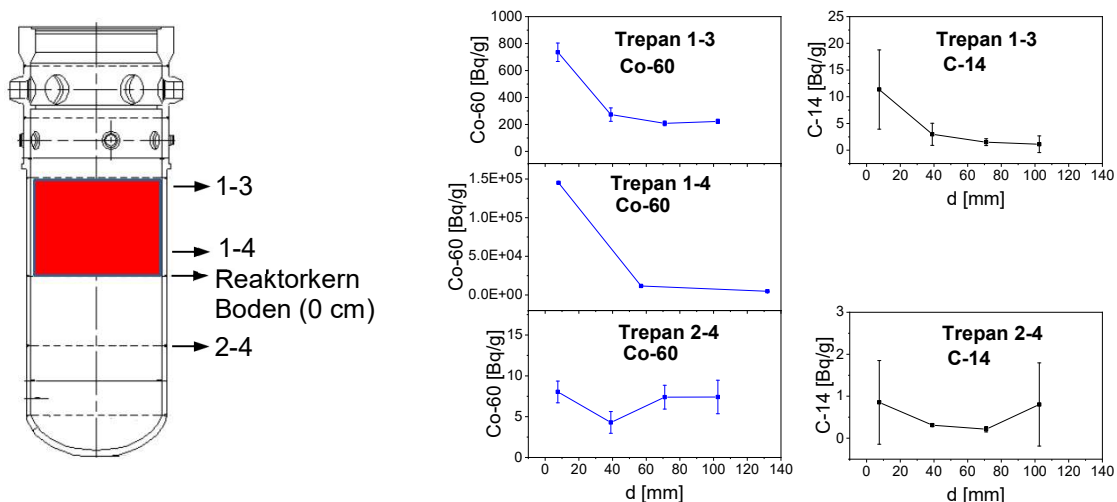


Abbildung 6: Links: Schematische Darstellung der Probenpositionen; rechts: ^{60}Co - und ^{14}C -Aktivitäten der RDB-Stahlproben

Tabelle 4. Elementzusammensetzung der RDB-Stahlproben (Auswahl)

Masse (%)	C	Si	Mn	Cr	Ni	V	Mo	Cu	Co	S	N
Block 8 Grundmaterial	0.15	0.26	0.47	2.87	0.08	0.29	0.72	0.05	0.01	0.01	0.004
Block 8 Schweißnaht	0.05	0.55	1.08	1.40	0.05	0.17	0.53	0.08	0.01	0.01	0.010
Block 1 Grundmaterial	0.14	0.29	0.43	3.06	0.18	0.27	0.68	0.17	0.02	0.01	0.0039
Block 2 Schweißnaht	0.06	0.38	0.95	1.62	0.17	0.14	0.45	0.16	0.02	0.01	0.0088

4.2.2 Aktivitätsbestimmung in Betonproben

Zur Aktivitätsbestimmung wurden die Bohrkern mit der zu erwartenden höchsten Aktivierung, Nr. 7 und 8 (siehe Abbildung 4) ausgewählt. Beide Bohrkern aus dem Fundament des Blockes 2 bestehen aus einer oberen, ca.11 cm dicken Estrichschicht (Zement) und je 2 Teilen Normalbeton (siehe Abbildung 7, links, Mitte). Die Gesamtlänge beträgt 33 cm für Bohrkern 7 (GW 7) und 45 cm für Bohrkern 8 (GW 8).

Aus den Bohrkernstücken wurden kleinere Bohrkern mit 20 mm Durchmesser und ca. 3-4 cm Länge (ca. 20-25 g) herausgebohrt (siehe Abbildung 7, rechts). Diese kleineren Bohrkern wurden zur weiteren Analyse erst grob mit einem Hammer zerkleinert und dann fein mit einer Kugelmühle (Pulverisette 7 Premium, Fritsch) bis auf eine Korngröße von <200 µm gemahlen.

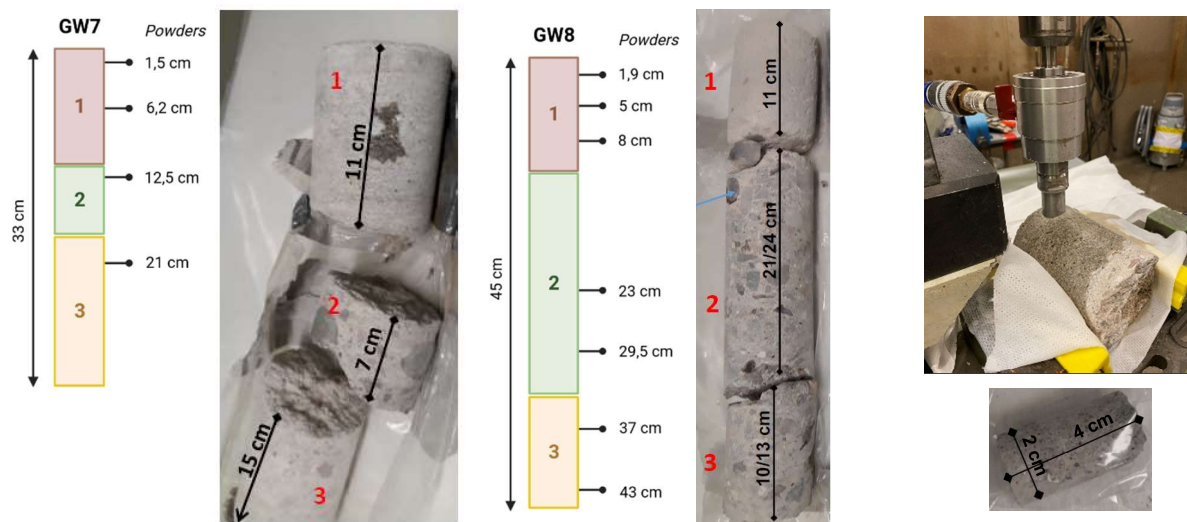


Abbildung 7: Links, Mitte: Bohrkern 7 und 8 mit schematischen Positionen der kleineren pulverisierten Bohrkern. Rechts: Bohren der kleineren Bohrkern

Die wichtigsten durch Aktivierung entstehenden Radionuklide im Beton sind die Gammastrahler ^{60}Co , ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{133}Ba und ^{137}Cs sowie die Betastrahler ^{55}Fe , ^{63}Ni , ^{41}Ca , ^{14}C und ^3H . Im Projekt wurden die Materialproben umfangreich gammaspektrometrisch untersucht und die Betastrahler ^{14}C und ^3H quantitativ bestimmt. Für die Analyse von ^{55}Fe , ^{63}Ni und ^{41}Ca sind aufwändige radiochemische Separationen notwendig, die im Rahmen dieses Projektes mit den zur Verfügung stehenden labortechnischen Mitteln nicht erfolgreich durchgeführt werden konnten.

Für die Gammaspektrometrie zur Bestimmung von ^{60}Co , ^{152}Eu und ^{154}Eu wurden jeweils ca. 3.5 g Pulver in kleine PE-Tütchen gefüllt und direkt auf dem Detektor (HPGe Gammadetektor, EG&G Ortec) für 65-90 h gemessen. Die möglichen Aktivitäten von ^{133}Ba und ^{137}Cs waren bei den angewendeten experimentellen Bedingungen unterhalb der Nachweisgrenze (0.1 Bq/g).

Die gemessenen Aktivitäten von ^{60}Co , ^{152}Eu und ^{154}Eu der Proben aus den Bohrkernen 7 und 8 für sind in Abbildung 8 als Aktivitätstiefenprofil dargestellt, in Tabelle 5 sind die Messwerte zusammengefasst.

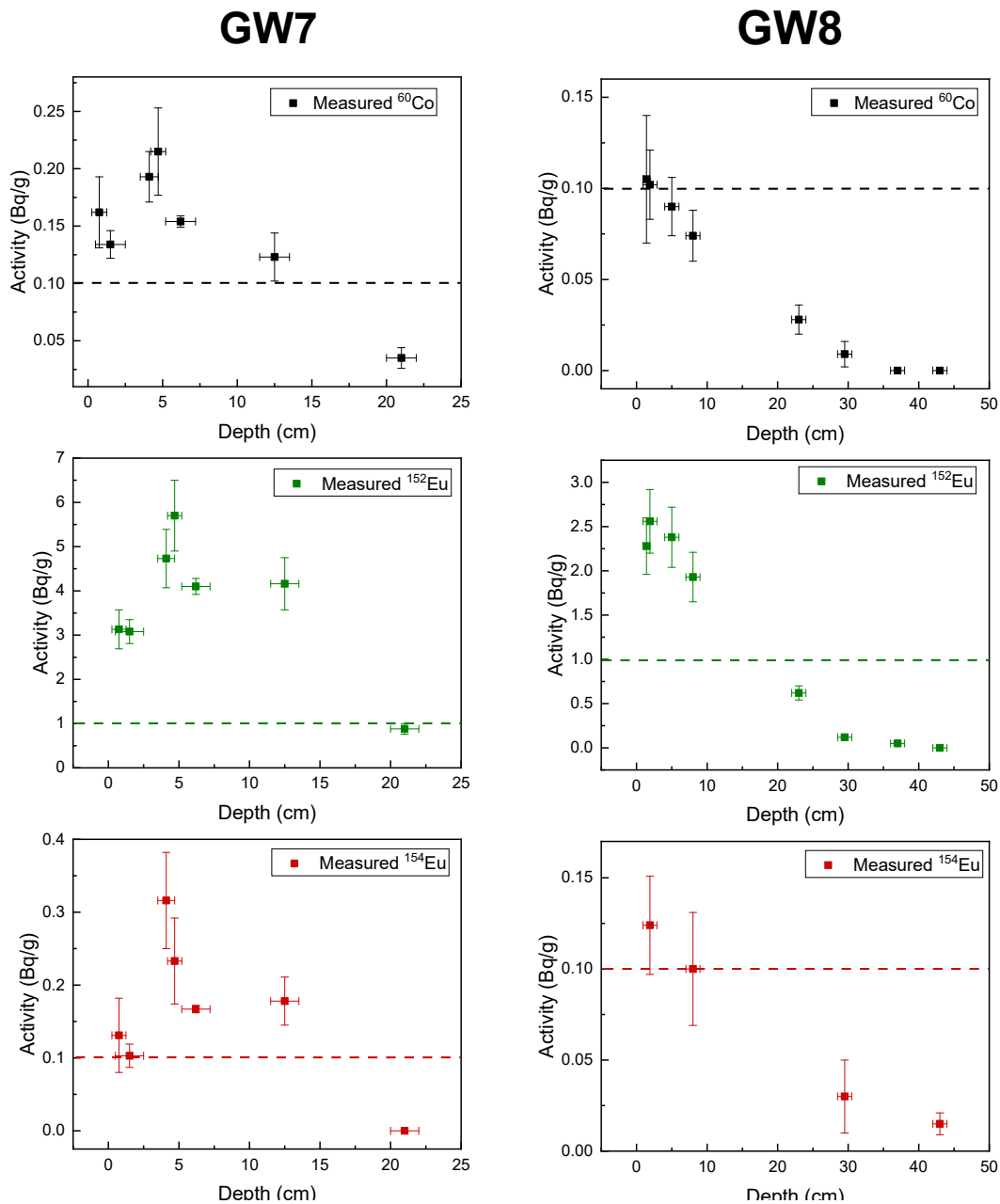


Abbildung 8: Aktivitäten von ^{60}Co , ^{152}Eu und ^{154}Eu in den Bohrkernen 7 und 8 in Abhängigkeit der Tiefe. Die Strichlinien markieren die Grenzen zur uneingeschränkten Freigabe.

Die gemessenen Aktivitäten sind für alle 3 Nuklide im Bohrkern 7 höher als im Bohrkern 8. Im Bohrkern 7 ist die höchste Aktivität in einer Tiefe von ca. 5 cm zu beobachten. Eine Erklärung dazu wird in Kapitel 4.4 geliefert. Weiterhin ist im Bohrkern 7 ein leichter Anstieg der Aktivität bei ca. 12 cm zu beobachten. Dies korreliert mit dem Wechsel des Materials von Zement zu Normalbeton und könnte demzufolge durch eine unterschiedliche Materialzusammensetzung verursacht sein. Dazu folgen weitere Ausführungen in Kapitel 4.3.

Tabelle 5. Aktivitäten von ^{60}Co , ^{152}Eu und ^{154}Eu in verschiedenen Tiefen der Bohrkern 7, 8

Probe	Tiefe (cm)	^{60}Co		^{152}Eu		^{154}Eu	
		Aktivität (Bq/g)	Fehler (Bq/g)	Aktivität (Bq/g)	Fehler (Bq/g)	Aktivität (Bq/g)	Fehler (Bq/g)
7/1-6	0.75	0.162	0.031	3.13	0.44	0.131	0.051
7/1-5	1.5	0.134	0.012	3.08	0.27	0.103	0.090
7/1-8	4.1	0.193	0.022	4.73	0.66	0.316	0.047
7/1-7	4.7	0.215	0.038	5.70	0.80	0.233	0.059
7/1-13	6.2	0.154	0.005	4.10	0.18	0.167	0.005
7/2-3	12.5	0.121	0.021	3.71	0.52	0.186	0.035
7/2-4	12.5	0.125	0.021	4.61	0.66	0.169	0.032
7/3-1	21	0.035	0.009	0.88	0.12	<DL	-
8/1-4a	1.4	0.105	0.035	2.28	0.32	0.458	0.161
8/1-1a	1.9	0.102	0.019	2.56	0.36	0.124	0.027
8/1-2b	5	0.090	0.016	2.38	0.34	<DL	-
8/1-9	8	0.074	0.014	1.93	0.28	0.100	0.031
8/2-A5	23	0.028	0.008	0.62	0.08	<DL	-
8/2-A6	29.5	0.009	0.007	0.12	0.02	0.030	0.020
8/3-2	37	<DL	-	0.05	0.009	<DL	-
8/3-1	43	<DL	-	<DL	-	0.015	0.006

Für Bohrkern 8 sind beide Effekte weniger stark bis gar nicht zu beobachten. Dies liegt zum einen an der generell niedrigeren Aktivierung und zum anderen an größeren Abständen zwischen den Probenpositionen.

In den Pulverproben wurde außerdem der ^{14}C - und ^3H -Gehalt durch LSC nach oxidativer Verbrennung quantitativ bestimmt. Das Verfahren wurde analog zu den Stahlproben mit jeweils ca. 1 g Pulver pro Messung angewandt. Für die ^3H -Messung wurde der spezielle LSC-Cocktail Hidex OX 600 Tritium (Hidex) eingesetzt.

Die Messwerte sind in Tabelle 6 aufgelistet und in Abbildung 9 graphisch dargestellt. Auch für diese Nuklide ist zu beobachten, dass die Aktivität innerhalb der Estrichschicht (bei Bohrkern 7) und beim Übergang vom Estrich zu Normalbeton zunimmt.

Tabelle 6. Aktivitäten von ^{14}C und ^3H in verschiedenen Tiefen der Bohrkern 7 und 8.

Probe	Tiefe (cm)	^3H		^{14}C	
		Aktivität (Bq/g)	Fehler (Bq/g)	Aktivität (Bq/g)	Fehler (Bq/g)
7/1-5	1.5	8.705	0.224	1.122	0.223
7/1-13	6.2	11.695	0.331	1.598	0.234
7/2-3	12.5	24.909	-	5.857	0.601
7/2-4	12.5	49.295	4.298	8.466	0.143
7/3-1	21	3.072	-	1.262	0.135
8/1-1a	1.9	9.023	-	2.598	0.003
8/1-2b	5	7.034	0.020	1.751	0.070
8/1-9	8	6.227	0.516	1.666	0.052
8/2-A5	23	3.618	0.437	1.981	0.048
8/2-A6	29.5	0.467	0.107	0.047	0.047
8/3-2	37	0.637	0.224	<DL	-
8/3-1	43	0.199	0.030	<DL	-

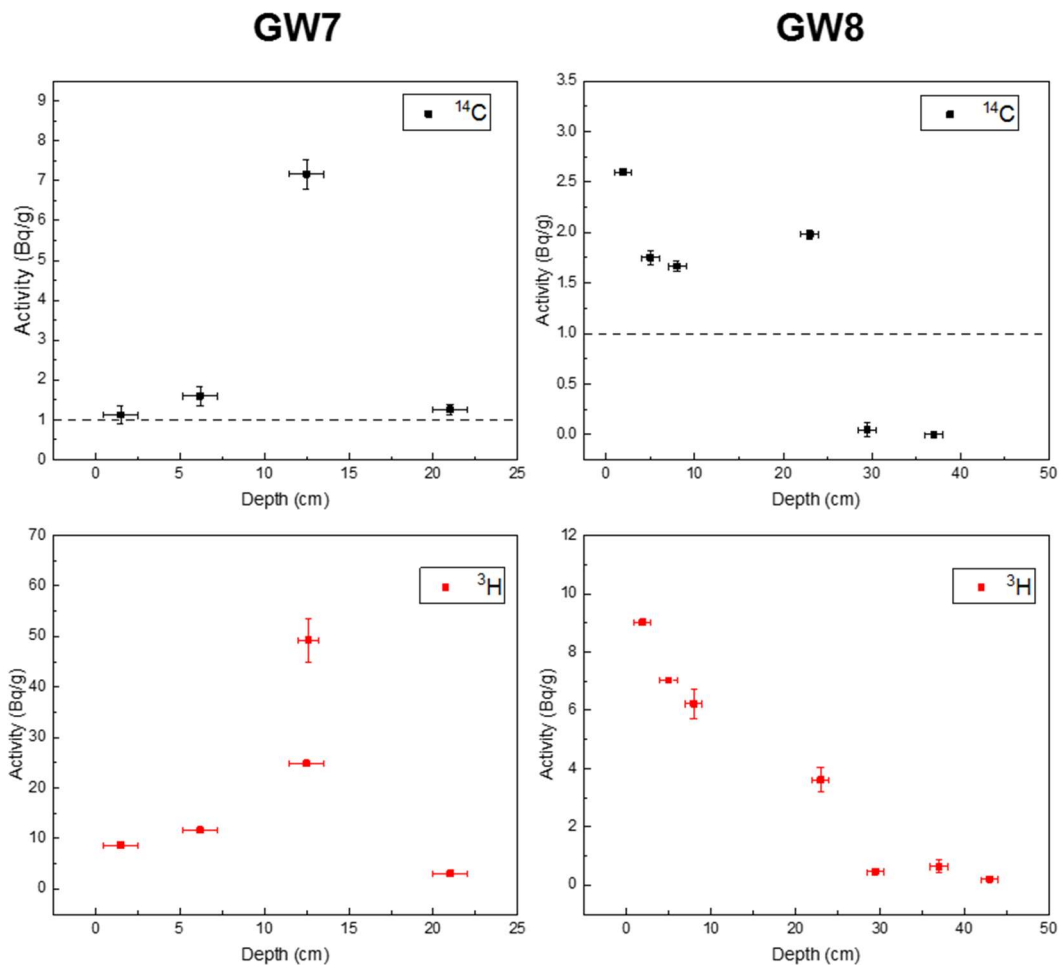


Abbildung 9: Aktivitäten von ^{14}C und ^3H in den Bohrkernen 7 und 8 in Abhängigkeit der Tiefe.

4.3 Strukturelle Charakterisierung des Radionuklidinventars im Beton

4.3.1 Bestimmung der kristallinen Phasen

Für die strukturelle Charakterisierung des Betons und zur Identifizierung der Mineralphasen ist die Kenntnis der chemischen Zusammensetzung zwingende Voraussetzung. Dazu wurde die Elementzusammensetzung durch Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS) nach Mikrowellenaufschluss des Betons in einer Mischung aus Königswasser und Fluorwasserstoffsäure unter erhöhtem Druck und Temperatur bestimmt. Die Analyseergebnisse der für die Materialcharakterisierung wichtigsten Elemente sind in Tabelle 7 aufgelistet. Für die Aktivierung des Betons sind hauptsächlich die Spurenelemente Co, Eu, und Li (Bildung von ^3H) verantwortlich. Es ist ein deutlicher Unterschied im Gehalt dieser Elemente zwischen der Zementschicht und dem Beton festzustellen. Die Betonproben enthalten jeweils deutlich mehr Co, Eu und Li, was die Erhöhung der Aktivität an der Materialgrenze (10-12 cm, siehe Kapitel 4.2.2) erklärt.

Tabelle 7. Elementzusammensetzung von Zement (Estrich) (7/1, 8/1) und Normalbeton (7/2, 7/3, 8/2) der Bohrkern 7 und 8 (Auswahl).

Probe	Massenanteil (µg/g)								
	Li	Co	Eu	Na	Mg	Al	Si	K	Ca
7/1	9.21	3.75	0.413	4030	3905	17200	267000	12700	118500
7/2	30.1	4.85	0.836	15350	5025	39350	207500	21500	88200
7/3	34.0	5.43	0.915	21300	6095	46950	194500	26150	69850
8/1	16.9	4.62	0.502	7230	4225	20750	185000	10100	104500
8/2	63.5	6.44	0.990	13900	5605	50300	192500	26150	71950

Mithilfe von Pulver-Röntgendiffraktometrie (P-XRD, Rigaku Miniflex 600 XRD) wurde die Mineralzusammensetzung der Zement- und Betonphasen an ausgewählten Pulverproben der Bohrkern 7 und 8 ermittelt. In Tabelle 8 sind alle gefundenen Minerale aufgelistet, die Tabellen 9 und 10 enthalten die jeweils wichtigsten Minerale, sortiert nach ihrer Häufigkeit, in den jeweiligen unterschiedlichen Materialien.

Tabelle 8. Minerale, die in den Bohrkernen 7 und 8 mit P-XRD identifiziert wurden.

Mineral	Formel
Quarz	SiO ₂
Mikroclin	(K _{0.89} Na _{0.11}) (Al Si ₃ O ₈)
Albit	(K _{0.2} Na _{0.8}) (Al Si ₃ O ₈)
Calcit	CaCO ₃
Ettringit	Al Ca ₃ H ₃₄ S _{1.5} O _{24.5}
Muskovit	K Al ₂ (Si ₃ Al O ₁₀) (OH) ₂
Gips	Ca(SO ₄)(H ₂ O) ₂
Biotit	Al _{4.96} Fe _{5.60} Mg _{2.84} Na _{0.09} Si _{5.45} Ti _{0.65} O ₄₈
Portlandit	Ca(OH) ₂
Hornblende	Al _{4.84} Ca _{3.61} Fe _{3.70} H ₄ Mg _{4.45} Na _{1.26} O ₄₈ Si _{12.89} Ti _{0.15}
Klinochlor	Al _{1.84} Fe _{0.5} H ₈ Mg _{4.5} O ₁₈ Si _{3.16}
Kaolinit	Al ₂ H ₄ Si ₂ O ₉
Anorthit	Al Ca Si O ₄

Tabelle 9. Wichtigste Minerale und deren Massenanteil in verschiedenen Proben (Zement und Normalbeton) in Bohrkern 7.

Probe	Anteil in Massen-%			
	7/1-2 (Zement)	7/1-12 (Zement)	7/2-1 (Beton)	7/3-1 (Beton)
Tiefe (cm)	1.5	6.2	16	21
Quarz	48.2	48.8	22.8	20.8
Mikroclin	12.3	16.3	11.3	36.3
Albit	19.8	23.8	29.4	29.7
Calcit	5.40	4.25	4.31	4.2
Ettringit	4.0	0.97	-	-
Muskovit	0.98	3.4	7.2	1.52
Gips	4.4	1.01	-	0.25
Biotit	3.9	0.22	0.88	2.1
Portlandit	1.06	0.98	0.70	-
Anorthit	-	0.29	-	-
Klinochlor	-	-	16.4	4.2
Kaolinit	-	-	7.1	4.0

Tabelle 10. Wichtigste Minerale und deren Massenanteil in verschiedenen Proben (8/1-x: Zement, 8/2-x und 8/3-x Normalbeton) in Bohrkern 8.

Anteil in Massen-%							
Probe	8/1-1a	8/1-2b	8/1-9	8/2-A5	8/2-A6	8/3-2	8/3-1
Tiefe (cm)	1.9	5	8	23	29.5	37	43
Quarz	51.5	55.2	61.5	49.1	37.6	34.6	53.2
Mikroclin	16.1	24.0	22.2	6.1	13.0	17.0	4.8
Albit	12.0	10.2	6.9	16.6	25.2	13.0	17.8
Calcit	6.96	2.48	3.58	11.07	10.36	3.36	6.43
Ettringit	2.40	1.28	1.53	1.83	2.87	1.70	1.66
Muskovit	7.5	1.1	-	9.9	5.72	3.5	10.7
Gips	1.73	0.51	0.45	1.58	1.30	0.67	0.49
Biotit	0.10	3.6	-	0.75	3.9	1.4	1.4
Portlandit	2.05	1.58	0.82	-	-	-	-
Hornblende	-	-	-	3.08	-	6.4	1.39
Klinochlor	-	-	3.0	-	-	-	1.18
Kaolinit	-	-	-	-	-	13.8	0.95

Die wichtigste Mineralphase ist in allen Proben Quarz. Andere wichtige Phasen sind Mikroclin, Albit, Calcit und Muskovit. Die Zementschicht (Estrich) enthält immer Portlandit und weist höhere Anteile an Mikroclin auf. Der Beton enthält mehr Albit und Calcit, aber weniger Mikroclin sowie andere Phasen wie Kaolinit und Klinochlor. Generell ist die Phasenzusammensetzung in der Zementschicht homogener als im Beton, welcher zum Teil größere Einschlüsse in Dimensionen von bis zu mehreren cm enthält.

Um nähere Informationen darüber zu bekommen, in welchen Phasen die meiste Aktivierung zu erwarten ist, wurde an kleinen polierten Scheiben (ca. 1 cm Durchmesser) Autoradiographie (Platten: Amersham Biosciences RPN 11647, Auswertung: Biorad Pharos FX Plus Molecular Imager, Software Quantity One) mit μ -Raman-Untersuchungen (Horiba Labram Aramis Raman Spektrometer) kombiniert. Über Autoradiographie lassen sich Bereiche mit einer höheren Dichte an radioaktivem Material identifizieren (stärkere Schwärzung). Diese Stellen lassen sich dann punktuell unter dem Mikroskop über Raman-Spektroskopie Mineralphasen zuordnen. Das Prinzip der Methodenkombination ist in Abbildung 10 dargestellt. Tabelle 11 enthält die Ergebnisse verschiedener analysierter Zement- und Betonscheiben aus den Bohrkernen 7 und 8. In Tabelle 12 sind die mit μ -Raman-Spektroskopie gefundenen Minerale aufgelistet.

Die erzielten Ergebnisse zeigen, dass die über μ -Raman identifizierten Mineralphasen Orthoklas, Anorthoklas, Mikroclin, Muskovit und Biotit die höchste Aktivierung aufweisen. Diese Phasen, alles Feldspate, zeigen meist eine rosarote Farbe auf der Oberfläche der Proben, und es ist allgemein bei allen Kernen zu beobachten, dass die Phasen mit weniger rosaroter Farbe auch weniger aktiviert sind.

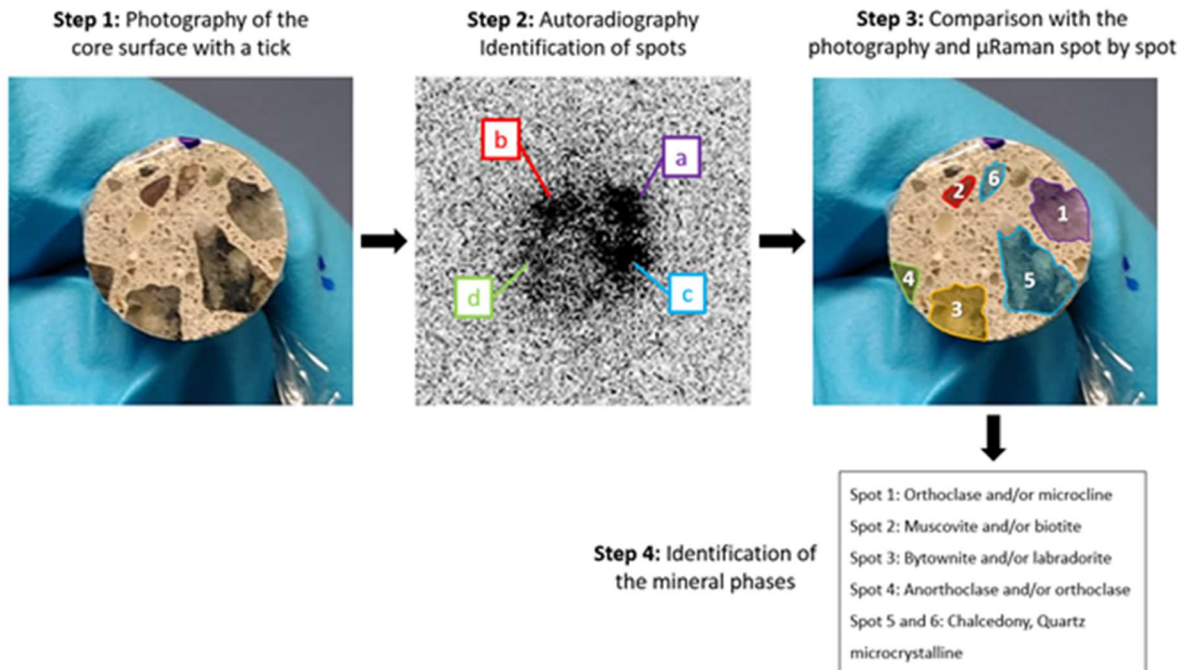
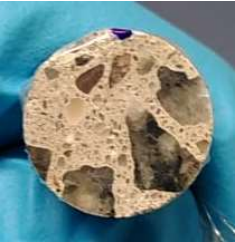
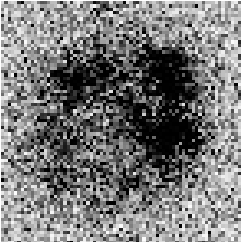
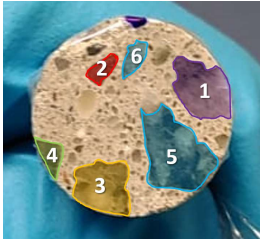
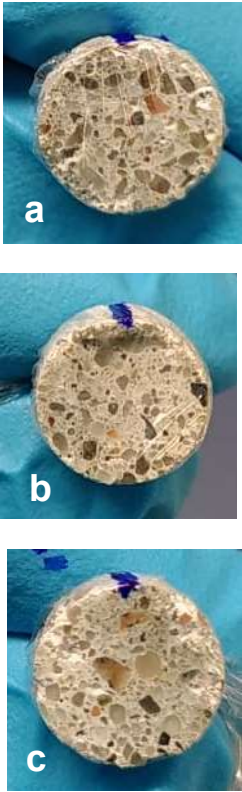
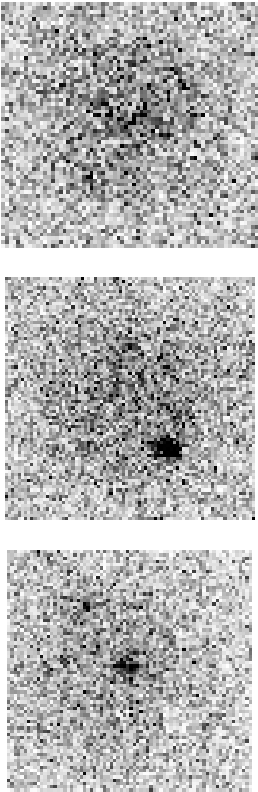
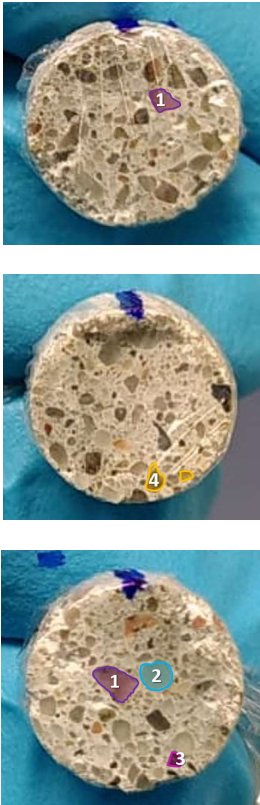


Abbildung 10: Prinzip der Kombination von Autoradiographie und μ -Raman-Spektroskopie zur Identifizierung der aktivierten Mineralphasen

Tabelle 11. Identifizierte aktivierte Mineralphasen in verschiedenen Zement- und Betonscheiben durch Kombination von Autoradiographie und μ -Raman-Spektroskopie

Probe	Foto	Autoradiographie	Phasenidentifikation mit μ -Raman	Identifizierte aktivierte Mineralphasen
7/1				Spot 1: Orthoklas und/oder Mikroklin Spot 2: Anorthoklas Spot 3: Bytownit und/oder Albit

Probe	Foto	Autoradiographie	Phasenidentifikation mit μ -Raman	Identifizierte aktivierte Mineralphasen
7/2				<p>Spot 1: Orthoklas und/oder Mikroklin Spot 2: Muskovit und/oder Biotit Spot 3: Bytownit und/oder Labradorit Spot 4: Anorthoklas und/oder Orthoklas Spot 5 und 6: Chalcedon, Quarz mikrokrystallin</p>
8/1				<p>Spot 1: Orthoklas Spot 2: Quarz Spot 3: eventuell Epidot Spot 4: Bytownit</p>


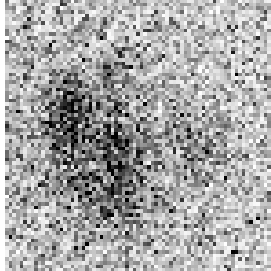
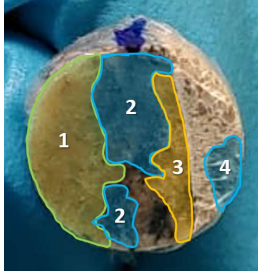
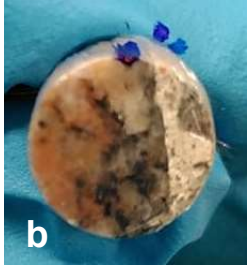
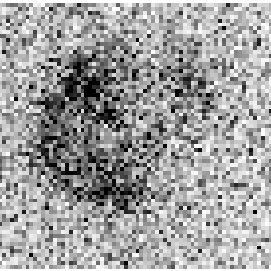
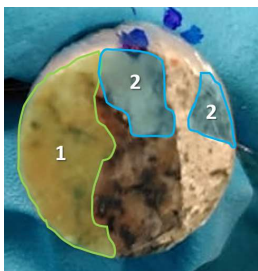
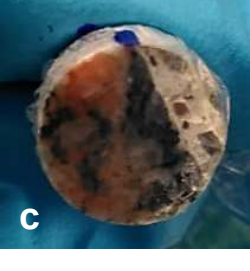
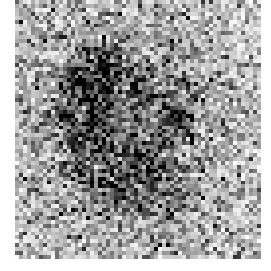
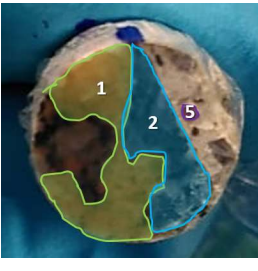
Probe	Foto	Autoradiographie	Phasenidentifikation mit μ -Raman	Identifizierte aktivierte Mineralphasen
8/2				Spot 1: Anorthoklas Spot 2: Quarz Spot 3: Bytownit und/oder Labradorit Spot 4: Quarz Spot 5: Orthoklas und/oder Albit
				
				

Tabelle 12. Mit μ -Raman-Spektroskopie identifizierte Mineralphasen

Mineral	Formel
Orthoklas, Mikroklin	$(K_{0.89} Na_{0.11}) (Al Si_3 O_8)$
Anorthoklas	$(Na K) Al Si_3 O_8$
Bytownit, Labradorit	$(Ca Na) (Al (Al Si) Si_2 O_8)$
Quarz	SiO_2
Muskovit	$K Al_2 (Si_3 Al O_{10}) (OH)_2$
Biotit	$Al_{4.96} Fe_{5.60} Mg_{2.84} Na_{0.09} Si_{5.45} Ti_{0.65} O_{48}$
Epidot	$(Ca_2) (Al_2 Fe^{3+}) (Si O_4) (Si_2 O_7) O (OH)$

Die über μ -Raman-Spektroskopie identifizierten Mineralphasen, welche den Hauptteil der aktivierten Nuklide enthalten (siehe Tabelle 12), sind zum Teil mit P-XRD in den Pulverproben nicht gefunden worden (siehe Tabelle 8). Das kann damit begründet werden, dass die Elemente, welche durch die Neutronenstrahlung aktiviert werden (hauptsächlich Co, Eu, Fe, Ni, Li) nur in Spuren im Gesamtmaterial und damit in Mineralphasen, welche ebenfalls nur in Spuren auftreten, enthalten sind. Durch die Kombination von Autoradiographie und μ -Raman-

Spektroskopie an Betonscheiben konnten diese Phasen ganz gezielt und punktuell identifiziert werden.

4.3.2 Bestimmung der Porengrößen im Beton

Poren im Beton können eindringendes Wasser aufnehmen und speichern und damit die Auflösung der verschiedenen kristallinen und amorphen Phasen im Beton beschleunigen, was eine Mobilisierung der Radionuklide zur Folge haben könnte. Die Kenntnis der Porengrößen kann dazu beitragen, eine potentiellen Mobilisierung der Radionuklide besser abschätzen zu können.

Untersuchungen zu Porengrößen im Beton wurden an nicht aktivierten vergleichbaren Betonproben durchgeführt, da dafür zum einen Methoden eingesetzt wurden, die nicht im radioaktiven Kontrollbereich unseres Institutes vorhanden sind und deshalb nur nichtaktive Proben eingesetzt werden konnten. Zum anderen wurden diese Untersuchungen zu Beginn des Projektes mit bereits vorhandenem Material durchgeführt, um die zeitliche Verzögerung der Materiallieferung aus dem KKW Greifswald sinnvoll zu überbrücken.

Kleine Bohrkerne (ca. 5 mm Durchmesser, 2 mm Länge) wurden mit μ -Computertomographie (μ -CT) und Rasterelektronenmikroskopie (REM) untersucht, um die dreidimensionale Struktur qualitativ abzubilden. Außerdem wurden die Porengrößen mittels Gasadsorption (N_2 -BET-Methode) und Quecksilberporosimetrie (Mercury Intrusion Porosimetry, MIP) bestimmt. Die Kombination der Methoden liefert ein Gesamtbild über die Porengrößenverteilung im Beton.

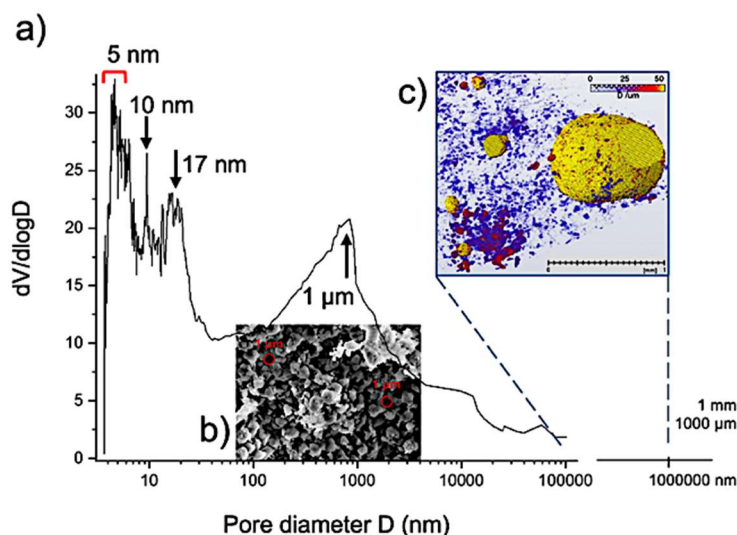


Abbildung 11: a) Porengrößenverteilung in einem kleinen Betonbohrkern, bestimmt durch MIP; b) REM-Aufnahme der Betonprobe, in der Kapillarporen der Größe $\sim 1 \mu$ m deutlich zu erkennen sind; c) μ -CT der Probe mit Luftporen (gelb) im mm-Bereich sowie Mikroporen (rot: $\sim 40 \mu$ m; blau: $\sim 20 \mu$ m).

In Abbildung 11 ist die Porenverteilung in einer Betonprobe, die mit MIP bestimmt wurde, dargestellt. μ -CT und SEM visualisieren die Verteilung der Poren in der Betonprobe. Die Poren weisen eine sehr breite Größenstreuung im Bereich von einigen nm bis zu mehreren μm auf.

4.3.3 Untersuchungen zum Auflösungsverhalten von Beton

Durch die große zeitliche Verzögerung der Lieferung der Betonbohrkerne aus dem KKW Greifswald durch EWN wurden für die Untersuchungen zum Auflösungsverhalten wichtiger mineralischer Phasen im Beton verschiedene Modellsubstanzen eingesetzt. An nichtaktivierten Proben von Ottendorfer Kies und Quarz (Merck) wurden Auflösungsuntersuchungen unter alkalischen Bedingungen durchgeführt, welche den Alterungsprozess und die Alkali-Silika-Reaktion (AKR) im Beton, die auch als Betonkrebs bekannt ist, simulieren. Als Ergebnis der Untersuchungen wurde festgestellt, dass Verunreinigungen durch Spurenelemente im Quarz die Auflösung beschleunigen, da diese Fremdionen Defekte im Kristallgitter verursachen.

Um den Einfluss von Strahlung auf die Struktur des Betons zu untersuchen, wurden eine nichtaktive Betonprobe sowie Quarz-, Mikroklin- und Albitproben gezielt mit Si-Ionen mit einer Fluenz von 5×10^{14} Ionen/ cm^2 (300 keV) bestrahlt. Dabei wurde jeweils ein Teil der Probe mit Aluminiumfolie abgedeckt, um die Veränderungen im Vergleich zu unbestrahltem Material untersuchen zu können. Die Strahlung bewirkte eine deutliche Volumenausdehnung bei den verschiedenen kristallinen Phasen: 18.3 % bei Quarz, 8.8 % bei Mikroklin und 11.2 % bei Albit. Abbildung 12 zeigt eine Zusammenfassung des Experiments und der Ergebnisse für die Betonprobe.

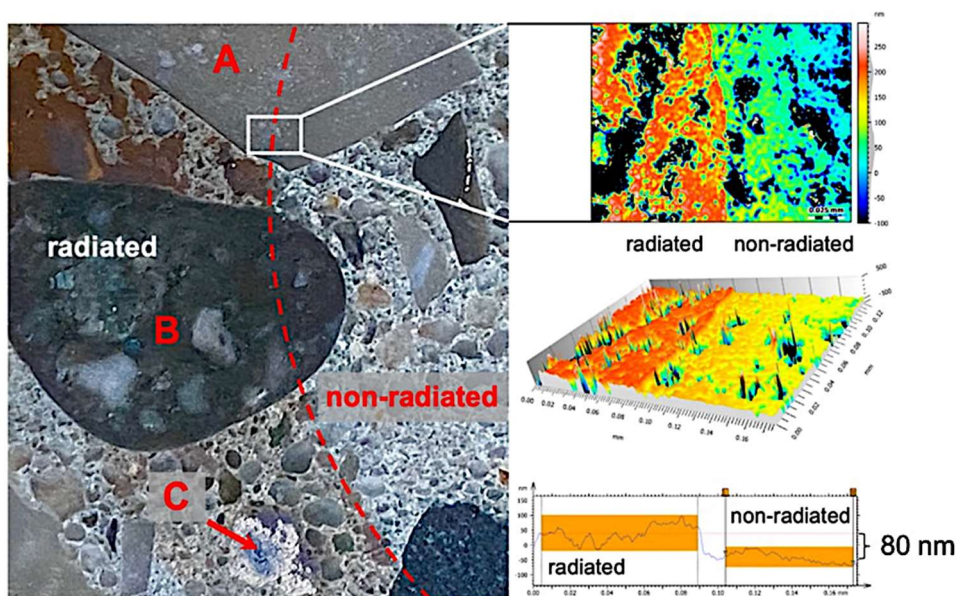


Abbildung 12: Links: Mikroskopische Aufnahme der bestrahlten Betonprobe, die im markierten Bereich (rote Strichlinie) mit Aluminiumfolie abgedeckt war. A: Quarz, B: Mikroklin, C: Albit. Rechts: Auflösungsverhalten von Quarz.

Bei den Einzelproben Quarz, Mikroklin und Albit wurde außerdem das Auflösungsverhalten in alkalischer Lösung (0.1 M NaOH) im Vergleich zum unbestrahlten Material untersucht. Bei allen drei Materialien ist bereits nach 5 Tagen beim bestrahlten Teil der Proben eine deutlich stärkere Auflösung der Oberfläche zu beobachten als beim unbestrahlten Teil (siehe Abb. 12 links, Beispiel Quarz).

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass die Strahlung merkliche Schädigungen in der Betonstruktur verursacht, welche eine schnellere Auflösung des Betons bewirken, was wiederum eine Teilmobilisierung der Aktivierungsprodukte nach sich ziehen kann.

4.4 Berechnung der Neutronenfluenz- und Aktivitätsverteilungen

4.4.1 Modellentwicklung

Für den Strahlungstransport-Code MCNP [1] wurde ein neues Geometriemodell erstellt. Das Modell umfasst den gesamten RDB inklusive der Einbauten, den oberen Block (Reaktordeckel und Führungsrohre für die Regelkassetten), den Ringwasserbehälter und Teile der Betonstrukturen.

Das Geometriemodell deckt einen Höhenbereich von ca. 30 Metern und einen Radius bis ca. 10 Meter mit Bezug zur Reaktorachse ab. Bei Bedarf ist eine Erweiterung auf das gesamte Reaktorgebäude (einschließlich Hauptabsperreschieber, Hauptumwälzpumpen und Dampferzeuger) möglich. Aufgrund der Abschirmwirkung des Ringwasserbehälters wird zwar die Aktivierung durch Neutronenpenetration in diesen Räumen, wenn überhaupt, gering sein, kann aber durch Streaming-Effekte besonders durch die großen Durchführungen nicht ausgeschlossen werden.

Neben dem größeren Umfang des Geometriemodells wurde außerdem der Detailgrad gegenüber früheren Modellen erhöht. Anstelle des bisherigen 60°-Sektors war die Modellierung eines Vollmodells notwendig. Der RDB, seine Einbauten und die Beladung mit Kernbrennstoff besitzen eine 60°-Symmetrie, so dass hier für Berechnungen die Modellierung eines Sechstels des Reaktorkerns ausreicht. Außerhalb des RDB gilt dies nicht mehr (Abklingbecken, labyrinthartiger Zugang zum Reaktorschachtraum unterhalb des RDB, Anordnung der Hauptumwälzleitungen und der zugehörigen Durchführungen in der Betonabschirmung). Darüber hinaus wurde auf die Homogenisierung des Kerns verzichtet, d.h. anstelle eines Gemisches aus Wasser, Hüllrohren und Brennstoff wurden die einzelnen Brennstäbe modelliert. Für den Bereich des RDB in der Höhe des Reaktorkerns konnte gezeigt werden, dass die Homogenisierung keinen Einfluss auf die berechneten Neutronenfluenzen hat. Für die Berechnung von Neutronenfluenzen für Reaktoreinbauten ober- und unterhalb des Reaktorkerns wird durch die detaillierte Modellierung eine Qualitätsverbesserung erwartet. MCNP verfügt über Funktionen

(repeated structures, lattice geometry), die bewirken, dass die detaillierte Modellierung der Brennstäbe eine Vereinfachung der Modellierung der Neutronenquelle ermöglicht.

Auch wenn die Blöcke 1 bis 4 des Kernkraftwerks Greifswald zur gleichen Baureihe 230 gehören, bestehen kleine Unterschiede im Aufbau. Im Gegensatz zu Block 1 und 2 sind die RDB der Blöcke 3 und 4 komplett plattiert. Es bestehen außerdem Unterschiede bei den Reaktoreinbauten. In einigen Kampagnen wurden anstelle von Brennstoffkassetten so genannte Abschirmkassetten, bei denen die Brennstäbe durch sieben Stahlzylinder ersetzt wurden, in den äußersten Positionen eingesetzt. Es mussten somit mehrere Geometriemodelle für MCNP entwickelt werden.

Die Datenlage (Abmessungen, Materialzusammensetzungen) für die Erstellung des Modells ist für die verschiedenen Reaktorkomponenten recht unterschiedlich. Für den RDB und die Reaktoreinbauten liegen eine Vielzahl von Quellen mit detaillierten Angaben vor, die eine sehr akkurate Modellierung ermöglichen. Für den Bereich außerhalb des RDB sind die Angaben weniger umfangreich und weniger genau (z. B. Fertigungstoleranzen der Betonstrukturen). Die Modellierung der Bereiche außerhalb des RDB erfolgte überwiegend anhand von Bauzeichnungen, die von EWN im Rahmen dieses Projekts zur Verfügung gestellt wurden. Die Zusammensetzung des Estrichs und des Betons wurden im Laufe des Projekts mit der Verfügbarkeit der in Tabelle 7 aufgeführten Messungen angepasst. Bei der Erstellung des Geometriemodells waren Vereinfachungen notwendig. So wird die in [48] skizzierte Kugelschüttung auf dem Reaktordeckel aktuell im Geometriemodell nicht berücksichtigt. Trotz der genannten Einschränkungen ist das im Rahmen des Projekts entwickelte Modell nach Kenntnis der Autoren das mit Abstand umfangreichste und detaillierteste Strahlungstransport-Modell eines WWER-440/230. In Abbildung 13 ist ein Schnitt durch das Geometriemodell dargestellt.

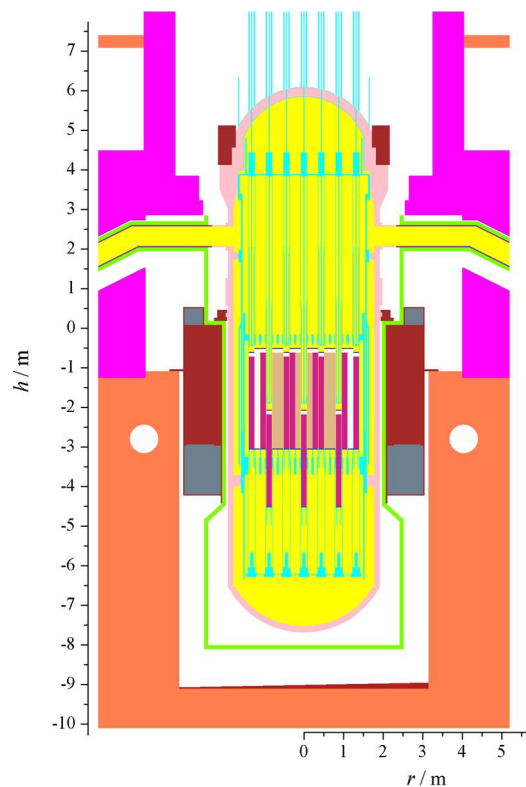


Abbildung 13: Ausschnitt des Geometriemodells des WWER-440/230 für den Strahlungstransport-Code MCNP

4.4.2 Varianzreduzierende Methoden

Die Berechnung von spektralen Neutronenfluenzen in großem Abstand zum Reaktorkern erfordert die Simulation des Strahlungstransports durch dicke Materialschichten. Zwischen den

äußersten Brennstäben und der Außenwand des RDBs befinden sich ca. 50 cm Stahl und Kühlwasser, die eine Reduzierung der Neutronenfluenz um ca. 4 Größenordnungen gegenüber dem Reaktorkern bewirken. Bei den weiter entfernten Regionen (Beton, Teile der Reaktoreinbauten unter- und oberhalb des Reaktorkerns) kann die Abschwächung der Neutronenfluenz 10 oder mehr Größenordnungen betragen.

Der Einsatz von varianzreduzierenden Maßnahmen ist bei einem Großteil der Simulationen zwingend erforderlich, wobei durch die Methode der Gewichtsfenster (weight-window technique) die größten Vorteile erreicht wurden. Zur Beurteilung wird die Größe Figure-of-Merit, $FOM = 1 / (\text{Rechenzeit} \cdot \text{Varianz})$, verwendet, d.h. je kürzer die Rechenzeit und je kleiner die Varianz ist, desto besser ist der Wert. Für die Berechnung der spezifischen Aktivitäten für Materialproben aus dem RDB im Bereich des Reaktorkerns wurden mit rein ortsabhängigen Gewichtsfenstern eine Verbesserung der Figure-of-Merit um einen Faktor von ca. 50 erreicht. Für die Materialproben im größeren Abstand zum Reaktorkern ist die Verbesserung noch größer, kann aber nicht quantifiziert werden, da ohne Einsatz von varianzreduzierenden Methoden in einer realistischen Rechenzeit keine Neutronen die Zielbereiche getroffen haben.

Mit energieabhängigen Gewichtsfenstern wurden, abhängig von der Aufgabe, unterschiedliche Erfahrungen gemacht. Der Strahlungstransport der langsamen Neutronen ist besonders rechenintensiv. In Standardsimulationen der klassischen Reaktordosimetrie, wie diese im Rahmen des WTZ-Forschungsvorhabens 150 1331 [5] mit dem Code TRAMO ausgeführt wurden, wurden Neutronen nur bis zu einer Energieschwelle von 0,5 MeV berücksichtigt (energy cutoff), so dass der zeitaufwendige Transport der langsamen und intermediären Neutronen komplett entfiel. Dadurch wurde die erforderliche Rechenzeit wesentlich reduziert. Die Radionuklide, die im Rückbau relevant sind, werden jedoch fast ausschließlich durch langsame und intermediäre Neutronen produziert.

Im Rahmen des Projekts wurde außerdem untersucht, ob die Aufteilung der Strahlungstransport-Rechnungen in eine Simulation für den inneren Bereich und nachfolgende Berechnungen für die äußeren Regionen eine Einsparung von Rechenzeit bewirkt. MCNP verfügt über Funktionen, mit denen eine Oberflächenquelle erzeugt und in nachfolgenden Rechnungen als Eingangsdaten für die neue Quelle (surface source) verwendet werden kann. Getestet wurde das Verfahren für die Berechnung der Neutronenfluenzen im Reaktordeckel und den Bohrkernen. Als Oberfläche wurde ein Zylinder mit der RDB-Außenwand als Manteloberfläche gewählt. In Tabelle 13 sind die Rechenzeiten und die für die erste Kampagne des Blocks 2 berechneten Neutronenfluenzen für die Plattierung an der Außenseite des Reaktordeckels und Bohrkern 8 zum Vergleich angegeben.

Tabelle 13: Rechenzeiten für eine einzelne Simulation und für die Simulation zur Erzeugung der Oberflächenquelle und nachfolgende Simulationen zum Vergleich. Zusätzlich sind zwei Beispiele für Neutronenfluenzen, die mit einer einzelnen Simulation und den nachfolgenden Simulationen berechnet wurden, aufgeführt.

	Einzelne Simulation	Simulation zur Erzeugung der Oberflächenquelle	Nachfolgende Simulationen
Anzahl der Historien	$1200 \cdot 10^6$	$200 \cdot 10^6$	$6 \times 200 \cdot 10^6$
Rechenzeiten in Stunden	315	38	105
Neutronenfluenzen in cm^{-2}			
Reaktordeckel	$(2,160 \pm 0,005) \cdot 10^{13}$		$(2,163 \pm 0,005) \cdot 10^{13}$
Bohrkern 8	$(1,087 \pm 0,014) \cdot 10^{15}$		$(1,097 \pm 0,016) \cdot 10^{15}$

Die Verwendung der Oberflächenquelle bewirkt zwei Vorteile. Zum einen kann durch die Ausnutzung der 60° -Symmetrie im RDB Rechenzeit gespart werden, da nur eine Rechnung für ein Sechstel des Reaktorkerns notwendig ist. Zum Zweiten kann die einmal für den Innenbereich durchgeführte Rechnung erneut verwendet werden, z.B. für zusätzliche Simulationen. Die Ersparnis der Rechenzeit beträgt 55 % bzw. 67 %. Das gewählte Beispiel ist insofern unvorteilhaft, weil die nachfolgenden Rechnungen ortsabhängige Gewichtsfenster für verschiedene Orte verwenden und deshalb vergleichsweise lange dauern. Die Zeitersparnis kann erheblich größer ausfallen, wenn die nachfolgenden Rechnungen kurze Rechenzeit haben.

Den Vorteilen stehen jedoch neben dem erhöhten manuellen Aufwand weitere Nachteile gegenüber. Die Verwendung von Oberflächenquellen geht zu Lasten der Flexibilität. Während die „normalen“ Rechnungen bei Bedarf fortgesetzt werden können (continue run), z.B. um eine bessere Statistik zu erreichen, ist das bei den nachfolgenden Rechnungen schwieriger, da die statistischen Unsicherheiten der Nachfolge-Rechnungen an die Oberflächenquelle gekoppelt sind.

Bei der aufgezeichneten Oberflächenquelle handelt es sich um eine Log-Datei, die neben Ort, Energie, Richtung und Gewicht ggf. weitere Informationen für jedes Ereignis enthält. Die Größe der Log-Datei beträgt hier etwa 2 bis 3 GByte für jede Kampagne.

Während die Einzel- und die Nachfolge-Simulationen parallelisierbar sind, ist eine Parallelisierung der Simulation für das Schreiben der Log-Datei nicht möglich. Es ist jedoch möglich, mehrere unabhängige Rechnungen gleichzeitig auszuführen, um Mehrkernprozessoren effizient auszunutzen.

Die in Tabelle 13 aufgeführten, mit beiden Methoden berechneten Neutronenfluenzen stimmen im Rahmen der statistischen Unsicherheiten sehr gut überein. Das gilt für alle im Vergleich berechneten Neutronenfluenzen und -spektren und zeigt, dass die Aufteilung der Rechnungen ohne Qualitätseinbußen möglich ist.

4.4.3 Neutronenflussrechnungen und Validierung

Im Rahmen früherer Projekte wurden durch VKTA spezifische Aktivitäten verschiedener Radionuklide und Elementzusammensetzungen für Materialproben des RDB-Stahls gemessen. Die Materialproben stammen aus Trepann der Blöcke 1, 2 und 4, die für bruchmechanische Untersuchungen entnommen wurden. Die untersuchten Materialien umfassen Grundwerkstoff, Schweißnaht und zweite Lage der Plattierung (Niob-stabiler austenitischer Stahl). Schwerpunkt lag auf der Messung der langlebigen Radionuklide ^{63}Ni , $^{93\text{m}}\text{Nb}$ und ^{99}Tc , die leider keine harte Gammastrahlung emittieren und deshalb schwierig zu messen sind (ICP-MS bzw. LSC nach radiochemischer Abtrennung des betreffenden Elements). Außerdem liegen zwei Messwerte für den langlebigen Gammastrahler ^{94}Nb vor. Es wurden für mehrere Proben des Grundwerkstoffs, der Schweißnaht und der Plattierung spezifische Aktivitäten für ^{60}Co gemessen. Da jedoch für keine der Proben Massenanteile des Kobalts gemessen wurden, ist der Nutzen zur Validierung der Rechnungen stark eingeschränkt.

Als Beispiel sind in Abbildung 14 die im Rahmen des WTZ-Forschungsvorhabens 150 1531 [49] gemessenen und mit MCNP berechneten spezifischen Aktivitäten für ^{63}Ni dargestellt. Gegenüber früheren Rechnungen hat sich die Übereinstimmung zwischen gemessenen und berechneten Aktivitäten verbessert. Insbesondere an der Innenwand des RDB – dort, wo die spezifischen Aktivitäten besonders groß sind – ist die Aktivierung stark von der Borsäurekonzentration im Kühlwasser abhängig. Die bessere Übereinstimmung wurde erreicht durch Implementierung einer Funktion zur Korrektur für die während der Reaktorkampagne sinkende Borsäurekonzentration und durch die Verwendung aktueller Neutronen-Wirkungsquerschnitte. Die Neuevaluationen der Reaktionsquerschnitte für $^{62}\text{Ni}(n,\gamma)^{63}\text{Ni}$ und $^{92}\text{Mo}(n,\gamma)^{93}\text{Mo} \rightarrow ^{93\text{m}}\text{Nb}$ in der Bibliothek ENDF/B-VII.1 führen zu etwas größeren berechneten Aktivitäten und damit überwiegend zu einer besseren Übereinstimmung von Messung und Rechnung.

In Abbildung 14 sind die Höhen mit Bezug zum Reaktorkern, aus denen die Trepann (schwarz markierte Bereiche) aus den Blöcken 1 (a) und 4 (b) des Kernkraftwerks Greifswald entnommen wurden, dargestellt. Trepann 1-1, 1-4 und 4-1 wurden unter einem Winkel von 30° entnommen (Fluenzmaximum), Trepann 1-3 unter einem Winkel von 60° (Fluenzminimum). Spezifische Aktivitäten von ^{63}Ni , die für 9 verschiedene Positionen durch VKTA gemessen und mit MCNP berechnet wurden, sind in (c) gezeigt. Für 5 Positionen erfolgten jeweils 2 Messungen zur Überprüfung der Reproduzierbarkeit der Ergebnisse.

Der Vergleich der gemessenen und berechneten spezifischen Aktivitäten deutet darauf hin, dass der Kobalt-Massenanteil in der zweiten Lage der Plattierung 2 bis 2,5-mal so groß ist wie im Grundwerkstoff. Verglichen mit den Blöcken 1 und 2 wird trotz der kürzeren Laufzeit der Blöcke 3 und 4 eine höhere Umgebungs-Dosisleistung innerhalb des RDB und ggf. auch außerhalb erwartet.

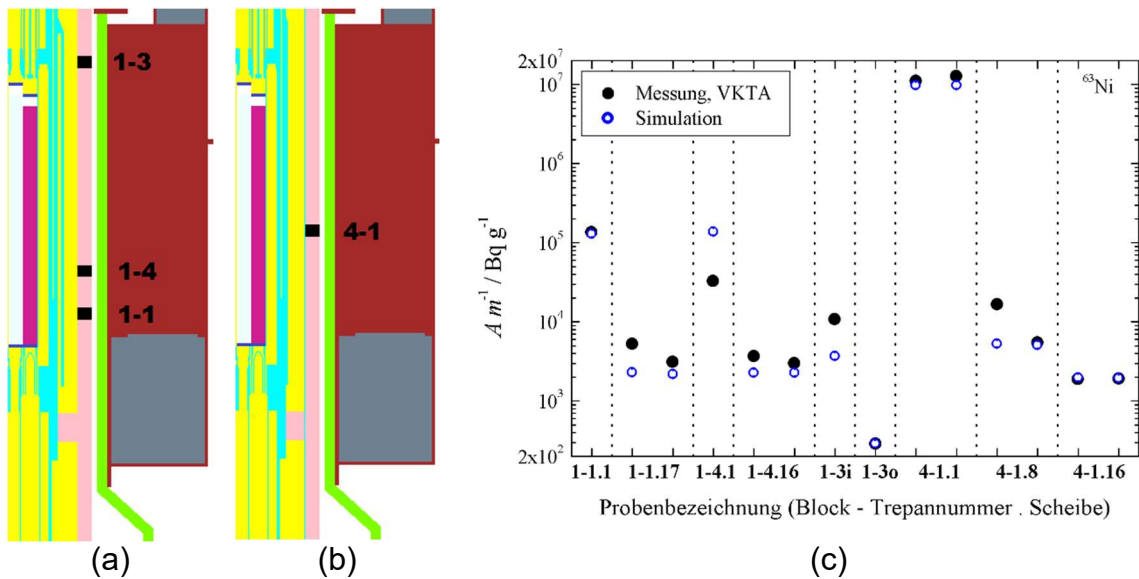


Abbildung 14: Höhenpositionen der aus Block 1 (a) und Block 4 (b) entnommenen Materialproben. Berechnete und gemessene spezifische Aktivitäten für ^{63}Ni (c).

Das Verhältnis der berechneten und gemessenen spezifischen Aktivitäten streut für die schwierig zu messenden Radionuklide stark. Für die per Gammaspektrometrie messbaren Radionuklide deutet sich eine geringere Streuung an.

Der Vergleich der experimentellen und berechneten Werte zeigt, dass sowohl das entwickelte MCNP-Modell als auch die für die Berechnung benötigte Quellverteilung die Realität widerspiegeln und die damit berechneten Neutronenfluenzen als Grundlage für die Bestimmung der Aktivitäten genutzt werden können.

Neben der Validierung des MCNP-Modells ergab der Vergleich von Rechnungen und Messungen weitere Ergebnisse:

- Für die Proben im Bereich der Spaltzone sind die spezifischen Aktivitäten an der Innenseite des RDBs bis zu 50-mal größer als an der Außenseite. Das betrifft insbesondere die Radionuklide, die überwiegend durch langsame Neutronen produziert werden (^{63}Ni , ^{59}Ni , ^{14}C , ^{55}Fe , ^{60}Co). Für Trepan 1-3, der oberhalb der Spaltzone entnommen wurde, ist das weniger stark ausgeprägt.
- Der Vergleich der gemessenen und berechneten spezifischen Aktivitäten deutet darauf hin, dass der Kobalt-Massenanteil in der zweiten Lage der Plattierung 2 bis 2,5-mal so groß ist wie im Grundwerkstoff. Verglichen mit den Blöcken 1 und 2 wird trotz der kürzeren Laufzeit der Blöcke 3 und 4 eine höhere Umgebungs-Dosisleistung innerhalb des RDB und ggf. auch außerhalb erwartet.
- Das Verhältnis der berechneten und gemessenen spezifischen Aktivitäten streut für die schwierig zu messenden Radionuklide stark. Für die per Gamma-Spektrometrie messbaren Radionuklide ^{60}Co und ^{94}Nb deutet sich eine geringere Streuung an.

4.4.4 Bestimmung der Neutronenfluenzverteilung

Um abschätzen zu können, in welchen Bereichen eine hohe Aktivierung der Materialien zu erwarten ist, wurde für den Reaktorschachtraum ein Neutronenfluenz-Strahlungsfeld berechnet. Dazu wurde über das Geometriemodell ein zylinderförmiges Raster (mesh tally) mit 10-cm-Schritten für Höhe und Radius gelegt. Um in einer realistischen Rechenzeit kleine statistische Unsicherheiten für jeden Rasterbereich zu erreichen, wurde als Vereinfachung über den Winkelbereich gemittelt, d.h. keine azimutale Unterteilung berücksichtigt. Das Fluenz-Strahlungsfeld ist in Abbildung 15 für die erste Kampagne des Blocks 2 für einen Fluenzbereich von 10 Größenordnungen dargestellt.

Die höchsten Neutronenfluenzen sind erwartungsgemäß im Bereich der Spaltzone zu finden. Im RDB wird die Neutronenfluenz in vertikaler Richtung durch die Reaktoreinbauten und das Kühlwasser sehr stark abgeschwächt, so dass sie bereits ca. 2 m ober- und unterhalb der Spaltzone um etwa 10 Größenordnungen gesunken ist. Dagegen befindet sich zwischen RDB und Ringwasserbehälter ein nur teilweise mit einer Wärmedämmung gefüllter 15 cm breiter Spalt. Die Neutronenfluenzen in diesem Spalt sind wegen der relativ kurzen Entfernung zum Kern vergleichsweise hoch und, etwa ab 1 Meter ober- und unterhalb des Reaktorkerns, größer als die innerhalb des RDB selbst. Der wahrscheinlichste Weg für Neutronen ist, dass sie in der Höhe des Reaktorkerns aus dem RDB entkommen und in den Spalt gestreut werden. In der Höhe, aus der Trepan 2-4 entnommen wurde (knapp unterhalb der Unterkante des Ringwasserbehälters) werden Neutronen von außen in den RDB hineingestreut, weshalb die Neutronenfluenz von der Innen- zur Außenseite hin ansteigt. Das erklärt die in Kapitel 4.2.1 dargestellten, vergleichsweise großen spezifischen Aktivitäten für die äußerste Messposition. Aus demselben Grund wird die höchste Aktivierung des Reaktordeckels an der Außen- und nicht an der Innenseite erwartet.

Eine Besonderheit der WWER-440 der Baureihe 230 (Block 1 bis 4 des KKW Greifswald) ist der Ringwasserbehälter. Im Gegensatz besteht die erste Abschirmung der Reaktoren der Baureihe 213 (2. Generation der WWER-440, z.B. Block 5 bis 8 des KKW Greifswald) und bei westdeutschen KKW aus Beton. Deshalb ist ein Vergleich der gemessenen und berechneten spezifischen Aktivitäten des Betons mit denen anderer Reaktortypen bzw. Baureihen nur sehr eingeschränkt möglich. Der Ringwasserbehälter bewirkt eine effiziente Strahlungsabschirmung der dahinterliegenden Betonstrukturen. Für den Beton mit dem geringsten Abstand zum Reaktorkern ($r > 3,15$ m, $h \approx -2$ m) werden sogar besonders niedrige Neutronenfluenzen abgeschätzt. Die höchsten Neutronenfluenzen in Betonstrukturen werden für den Boden des Reaktorschachtraums unterhalb des Spalts zwischen RDB und Ringwasserbehälter ($r \approx 2,2$ m,

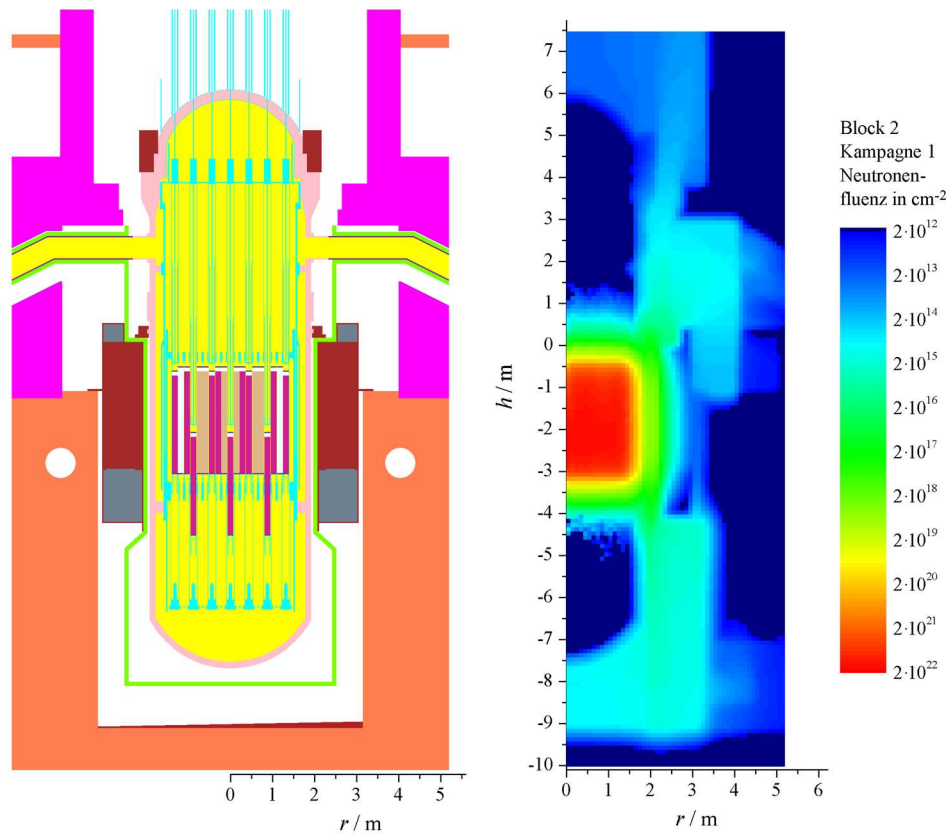


Abbildung 15: Schnitt durch das für den Strahlungstransport-Code MCNP erstellte Geometriemodell (links). Neutronenfluss-Strahlungsfeld für die erste Kampagne des Blocks 2 (rechts).

$h \approx -9$ m) erwartet. Aufgrund des großen Abstands ist die Neutronenflussdichte etwa 3 bis 4 Größenordnungen niedriger als die im Spalt zwischen RDB und Ringwasserbehälter in der Höhe des Reaktorkerns.

Das Strahlungsfeld in Abbildung 15 zeigt mehrere auffällige Regionen. In einem Bereich des Reaktorschachtraums ($r > 3,15$ m, $h = -9,1$ m bis $-7,1$ m) sind etwas größere Neutronenflussdichten erkennbar als in den umliegenden Betonbereichen. Ursache ist der labyrinthartige Zugang zum Reaktorschachtraum, der sich außerhalb der Schnittebene befindet. In diesem Bereich ist ein kleinerer Bereich mit nochmals erhöhter Neutronenflussdichte ($r = 3,15$ m bis $4,4$ m, $h = -8,2$ m) sichtbar. In dieser Höhe befinden sich acht Lüftungsröhren (Vergleiche Abbildung 4). Die kreisförmigen Strukturen bei $r = \pm 4$ m, $h = -2,8$ m in der Schnittzeichnung gehören ebenfalls zum Belüftungssystem. Die Bereiche mit erhöhter Neutronenflussdichte bei $r > 4$ m, $h = -1$ m bis 3 m haben ihre Ursachen in den Durchführungen der Hauptumwälzleitungen und den Zugängen.

4.4.5 Aktivitätsbewertung der Materialproben

In Tabelle 14 sind als Beispiele die berechneten spezifischen Aktivitäten der Materialproben 1-4.1 und 1-4.16 (Innen- bzw. Außenseite des RDB des Blocks 1, vergleiche Messungen in Tabelle 3) aufgeführt. Zusätzlich sind die Grenzwerte der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) für die uneingeschränkte Freigabe und die spezifische Freigabe als Metallschrott zur Rezyklierung aufgeführt. Man erkennt, dass die spezifische Aktivität von ^{60}Co trotz der vergleichsweise kurzen Halbwertszeit noch immer sehr hoch ist, während die Freigabe-Grenzwerte sehr niedrig sind.

Tabelle 14 : Spezifische Aktivitäten für zwei Materialproben aus dem Grundwerkstoff der Reaktordruckbehälter. Trepan 1-4.1 stammt von der Innen-, Trepan 1-4.16 von der Außenseite des RDB des Blocks 1. Zusätzlich sind die Grenzwerte der StrlSchV für die uneingeschränkte Freigabe und die spezifische Freigabe als Metallschrott zur Rezyklierung angegeben.

Radionuklid	Spezifische Aktivitäten in Bq/g, Bezugsdatum 31.12.2020		Grenzwerte für die Freigabe nach StrlSchV FG in Bq/g	
	Trepan 1-4.1	Trepan 1-4.16	Uneingeschränkte Freigabe	Spezifische Freigabe Metallschrott zur Rezyklierung
^{14}C (Annahme: 100 ppm N)	2 300	50	1	80
^{55}Fe	63 000	1 100	1 000	10 000
^{60}Co (Annahme: 150 ppm Co)	133 000	5 600	0,1	0,6
$^{59+63}\text{Ni}$	136 000	2 250	100	10 000
$^{93\text{m}}\text{Nb}$	320	60	10	400
^{94}Nb	1,1	0,1	0,1	0,4
^{93}Mo	430	80	10	200
^{99}Tc	60	12	1	40

Bezogen auf die Freigrenzen der StrlSchV für die uneingeschränkte Freigabe bzw. spezifische Freigabe Metallschrott zur Rezyklierung, d.h. wenn man die Aktivität als Vielfache der Freigrenzen angibt, ist ^{60}Co trotz der vergleichsweise kurzen Halbwertszeit von 5,27 Jahren und einer Abklingzeit von 3 Jahrzehnten seit Abschaltung der Reaktoren das mit Abstand wichtigste Radionuklid. Das betrifft sowohl den Grundwerkstoff als auch die Plattierung. Mit Bezug auf die KONRAD-Endlagerungsbedingungen [50] ist eine allgemein gültige Aussage schwieriger, da mehrere Kriterien zu erfüllen sind. Für die Kriterien Wärmeentwicklung und Dosisleistung an der Oberfläche des KONRAD-Containers ist ^{60}Co ebenfalls besonders wichtig. Eine, z.B. durch den verzögerten Start der Einlagerungsphase im Endlager KONRAD motivierte, um wenige Jahre verlängerte Abklinglagerung bewirkt somit eine deutliche Reduzierung des Aktivitätsinventars.

4.4.6 Aktivitätsprofil im Reaktordruckbehälter

Mittels Strahlungstransport-Simulationen wurde untersucht, wie sich die Aktivität in der Höhe des RDB verteilt. Dazu wurde der RDB des Blocks 2 in 100 meist 10 cm hohe Zonen unterteilt. Im Gegensatz zu den Untersuchungen im Kapitel 4.4.5 wurde über die gesamte Wanddicke des RDB und über den gesamten Winkelbereich von 360° gemittelt. Die berechneten spezifischen Aktivitäten sind als Summe über die Vielfachen der Freigrenzen in Abbildung 16 für das Bezugsdatum 31.12.2020 dargestellt.

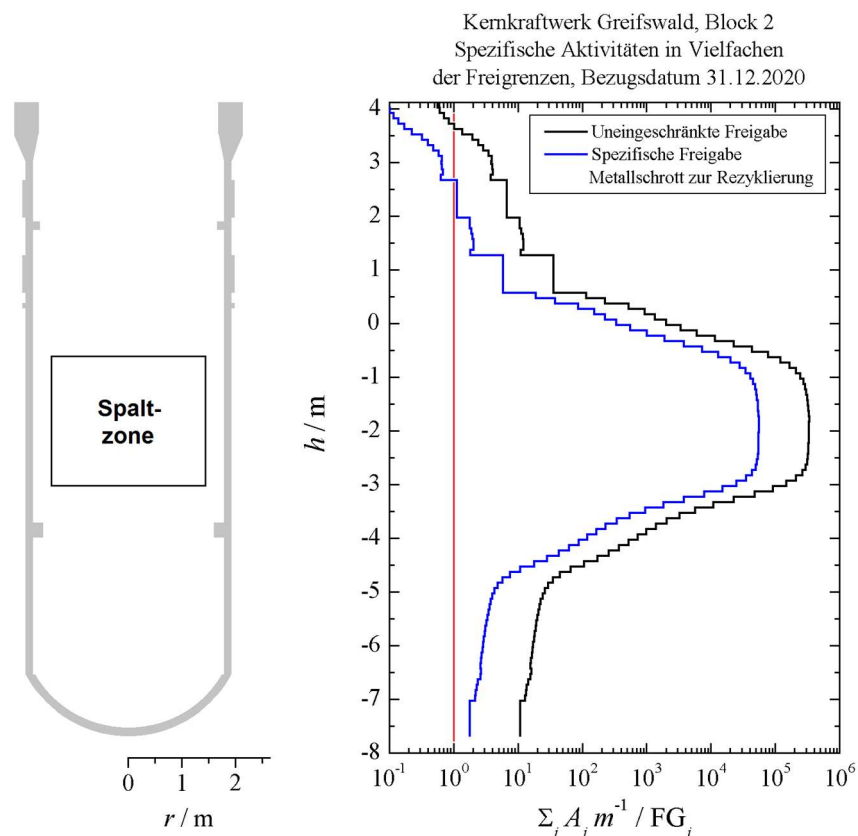


Abbildung 16: Abbildung des Reaktordruckbehälters mit Darstellung des Bereichs des Reaktorkerns (links). Höhenprofil der spezifischen Aktivitäten als Summe der Vielfachen der jeweiligen Freigabe-Grenzwerte (rechts).

Die höchsten Aktivitäten sind im Höhenbereich des Reaktorkerns zu finden. Die Aktivitäten sinken ober- und unterhalb des Reaktorkerns sehr stark um mehrere Größenordnungen ab. Im Höhenbereich, der -1,9 Meter und tiefer unterhalb der Unterkante der Spaltzone liegt, beträgt die Aktivität das 2- bis 5-fache des Grenzwerts für die spezifische Freigabe Metallschrott zur Rezyklierung (spezifische Aktivität für $^{60}\text{Co} \leq 3 \text{ Bq/g}$). Für den oberen Bereich (Flansch des RDB) werden spezifische Aktivitäten für ^{60}Co von teilweise $< 0,1 \text{ Bq/g}$ erwartet, d.h. unterhalb der Grenzwerts für die uneingeschränkte Freigabe.

Ob tatsächlich eine Freigabe eines Teils des RDB möglich ist, kann anhand der Simulation nicht entschieden werden. In den Rechnungen wird nur die Neutronenaktivierung im Volumen erfasst, nicht jedoch die Oberflächen-Kontaminationen. Im großen Abstand zur Spaltzone können diese den dominanten Beitrag liefern. Ob eine Freigabe möglich ist, hängt somit von der Oberflächen-Kontamination ab bzw. davon, wie gut sie entfernt werden konnte.

Für den gesamten RDB des Blocks 2 wurde für das Bezugsdatum 31.12.2020 unter der Annahme eines Kobalt-Massenanteils von 150 ppm eine ^{60}Co -Aktivität von 0,9 TBq berechnet. Das langlebige Radionuklid ^{14}C wird im Stahl hauptsächlich durch die Reaktion $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ produziert. Aufgrund der starken Streuung der Messungen der Stickstoff-Massenanteile im RDB-Stahl wurde für die Abschätzung der ^{14}C -Aktivität ein Massenanteil von 100 ppm angenommen. Der Wert entspricht dem höchsten gemessenen Stickstoff-Massenanteil (Vergleiche Tabelle 4). Für den gesamten RDB wird damit eine ^{14}C -Aktivität von 12 GBq abgeschätzt. Das entspricht etwa 0,003 % der im Endlager KONRAD maximal erlaubten ^{14}C -Aktivität von 400 TBq.

Eine Berechnung des gesamten Höhenprofils wurde nur für Block 2 durchgeführt. In mehreren der letzten Kampagnen des Blocks 1 wurden Abschirmkassetten eingesetzt. Diese bewirkten, besonders im Bereich des Fluenzmaximums, eine deutliche Reduzierung der Neutronenfluenz im RDB und damit auch eine Reduzierung der Aktivierung des Materials. Trotz der etwas längeren Laufzeit des Blocks 1 wird deshalb ein Aktivitätsprofil erwartet, das sich von dem des Blocks 2 kaum unterscheidet.

Um den Einfluss der Plattierung auf das Höhenprofil der spezifischen Aktivitäten abzuschätzen, wurden zusätzliche Rechnungen für den unteren Bereich des RDB bis zur Höhe von ca. -4 Metern durchgeführt. Es wurden für die Höhenzonen spezifische Aktivitäten berechnet, die bis zu 7 % größer (höhenabhängig; steigt mit geringeren Abstand zum Reaktorkern) sind als die des Blocks 2. Die stärkere Aktivierung der Plattierung, für die ein Kobalt-Massenanteil von 300 ppm angenommen wurde, spielt im Gegensatz zum Höhenbereich des Reaktorkerns nur eine kleine Rolle. Es wird deshalb erwartet, dass der in Abbildung 16 dargestellte Anteil des RDB, bei dem eine uneingeschränkte oder spezifische Freigabe möglich erscheint, für die Blöcke 1 bis 4 des Kernkraftwerks Greifswald etwa gleich groß ist.

4.4.7 Aktivitätsbewertung Reaktordeckel

Analog zur Vorgehensweise im Kapitel 4.4.5 wurden Aktivitätsberechnungen für den Reaktordeckel des Blocks 2 durchgeführt. Im Gegensatz zum RDB erfolgte jedoch keine Unterteilung in Zonen, d.h. bei den berechneten Ergebnissen handelt es sich um Mittelwerte. Die berechneten Aktivitäten für die wichtigsten Radionuklide für die Plattierung an der Außenseite des Reaktordeckels sind in Tabelle 15 dargestellt.

Da keine gemessenen Kobalt-Massenanteile für die Plattierung vorliegen, wurde ein Wert von 300 ppm angenommen. Die zum Referenzzeitpunkt 12/2020, d.h. 3 Jahrzehnte nach Reaktorabschaltung, berechnete spezifische Aktivität liegt nur knapp über dem Grenzwert für die uneingeschränkte Freigabe. Für alle anderen Radionuklide wird der jeweilige Freigabe-Grenzwert deutlich unterschritten. Die berechneten spezifischen Aktivitäten für den Grundwerkstoff des Reaktordeckels und die Plattierung an der Innenseite sind kleiner als diejenigen der Plattierung der Außenseite und liegen, einschließlich ^{60}Co , unter den Grenzwerten für die uneingeschränkte Freigabe. Die in [48] skizzierte Kugelschüttung wurde in den Simulationen nicht berücksichtigt, d.h. die berechneten spezifischen Aktivitäten überschätzen vermutlich die wahren Werte.

Tabelle 15: Spezifische Aktivitäten für die zweite Lage der Plattierung an der Außenseite des Reaktordeckels von Block 2. Zum Vergleich sind die Grenzwerte der StrISchV für die uneingeschränkte Freigabe angegeben.

Radionuklid	Spezifische Aktivitäten in Bq/g, Bezugsdatum 31.12.2020	Grenzwerte für die uneingeschränkte Freigabe nach StrISchV
^{14}C (Annahme: 100 ppm N)	$0,3 \cdot 10^{-3}$	1
^{55}Fe	0,01	1 000
^{60}Co (Annahme: 300 ppm Co)	0,13	0,1
$^{59+63}\text{Ni}$	1,1	100
$^{93\text{m}}\text{Nb}$	$2 \cdot 10^{-3}$	10
^{94}Nb	$7 \cdot 10^{-3}$	0,1

Die berechneten spezifischen Aktivitäten für den Reaktordeckel sind etwa 6 Größenordnungen niedriger als die an der Innenseite des RDB in der Höhe des Reaktorkerns. Wie in Kapitel 4.4.5 ist die Entscheidung, ob eine Freigabe des Reaktordeckels möglich ist, davon abhängig, ob die Oberflächen-Kontamination gering ist bzw. die Oberflächen gut dekontaminiert werden können.

4.4.8 Zeitliche Evolution der Aktivitäten

Beton:

Aufgrund der großen Anzahl an Elementen, die teilweise mit ppm-Anteilen im Beton enthalten sind, wird bei der Neutronenaktivierung eine Vielzahl von Radionukliden mit unterschiedlichen Halbwertszeiten und spezifischen Aktivitäten gebildet. Häufig werden grafische Darstellungen verwendet, um zu zeigen, in welchem Zeitraum nach Abschaltung des Reaktors welche Radionuklide dominieren, wobei meist der endlagerrelevante Zeitraum von 1 Million Jahren abgebildet wird. In den Darstellungen werden typischerweise logarithmische Skalen sowohl für die spezifische Aktivität als auch die Zeitachse verwendet. Als Beispiel ist in Abbildung 17 (a) die

zeitliche Entwicklung der berechneten Aktivitäten für eine Estrich-Probe dargestellt. Grundlage ist die Zusammensetzung der Probe 7/1 (vgl. Tabelle 7).

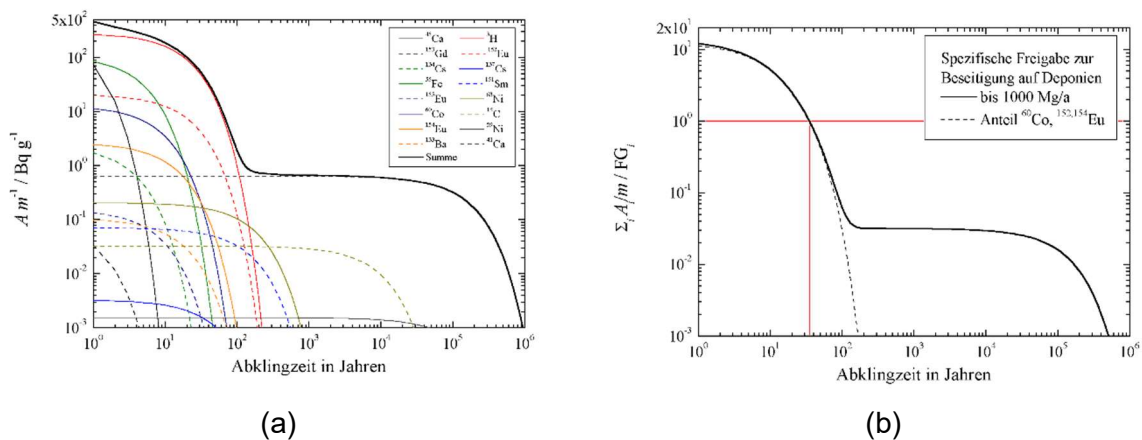


Abbildung 17: Spezifische Aktivitäten ausgewählter Radionuklide für eine Estrich-Probe (a). Spezifische Aktivitäten als Summe der Vielfachen der Freigabe-Grenzwerte (b).

Diese Form der Darstellung hat den Nachteil, dass die Bedeutung der jeweiligen Radionuklide, z. B. durch stark unterschiedliche Grenzwerte für die Freigabe, nicht berücksichtigt wird. So hat Tritium, das im für den Rückbau relevanten Zeitraum von einigen Jahrzehnten nach Abschaltung der Reaktoren die höchste spezifische Aktivität hat, vergleichsweise hohe Freigabe-Grenzwerte. Diejenigen für ^{60}Co , ^{152}Eu und ^{154}Eu sind wiederum besonders klein, so dass diese die wichtigsten künstlichen erzeugten Radionuklide sind. Eine andere Form der Darstellung wurde in Abbildung 17 (b) gewählt. Hier erfolgt die Angabe als Vielfache der Grenzwerte der Freigabe, d.h. anstelle der spezifischen Aktivität A/m wird $\sum_i A_i/m / FG_i$ abgebildet. Die StrlSchV sieht mehrere Freigabe-Grenzwerte vor. In Abbildung 17 (b) ist die Summe der spezifischen Aktivitäten als Vielfache der Freigabe-Grenzwerte mit Bezug auf die spezifische Freigabe zur Beseitigung auf Deponien bis zu 1000 Mg pro Kalenderjahr (durchgezogene Kurve) angegeben. Zusätzlich ist der Anteil der Radionuklide ^{60}Co , ^{152}Eu und ^{154}Eu angegeben (gestrichelte Kurve). Bezogen auf die Freigabe-Grenzwerte sind dies die mit Abstand wichtigsten Radionuklide in den ersten Jahrzehnten der Abklingzeit.

Die Aktivität der Radionuklide, insbesondere ^{152}Eu , ist für Abklingzeiten von wenigen Jahrzehnten zu groß für eine uneingeschränkte Freigabe oder eine spezifische Freigabe von Bauschutt von mehr als 1000 Mg/a. Für die spezifische Freigabe zur Beseitigung auf Deponien von bis zu 1000 Mg pro Kalenderjahr sind die Grenzwerte deutlich größer. Hier wird erwartet, dass eine spezifische Freigabe etwa im Jahr 2026, d.h. knapp 4 Jahrzehnte nach Reaktorabschaltung, möglich ist. Für die spezifische Freigabe zur Beseitigung auf Deponien von bis zu

100 Mg pro Kalenderjahr wäre eine Freigabe bereits jetzt möglich. Ursachen für die vergleichsweise geringen Aktivitäten sind in erster Linie die Neutronenabschirmung durch den Ringwasserbehälter, aber auch die niedrigen Kobalt- und Europium-Massenanteile im Estrich.

Die natürlich vorkommenden Radionuklide ^{40}K und die Nuklide der Thorium- und Uran-Zerfallsreihen sind in Anlehnung an [51] in Abbildung 17 nicht berücksichtigt.

RDB-Stahl:

Analog zu Abbildung 17 sind in Abbildung 18 die zeitliche Entwicklung der spezifischen Aktivitäten (a) und der Summe der spezifischen Aktivitäten als Vielfache der Grenzwerte der Freigabe (b) für die RDB-Stahlprobe 1-4.8 aus dem Höhenbereich des Reaktorkerns dargestellt. Für diese Probe liegt auch eine Messung der ^{60}Co -Aktivität vor (Vergleiche Kapitel 4.2.1). Die unter der Annahme von 150 ppm Co berechnete ^{60}Co -Aktivität ist 20 % größer als die gemessene. In Abbildung 18 (b) erfolgt die Darstellung sowohl für die uneingeschränkte Freigabe als auch für die spezifische Freigabe als Metallschrott zur Rezyklierung. In den ersten 100 Jahren der Abklingzeit ist ^{60}Co aufgrund der niedrigen Freigabe-Grenzwerte das mit Abstand wichtigste Radionuklid. Für längere Abklingzeiten dominieren langlebige Radionuklide, z.B. ^{14}C und ^{99}Tc . Im Fall des Niob-haltigen Stahls der Plattierung spielt auch der langlebige Gammastrahler ^{94}Nb eine Rolle.

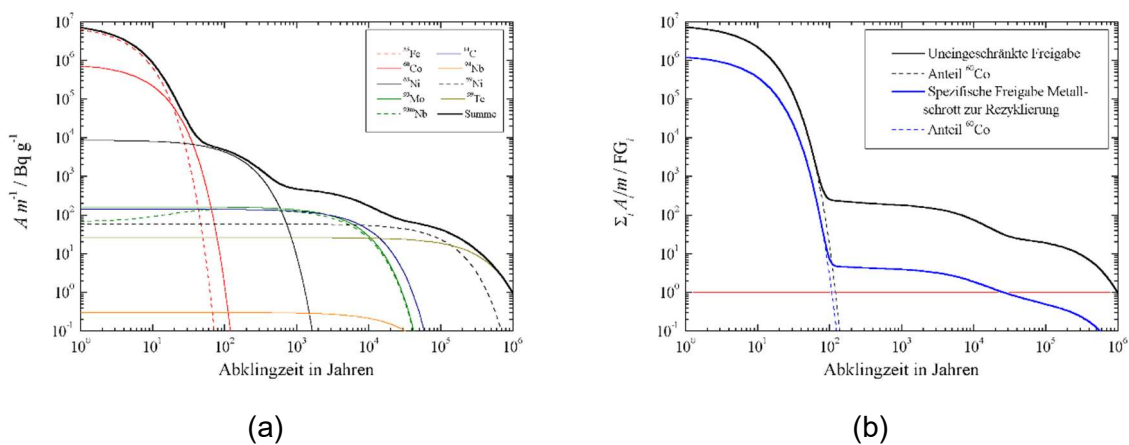


Abbildung 18: Spezifische Aktivitäten ausgewählter Radionuklide der Probe 1-4.8 (RDB, Grundmaterial) als Funktion der Zeit (a). Spezifische Aktivitäten als Summe der Vielfachen der Freigabe-Grenzwerte für die uneingeschränkte Freigabe und spezifische Freigabe als Metallschrott zur Rezyklierung (b).

4.4.9 Vergleich der gemessenen und berechneten spezifischen Aktivitäten

Reaktordruckbehälter:

In Abbildung 19 sind berechnete und gemessene spezifische Aktivitäten für die Radionuklide ^{60}Co und ^{14}C für die Trepanns 1-3 und 2-4, die ober- bzw. unterhalb des Reaktorkerns entnommen wurden, dargestellt. Im Gegensatz zu den Abbildungen in Kapitel 4.2.1 werden hier die jeweiligen Einzelmessungen gezeigt.

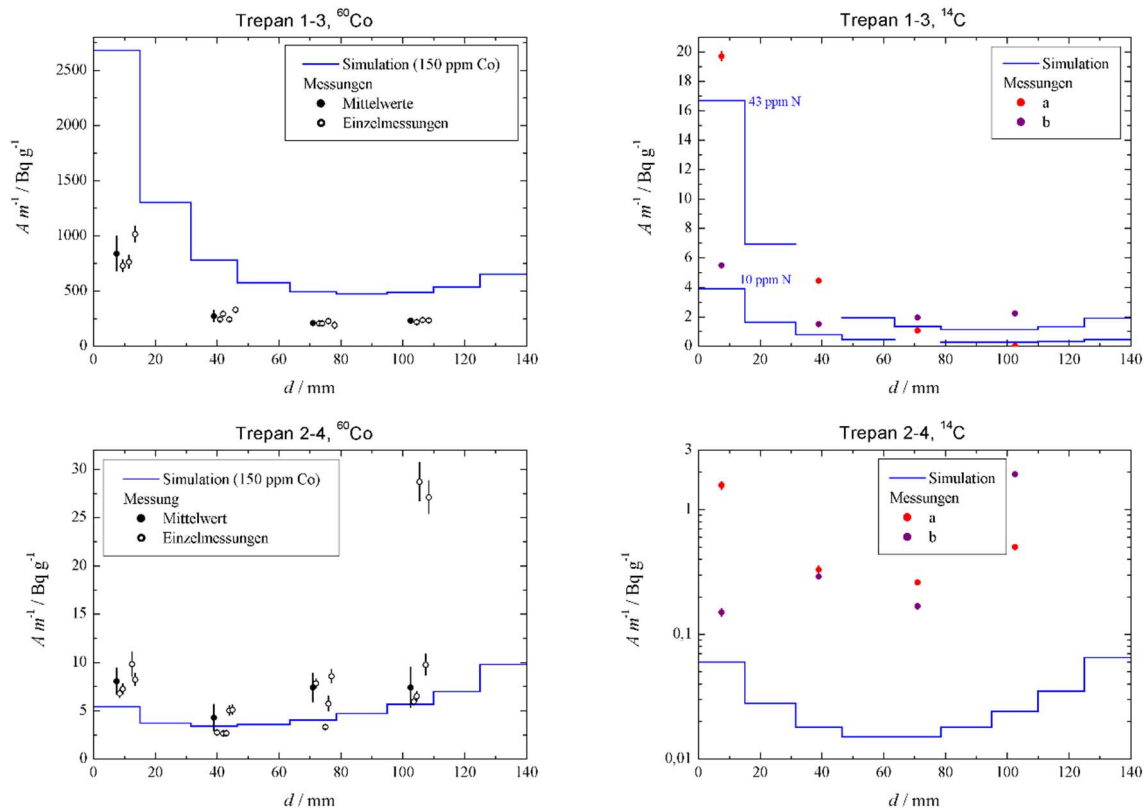


Abbildung 19: Vergleich der gemessenen und berechneten spezifischen Aktivitäten für ^{60}Co und ^{14}C für die RDB-Proben der Trepanns 1-3 und 2-4

Der Vergleich der Rechnungen mit den Messungen zeigt ein inkonsistentes Bild. Für Trepan 1-3 überschätzen die Rechnungen die gemessenen Aktivitäten von ^{60}Co etwa um den Faktor 3, während sie für ^{14}C eine gute Übereinstimmung zeigen. Für Trepan 2-4 sind die berechneten ^{60}Co -Aktivitäten etwa 20 % kleiner als die gemessenen. Hier unterschätzen jedoch die Rechnungen die gemessenen spezifischen Aktivitäten für ^{14}C um eine Größenordnung. Kohlenstoff-14 wird durch die Reaktion $^{14}\text{N}(p,n)^{14}\text{C}$ produziert. Die OES-Messungen ergaben eine starke Streuung des Stickstoff-Massenanteils in den Proben (< 10 ppm bzw. 43 ppm im Grundwerkstoff, 80 ppm bis 100 ppm in der Schweißnaht). Für die Probe des Grundwerkstoffs (Trepan 1-3) sind deshalb zwei berechnete ^{14}C -Aktivitäten angegeben. Eine stark inhomogene Verteilung des Stickstoffs im Stahl kann nicht ausgeschlossen werden. Das ist möglicherweise

auch eine Erklärung für die starke Streuung der Ergebnisse der beiden Messreihen (in den Abbildungen mit „a“ und „b“ bezeichnet).

Eine Ursache für die starke Abweichung der berechneten und gemessenen ^{60}Co -Aktivitäten für Trepan 1-3 konnte nicht ermittelt werden. Die ursprünglich vermutete Probenverwechslung (Vertauschung der Innen- und Außenseite des Trepans) wird wegen der ähnlichen Aktivitätsprofile ausgeschlossen. Die berechneten spezifischen Aktivitäten unterschätzen die Messungen aus dem WTZ-Forschungsvorhaben [49] (vergleiche Kapitel 4.4.3) und tragen ebenfalls nicht zur Klärung der Diskrepanzen bei.

Beton:

Gemessene und berechnete spezifische Aktivitäten für die Gammastrahler ^{60}Co , ^{152}Eu und ^{154}Eu für die Bohrkern 7 und 8 sind in Abbildung 20 dargestellt. Rechnungen erfolgten für 1 cm dicke Schichten für die gesamte Länge der Bohrkern. Für die grafische Darstellung wurden die ICP-MS-Messungen der Proben 7/1 für Estrich und 7/2 für den Beton verwendet. Die Massenanteile von Co und Eu sind im Beton etwas größer als im Estrich. Da die Massenanteile linear in die Berechnung der spezifischen Aktivitäten eingehen, entsteht beim Übergang vom Estrich zum Beton (Tiefe $d = 110$ mm) eine Stufe in den berechneten Aktivitäten. Bei den in Tabelle 7 dargestellten Zusammensetzungen ist sichtbar, dass die Summe der Massenanteile nur ca. 400.000 ppm beträgt.

Mit ICP-MS ist die Messung der leichten Elemente Wasserstoff, Kohlenstoff, Stickstoff und Sauerstoff sowie rein anionisch auftretender Elemente, wie z. B. Chlor, nicht möglich. Dadurch lässt sich die Zusammensetzung des Estrichs und Betons aus den ICP-MS-Messungen nicht eindeutig bestimmen. Die Ergebnisse der Pulverdiffraktometrie standen zum Zeitpunkt der Strahlungstransport-Simulationen noch nicht zur Verfügung. Trotz der Unsicherheiten in der Bestimmung der Materialzusammensetzung und der Inhomogenität des Betons wurde eine überraschend gute Übereinstimmung zwischen Messung und Rechnung erzielt.

Die Strahlungstransport-Simulationen wurden mehrfach mit veränderten Parametern (z.B. Änderung des Wasseranteils, Berücksichtigung der Neutronenabsorber) durchgeführt. Die berechneten Aktivitäten sind stark von der Betonzusammensetzung und dem Wasseranteil abhängig. Die Berücksichtigung der mittels ICP-MS gemessenen Neutronenabsorber, insbesondere Gadolinium, hatten einen überraschend großen Einfluss auf die Ergebnisse und führten zu einer deutlichen Verbesserung der Übereinstimmung von Messung und Rechnung.

In Abbildung 21 sind die gemessenen und berechneten spezifischen Aktivitäten für die reinen Beta-Strahler ^{14}C und ^3H dargestellt. Messungen und Rechnungen weichen für beide Radionuklide stark, teils um Größenordnungen voneinander ab. Für die starke Unterschätzung der

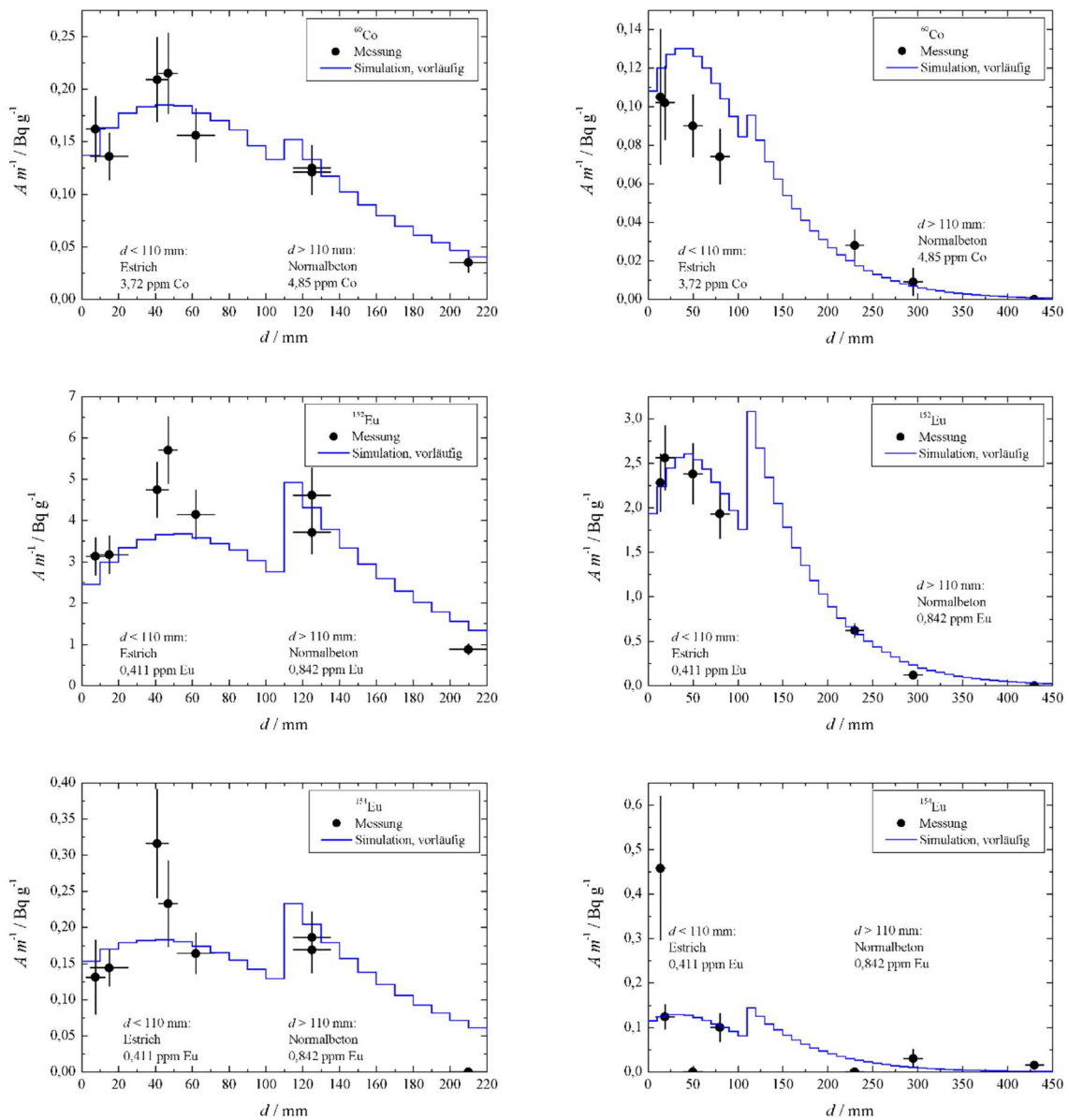


Abbildung 20: Gemessene und berechnete spezifische Aktivitäten für die Gamma-Emitter ^{60}Co , ^{152}Eu und ^{154}Eu für die Bohrkerne 7 und 8.

gemessenen ^{14}C -Aktivitäten gibt es zwei mögliche Erklärungen. Ein Erklärungsversuch betrifft die Simulationen. In den Berechnungen wird angenommen, dass im Beton kein Stickstoff enthalten ist, d.h. ^{14}C wird im Beton überwiegend durch die Reaktion $^{17}\text{O}(n,\alpha)^{14}\text{C}$ produziert. Es existieren stickstoffhaltige Minerale, z.B. $\text{NH}_4\text{AlSi}_3\text{O}_8$. Da eine Messung des Stickstoff-Massenteils per ICP-MS nicht möglich ist, kann keine Aussage über die An- bzw. Abwesenheit stickstoffhaltiger Minerale getroffen werden. Um die gemessenen ^{14}C -Aktivitäten durch die Kernreaktion $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ zu begründen, wäre ein Stickstoff-Massenanteil von etwa 1000 ppm bis 5000 ppm notwendig. Die inzwischen verfügbaren, in Kapitel 4.3.1 beschriebenen Strukturuntersuchungen der Betonproben liefern keine Hinweise auf Ammonium-Aluminosilikate.

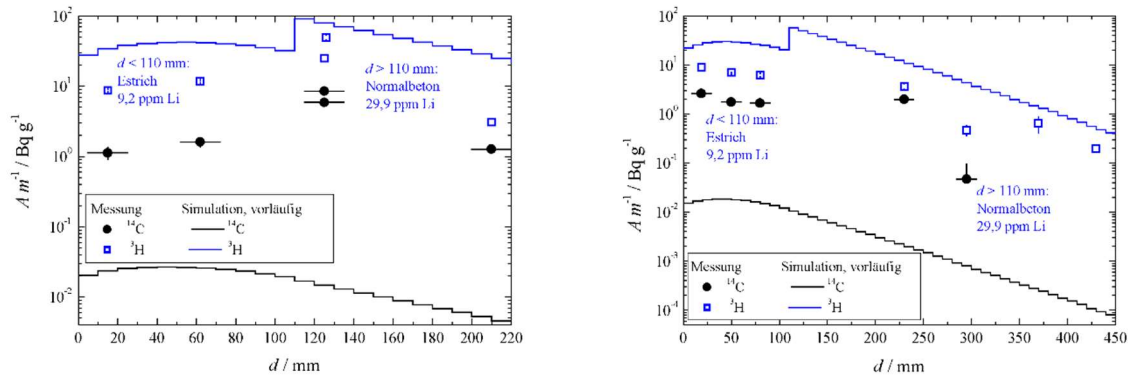


Abbildung 21: Gemessene und berechnete spezifische Aktivitäten für ^{14}C und ^3H für die Bohrkern 7 und 8.

Der zweite Erklärungsversuch betrifft die Messungen. Die Tritium-Aktivitäten sind größer als die gemessenen ^{14}C -Aktivitäten. Es ist denkbar, dass die LSC-Messungen weniger selektiv sind als erwartet und ein Teil der gemessenen Aktivität tatsächlich vom Tritium stammt. Die recht einheitlichen Verhältnisse der gemessenen ^3H - und ^{14}C -Aktivitäten bei Bohrkern 7 sprechen für diese Hypothese, die unterschiedlichen bei Bohrkern 8 eher dagegen.

Die berechneten spezifischen Aktivitäten für ^3H überschätzen die Messungen deutlich. Tritium entsteht überwiegend durch die Reaktion $^6\text{Li} + n \rightarrow ^3\text{H} + ^4\text{He}$. Die in Tabelle 7 aufgeführten Massenanteile für Li zeigen eine starke Streuung sowohl im Estrich als auch im Beton. Die um den Faktor 2 unterschiedlichen Messwerte für Bohrkern 7, $d \approx 125$ mm, sind möglicherweise durch unterschiedliche Li-Massenanteile begründbar. Tritium kann sehr mobil sein; die niedrigen gemessenen ^3H -Aktivitäten können mit einer Tritium-Freisetzung begründet werden, wobei unklar ist, ob diese bereits in der Betriebs- bzw. Nachbetriebsphase oder erst bei der Probenaufbereitung erfolgte.

5 Nutzen und Verwertung

Im Forschungsvorhaben wurde eine Methode entwickelt, mit der auf Basis der Leistungsgeschichte des Reaktors eine anlagenspezifische Aktivität zum Zeitpunkt des Abrisses der reaktornahen Beton- bzw. Konstruktionselemente berechnet werden kann. Außerdem wurden (radio-)chemische und strukturelle Charakterisierungen des anfallenden radioaktiven Materials durchgeführt.

Die chemische und strukturelle Charakterisierung ist für die Einschätzung der Stabilität der Bindung der Radionuklide speziell im Beton entscheidend und hat direkten Einfluss auf die Rückbaustrategie und auf eine spätere Endlagerung. Zwar unterscheidet sich die Betonzusammensetzung an den einzelnen KKW-Standorten leicht, aber die grundlegenden Inhaltsstoffe sind gleich, so dass sich die Erkenntnisse auch auf andere Standorte übertragen lassen.

Auch die Kinetiken möglicher Herauslösungen von Radionukliden mit Übergang in die wässrige Phase sind ähnlich und besonders wichtig auch für die Langzeitsicherheitsanalyse eines zukünftigen Endlagers.

Die in diesem Forschungsvorhaben gewonnenen Daten zur Aktivierung und Struktur des Betons im Reaktorschachtraum werden EWN zur Verfügung gestellt und können für die Auswahl der Rückbauverfahren genutzt werden, um einen sicheren Abriss der Betonkonstruktionen mit geringer Strahlenexposition der Mitarbeiter zu gewährleisten. Des Weiteren können die Daten zur besseren Abschätzung der Massenverteilung von radioaktivem Abfall und ggf. freimessbarem Beton und somit für eine genauere Entsorgungsplanung genutzt werden, was eine Minimierung des radioaktiven Abfallvolumens und der Kosten bedeutet.

Auf Grund des weitgehend gleichen Aufbaus der Blöcke 1 bis 4 des Kernkraftwerks Greifswald können die im Vorhaben gewonnenen Ergebnisse für Block 2 auch für die anderen Blöcke genutzt werden. Des Weiteren kann hierzu auch das im Projekt entwickelte Rechenmodell zur Aktivitätsberechnung verwendet werden.

Die Methode der Aktivitätsberechnung lässt sich prinzipiell auch für andere Reaktortypen anpassen und zu einem Standardverfahren weiterentwickeln. Eine direkte Übertragung von gewichteten Ergebnissen ist auf baugleiche Reaktoren vom Typ WWER-440 möglich. Der Reaktor wurde in vielen Staaten des ehemaligen Ostblocks gebaut und ist weitverbreitet.

Damit wird den Betreibern und Behörden international ein Werkzeug bereitgestellt, das Aussagen über die anfallenden radioaktiven Materialmengen und deren Charakteristiken beim anstehenden Rückbau liefert. Diese Informationen können genutzt werden, den Rückbauprozess so zu optimieren, dass sowohl die Strahlenbelastungen für Personal und Umwelt als auch die Kosten minimiert werden. Den Behörden werden zusätzlich Informationen bereitgestellt, die für die Endlagerung der Abfälle relevant sind.

Weiterhin wurde durch gezielte Einbeziehung von jungen Wissenschaftler/innen in das Projekt ein Beitrag zur Aus- und Weiterbildung des nötigen Fachpersonals für den anstehenden Rückbau der Anlagen geleistet.

Die gewonnenen Kenntnisse und entwickelten Verfahren und Methoden sowohl zur Berechnung der Aktivierung als auch zur experimentellen Charakterisierung von Beton und Stahl fließen direkt in das geplante Folgeprojekt EBENE – „Experimentell gestützte Berechnungen von Neutronenfeldern und den daraus resultierenden Aktivitäten in reaktorfernen Räumen“ ein.

6 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

Aus dem Reaktordeckel des Blocks 2 des KKW Greifswald wurden durch EWN Proben entnommen. Aus den Betonstrukturen des Blocks 2 wurden durch EWN acht Bohrkernproben gewonnen (4 × Normalbeton aus dem Bereich unterhalb des RDB, 4 × Schwerbeton aus dem Höhenbereich der Durchführungen für die Hauptumwälzleitungen). Die Stahl- und Betonproben wurden dem HZDR zur Verfügung gestellt.

Für RDB-Stahlproben der Blöcke 1 und 2 wurden Elementzusammensetzungen mittels optischer Funkenspektrometrie sowie spezifische Aktivitäten von ^{60}Co und ^{14}C mittels Gamma-spektrometrie bzw. LSC quantitativ bestimmt. Durch die Messung der Zusammensetzung der Stahlproben liegen erstmalig Massenanteile des Stickstoffs für aktive RDB-Proben des KKW Greifswald vor. Das ist relevant für die Bildung des langlebigen und mobilen Radionuklids ^{14}C , das überwiegend durch die Reaktion $^{14}\text{N}(n,p)$ produziert wird.

Für zwei der Betonbohrkerne wurden umfangreiche Untersuchungen durchgeführt. Es wurden spezifische Aktivitäten der Gammastrahler ^{60}Co , ^{152}Eu und ^{154}Eu sowie der Betastrahler Tritium und ^{14}C für verschiedene Probenpositionen gemessen. Die Elementzusammensetzung wurde für mehrere Estrich- und Betonproben gemessen. Damit liegen erstmalig Angaben zur Zusammensetzung des Estrichs und des Normalbetons aus dem reaktornahen Bereich des KKW Greifswald vor. Diese Informationen sind wesentlich für die Berechnung der spezifischen Aktivitäten.

Im Rahmen der strukturellen Charakterisierung der Betonproben erfolgte die Untersuchung der kristallinen Phasen durch Pulver-Röntgendiffraktometrie. Die wichtigsten Mineralphasen in Estrich- und Normalbetonproben wurden bestimmt. Quarz, verschiedene Feldspate (Mikroclin, Albit, Muscovit) und Calcit sind die wichtigsten Mineralphasen. Durch Kombination der Methoden Autoradiographie und μ -Raman-Spektroskopie konnten Feldspate als die Mineralphasen identifiziert werden, die die höchste Aktivierung aufweisen.

Für nicht aktivierte Betonproben wurden Porengrößen bestimmt. An nicht aktivierten Beton- und Mineralproben (Quarz, Kalifeldspat) wurde die Veränderung des Auflösungsverhaltens durch ionisierende Strahlung untersucht, indem diese mit Si-Ionen bestrahlt wurden. Für die bestrahlten Proben wurde eine Volumenausdehnung und ein erhöhtes Auflösungsvermögen in alkalischer Lösung beobachtet. Sowohl Quarz als auch verschiedene Feldspate zeigen eine durch Strahlung verursachte Destabilisierung der Gitterstruktur, was bei Wasserzutritt zu einer schnelleren Auflösung führt als bei unbestrahltem Material und damit eine Herauslösung der Radionuklide begünstigen kann.

Für die Simulation des Strahlungstransports wurde ein detailliertes und umfangreiches Geometriemodell, welches die Betonabschirmungen einschließt, entwickelt. Dieses wurde anhand

von Experimenten aus früheren Forschungsvorhaben validiert. Die Berechnung der Strahlenfelder zeigt eine effiziente Abschirmung der Neutronenstrahlung durch den Ringwasserbehälter. Die höchsten Neutronenfluenzen in Betonstrukturen werden unterhalb des RDB erwartet, weshalb zwei Bohrkerne aus diesem Bereich für die experimentellen Untersuchungen ausgewählt worden waren.

Spezifische Aktivitäten wurden für verschiedene Reaktorkomponenten (RDB, Reaktordeckel, Betonbohrkerne) berechnet. Für ausgewählte Proben wurde die zeitliche Entwicklung der Aktivitäten mit zunehmender Abklingzeit berechnet. Gemessene und berechnete Aktivitäten wurden für Proben aus dem RDB und den Betonbohrkernen verglichen. Der Vergleich der gemessenen mit den berechneten Aktivitäten zeigt ein inkonsistentes Bild für die Stahlproben mit teilweise guter Übereinstimmung und teilweise starken Diskrepanzen. Für die Betonproben wurde eine gute Übereinstimmung der gemessenen und berechneten Aktivitäten für die Gammastrahler beobachtet, aber große Unterschiede für die schwierig zu messenden Radionuklide Tritium und ^{14}C .

Verglichen mit gemessenen spezifischen Aktivitäten für den biologischen Schild des Blocks 5 des KKW Greifswald [52] sind die für Block 2 berechneten und gemessenen Aktivitäten sehr niedrig. Ursache ist die effiziente Abschirmung der Neutronen durch den Ringwassertank, der bei den WWER-440 der zweiten Generation durch eine so genannte trockene Abschirmung [48] ersetzt wurde. Es wird erwartet, dass eine spezifische Freigabe (Beseitigung von festen Stoffen bis 1000 Mg/Kalenderjahr auf Deponien) der Betonprobe an der Position der höchsten Neutronenfluenz etwa 4 Jahrzehnte nach Abschaltung der Reaktoren möglich ist.

Bei allen in [52] untersuchten Betonproben des Blocks 5 ist die spezifische Aktivität von ^{60}Co etwa um den Faktor 6 größer als die von ^{152}Eu . Im Gegensatz zeigen Messungen und Rechnungen, dass die spezifische Aktivität von ^{152}Eu für Proben des Blocks 2 etwa 20-mal so groß ist wie die von ^{60}Co . Aufgrund der deutlich längeren Halbwertszeit von ^{152}Eu gegenüber ^{60}Co und identischer Detektionsweise (Gammaskopie) könnte ^{152}Eu bei Estrich und Normalbeton zukünftig ^{60}Co als Leitnuklid ersetzen.

7 Literaturverzeichnis

- [1] Goorley, T.; James, M.; Booth, T.; Brown, F.; Bull, J.; Cox, L. J.; Durkee, J.; Elson, J.; Fensin, M.; Forster, R. A.; Hendricks, J.; Hughes, H. G.; Johns, R.; Kiedrowski, B.; Martz, R.; Mashnik, S.; McKinney, G.; Pelowitz, D.; Prael, R.; Sweezy, J.; Waters, L.; Wilcox, T.; Zukaitis, T.; Initial MCNP6 Release Overview. Nucl. Technol. 180, 2012, 298-315.
- [2] Barz, H.-U.; Konheiser, J.: Monte-Carlo Programm TRAMO - Möglichkeiten und Anleitung zur Nutzung; FZR Bericht 245, Dresden-Rossendorf, 1998.
- [3] Rhoades, W.; Childs, R.: TORT/DORT: Two-and Three Dimensional Discrete Ordinates Transport; CCC-543, RSIC, ORNL, TN, 1991.
- [4] Ludwig, S. B.; Renier, J. P.: Standard- and Extended-Burnup PWR and BWR Reactor Models for the ORIGEN2 Computer Code; ORNL/TM-11018, 1989.
- [5] Viehrig, H.-W.; Houska, M.; Ulbricht, A.; Konheiser, J.; Altstadt, E.; Noack, K.: Abschlussbericht Reaktorsicherheitsforschung - Vorhaben-Nr.: 150 1331 Wissenschaftlich-technische Zusammenarbeit mit Russland: Untersuchungen zu Mechanismen der Strahlenversprödung und des Ausheilverfahrens sowie Fluenzberechnungen für Reaktordruckbehälter von WWER-Reaktoren; Abschlussbericht HZDR\FWS\2011\06, 2011.
- [6] Konheiser, J.; Mittag, S.; Viehrig, H.-W.: Application of Different Nuclides in Retrospective Dosimetry. Journal of ASTM International 9, 2012, 1-7.
- [7] Volmert, B.; Pantelias, M.; Mutnuru, R. K.; Neukaeter, E.; Bitterli, B.: Validation of MCNP NPP Activation Simulations for Decommissioning Studies by Analysis of NPP Neutron Activation Foil Measurement Campaigns; ISRD 15 - International Symposium on Reactor Dosimetry, 2016.
- [8] Schlömer, L.; Phlippen, P. W.; Lukas, B.: Activation calculation for the dismantling and decommissioning of a light water reactor using MCNP (TM) with ADVANTG and ORIGEN-S; ICRS-13 & RPSD-2016, 13th International Conference on Radiation Shielding & 19th Topical Meeting of the Radiation Protection and Shielding Division of the American Nuclear Society, 2017.
- [9] IAEA: Radiological Characterization of Shut Down Nuclear Reactors for Decommissioning Purposes; IAEA TECHNICAL REPORTS SERIES No.389, 1998.
- [10] IAEA: Policies and Strategies for the Decommissioning of Nuclear and Radiological Facilities; IAEA NUCLEAR ENERGY SERIES No. NM-G-2.1, 2011.
- [11] Hou, X. L.: Rapid analysis of C-14 and H-3 in graphite and concrete for decommissioning of nuclear reactor. Appl. Radiat. Isot. 62, 2005, 871-882.
- [12] Hou, X. L.: Radiochemical determination of Ca-41 in nuclear reactor concrete. Radiochim. Acta 93, 2005, 611-617.

- [13] Hou, X. L.; Ostergaard, L. F.; Nielsen, S. P.: Determination of Ni-63 and Fe-55 in nuclear waste samples using radiochemical separation and liquid scintillation counting. *Anal. Chim. Acta* 535, 2005, 297-307.
- [14] Hou, X. L.: Liquid scintillation counting for determination of radionuclides in environmental and nuclear application. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 318, 2018, 1597-1628.
- [15] Hou, X. L.; Roos, P.: Critical comparison of radiometric and mass spectrometric methods for the determination of radionuclides in environmental, biological and nuclear waste samples. *Anal. Chim. Acta* 608, 2008, 105-139.
- [16] Warwick, P. E.; Croudace, I. W.; Hillegonds, D. J.: Effective Determination of the Long-lived Nuclide Ca-41 in Nuclear Reactor Bioshield Concretes: Comparison of Liquid Scintillation Counting and Accelerator Mass Spectrometry. *Anal. Chem.* 81, 2009, 1901-1906.
- [17] Kim, D. J.; Warwick, P. E.; Croudace, I. W.: Tritium speciation in nuclear reactor bioshield concrete and its impact on accurate analysis. *Anal. Chem.* 80, 2008, 5476-5480.
- [18] Szanto, Z.; Svingor, E.; Molnar, M.; Palcsu, L.; Futo, I.; Szucs, Z.: Diffusion of H-3, Tc-99, I-125, Cl-36 and Sr-85 in granite, concrete and bentonite. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 252, 2002, 133-138.
- [19] Wieland, E.; Jakob, A.; Tits, J.; Lothenbach, B.; Kunz, D.: Sorption and diffusion studies with low molecular weight organic compounds in cementitious systems. *Appl. Geochem.* 67, 2016, 101-117.
- [20] Evans, N. D. M.: Binding mechanisms of radionuclides to cement. *Cem. Concr. Res.* 38, 2008, 543-553.
- [21] Missana, T.; Garcia-Gutierrez, M.; Mingarro, M.; Alonso, U.: Analysis of barium retention mechanisms on calcium silicate hydrate phases. *Cem. Concr. Res.* 93, 2017, 8-16.
- [22] Tits, J.; Wieland, E.; Müller, C. J.; Landesman, C.; Bradbury, M. H.: Strontium binding by calcium silicate hydrates. *J. Colloid Interface Sci.* 300, 2006, 78-87.
- [23] Guo, B.; Liu, B.; Yang, J.; Zhang, S. G.: The mechanisms of heavy metal immobilization by cementitious material treatments and thermal treatments: A review. *J. Environ. Manage.* 193, 2017, 410-422.
- [24] Vespa, M.; Dahn, R.; Gallucci, E.; Grolimund, D.; Wieland, E.; Scheidegger, A. M.: Microscale investigations of ni uptake by cement using a combination of scanning electron microscopy and synchrotron-based techniques. *Environ. Sci. Technol.* 40, 2006, 7702-7709.

- [25] Vespa, M.; Dahn, R.; Grolimund, D.; Wieland, E.; Scheidegger, A. M.: Co speciation in hardened cement paste: A macro- and micro-spectroscopic investigation. *Environ. Sci. Technol.* 41, 2007, 1902-1908.
- [26] Young, A. J.; Warwick, P.; Milodowski, A. E.; Read, D.: Behaviour of radionuclides in the presence of superplasticiser. *Adv. Cem. Res.* 25, 2013, 32-43.
- [27] Garcia, D.; Grive, M.; Duro, L.; Brassinnes, S.; de Pablo, J.: The potential role of the degradation products of cement superplasticizers on the mobility of radionuclides. *Appl. Geochem.* 98, 2018, 1-9.
- [28] Ma, B.; Charlet, L.; Fernandez-Martinez, A.; Kang, M. L.; Made, B.: A review of the retention mechanisms of redox-sensitive radionuclides in multi-barrier systems. *Appl. Geochem.* 100, 2019, 414-431.
- [29] Pointeau, I.; Landesman, C.; Giffaut, E.; Reiller, P.: Reproducibility of the uptake of U(VI) onto degraded cement pastes and calcium silicate hydrate phases. *Radiochim. Acta* 92, 2004, 645-650.
- [30] Stumpf, T.; Tits, J.; Walther, C.; Wieland, E.; Fanghänel, T.: Uptake of trivalent actinides (curium(III)) by hardened cement paste: a time-resolved laser fluorescence spectroscopy study. *J. Colloid Interface Sci.* 276, 2004, 118-124.
- [31] Mace, N.; Wieland, E.; Dahn, R.; Tits, J.; Scheinost, A. C.: EXAFS investigation on U(VI) immobilization in hardened cement paste: influence of experimental conditions on speciation. *Radiochim. Acta* 101, 2013, 379-389.
- [32] Kienzler, B.; Metz, V.; Brendebach, B.; Finck, N.; Plaschke, M.; Rabung, T.; Rothe, J.; Schild, D.: Chemical status of U(VI) in cemented waste forms under saline conditions. *Radiochim. Acta* 98, 2010, 675-684.
- [33] Bube, C.; Metz, V.; Schild, D.; Rothe, J.; Dardenne, K.; Lagos, M.; Plaschke, M.; Kienzler, B.: Combining thermodynamic simulations, element and surface analytics to study U(VI) retention in corroded cement monoliths upon > 20 years of leaching. *Phys. Chem. Earth* 70-71, 2014, 53-59.
- [34] Harfouche, M.; Wieland, E.; Dahn, R.; Fujita, T.; Tits, J.; Kunz, D.; Tsukamoto, M.: EXAFS study of U(VI) uptake by calcium silicate hydrates. *J. Colloid Interface Sci.* 303, 2006, 195-204.
- [35] Wolter, J.-M.; Schmeide, K.; Weiss, S.; Bok, F.; Brendler, V.; Stumpf, T.: Stability of U(VI) doped calcium silicate hydrate gel in repository-relevant brines studied by leaching experiments and spectroscopy. *Chemosphere* 2019, 241-251.
- [36] Tits, J.; Geipel, G.; Mace, N.; Eilzer, M.; Wieland, E.: Determination of uranium(VI) sorbed species in calcium silicate hydrate phases: A laser-induced luminescence spectroscopy and batch sorption study. *J. Colloid Interface Sci.* 359, 2011, 248-256.

- [37] Tits, J.; Walther, C.; Stumpf, T.; Mace, N.; Wieland, E.: A luminescence line-narrowing spectroscopic study of the uranium(VI) interaction with cementitious materials and titanium dioxide. *Dalton Trans.* 44, 2015, 966-976.
- [38] Vespa, M.; Wieland, E.; Dahn, R.; Grolimund, D.; Scheidegger, A. M.: Determination of the elemental distribution and chemical speciation in highly heterogeneous cementitious materials using synchrotron-based micro-spectroscopic techniques. *Cem. Concr. Res.* 37, 2007, 1473-1482.
- [39] Ballesteros, A.: REDOS Final Report. Reactor Dosimetry: Accurate Determination and Benchmarking of Radiation Field Parameter, Relevant for Pressure Vessel Monitoring; EUR21771E, 2005.
- [40] Herman, M.: ENDF-102, ENDF-6 data formats and procedures for the evaluated nuclear data file ENDF-VII; BNL-NCS 44945-01/04-Rev, 2005.
- [41] Konheiser, J.; Mittag, S.; Zaritsky, S.: Neutron fluence calculations for embrittlement surveillance specimens in VVER-1000. *Ann. Nucl. Energy* 36, 2009, 1235-1241.
- [42] Kalugin, M.A.; Oleynik, D.S.; Shkarovsky, D.A.: Overview of the MCU Monte Carlo software package *Ann. Nucl. Energy* 82, 2015, 54-62.
- [45] Wolter, J.-M.; Schmeide, K.; Huittinen, N.; Stumpf, T.: Cm(III) retention by calcium silicate hydrate (C-S-H) gel and secondary alteration phases in saline carbonate solutions – A site-selective TRLFS and XRD study. *Scientific Reports* 9, 2019, 14255
- [46] Borodkin, P.; Borodkin, G.; Khrennikov, N.; Konheiser, J.; Noack, K.: Neutron dosimetry on the full-core first generation VVER-440 aimed at reactor support structure load evaluation; 13th International Symposium on Reactor Dosimetry, World Scientific Publishing New Jersey London Singapore, 2008; pp 300-309.
- [47] Borodkin, P.; Borodkin, G.; Khrennikov, N.; Konheiser, J.; Noack, K.: Neutron Dosimetry Study in the Region of the Support Structure of a VVER-1000 Type Reactor; 13th International Symposium on Reactor Dosimetry, World Scientific Publishing New Jersey London Singapore, 2008; pp 688-699.
- [48] G. Ackermann (Hrsg.), *Betrieb und Instandhaltung von Kernkraftwerken*, 2. Auflage, Leipzig: VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, 1987.
- [49] S. Baier u. a., „Abschlussbericht Reaktorsicherheitsforschung - Vorhaben-Nr. 150 1531, WTZ Russland - Weiterentwicklung und Validierung des Programms TRAMO für die Reaktordosimetrie und Aktivitätsberechnung,“ Dresden, 2021.
- [50] P. Brennecke (Hrsg.), „Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle (Endlagerungsbedingungen, Stand: Dezember 2014) Endlager Konrad,“ SE-IB-29/08-REV-2, 2015.
- [51] BMU, „Leitfaden zur Stilllegung, zum sicheren Einschluss und zum Abbau von Anlagen oder Anlageteilen nach § 7 des Atomgesetzes, Stand 09/21,“ 2021.

[52] K. Svoboda u.a., „Biologické Stínění Reaktoru,“ Technická zpráva číslo 203/2017, ÚJV Rez, Praha, 2017.

HZDR
HELMHOLTZ ZENTRUM
DRESDEN ROSSENDORF

Bautzner Landstr. 400
01328 Dresden, Germany
Phone +49 351 260-2461
Fax +49 351 260-12461
Email j.konheiser@hzdr.de
<http://www.hzdr.de>