

AGO-Hinweispapier

„Retrospektive Ermittlung von Ableitungen
aus der Schachanlage **Asse II**“.

Arbeitsgruppe Optionen – Rückholung (AGO)

Projektträger Karlsruhe (PTKA) - Abteilung Entsorgung
Bühler, M.; Stacheder, M.

Sachverständige der Begleitgruppe Asse-II des Landkreises Wolfenbüttel

Brückner, U.
Gellermann, R.
Hoffmann, F.
Kreusch, J.
Krupp, R.

Abgestimmte Fassung vom 20.12.2022

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung.....	1
2. Grundlagen.....	3
2.1 Eigenschaften von Radiokohlenstoff (^{14}C).....	3
2.2 ^{14}C -Inventar und ^{14}C -Ableitungen der Schachtanlage Asse II.....	3
2.3 ^{14}C -Messungen	5
2.4 ^{14}C in Baumringen.....	7
2.5 Verdünnungsvermögen der Atmosphäre.....	8
2.6 Ergebnisse der internationalen Fachliteratur.....	9
3. Modellbetrachtungen (Referenzfall 1982).....	11
4. Fazit.....	16
Literaturverzeichnis	17

1. Einleitung

Die Ableitungen der Abwetter der Schachtanlage Asse II wurden seit 1966 auf Radioaktivität überwacht. In den Jahren bis 1977 beschränkte sich die Überwachung der Abwetter aber auf monatliche Luftstaubproben „aus der näheren Umgebung des Salzbergwerks Asse“ [1]. Für den Zeitraum ab 1977 liegen Messergebnisse des Betreibers GSF vor, die u.a. Angaben zu den Jahressummen der Ableitungen von Tritium (^3H), Radiokohlenstoff (^{14}C), Radioblei (^{210}Pb) sowie Radon (^{222}Rn) enthalten.

Von den im Rahmen der Emissionsüberwachung gemessenen Radionukliden ist aus folgenden Gründen nur Radiokohlenstoff geeignet, um frühere Ableitungen ggf. noch erkennen und abschätzen zu können:

- Beim Tritium lagen die Konzentrationen im Niederschlag in den 1960er und 1970er Jahren als Folge atmosphärischer Kernwaffentests um ca. 2 Größenordnungen (Faktor 100) höher als der natürliche Hintergrund. Außerdem wird das Isotopenverhältnis von Tritium zu Wasserstoff ($^3\text{H}/^1\text{H}$), im Gas (z.B. Wasserdampf) das über Grubenwetter in die Umwelt gelangt, in Ökosystemen nicht bzw. nur sehr geringfügig in organischen Materialien erhöht (^3H angereichert). Da außerdem Tritium mit einer Halbwertszeit von 12,4 Jahren zerfällt, sind messbare Spuren einer früheren Freisetzung nicht zu erwarten.

- Das Edelgas Radon (^{222}Rn) zerfällt mit einer Halbwertszeit von 3,8 Tagen und wird in Umweltmedien weder effektiv gespeichert noch angereichert. Das früher emittierte Radon ist daher inzwischen vollständig zerfallen und nicht mehr messbar. Auch andere Edelgase, wie z.B. Krypton (^{85}Kr) oder Argon (^{41}Ar), die ggf. aus radioaktiven Abfällen freigesetzt werden können, werden in Umweltmedien nicht angereichert und sind daher retrospektiv nicht messbar.
- Durch den Zerfall von Radon (^{222}Rn) wird allerdings das Radionuklid Blei-210 (^{210}Pb) gebildet. Dieses Radionuklid besitzt eine Halbwertszeit von 22 Jahren und kann in Umweltmedien wie Böden und Sedimenten gespeichert werden. Grundsätzlich ist es daher möglich, Signale früherer Freisetzungen in Umweltmedien zu finden. Allerdings wird ^{210}Pb in der Atmosphäre durch den Zerfall von ^{222}Rn ständig nachgebildet und lagert sich durch die natürliche Deposition in relativ hohen spezifischen Aktivitäten am Boden und in Sedimenten ab. Sowohl die bisherigen Ergebnisse der Umgebungsüberwachung, die auch Messungen von ^{210}Pb enthalten, als auch die Daten der Emissionsüberwachung lassen allerdings den Schluss zu, dass ein messbares Signal in Anbetracht der Hintergrundwerte nicht zu erwarten ist.

Als einziges Radionuklid, bei dem es realistisch ist, dass Ableitungen derzeit noch messbare Signale in Umweltmedien hinterlassen haben, ist das ^{14}C anzusehen.

Konkrete Daten für Ableitungen aus der Schachanlage Asse II für ^{14}C liegen ab 1978 vor. In ihrem Diskussionspapier zur Umgebungsüberwachung [2] hat die AGO auf die Möglichkeit hingewiesen, frühere Ableitungen von ^{14}C aus der Schachanlage Asse II mittels Baumringuntersuchungen zu überprüfen. Da insbesondere aus den Jahren 1966-1976, in denen ein aktiver Umgang mit radioaktiven Abfällen im Bergwerk und den Tagesanlagen stattfand, keine Messung von ^{14}C in der Abluft der Schachanlage ausgeführt wurde [1], gibt es eine Lücke in der Emissionsüberwachung. Informationen über frühere Freisetzungen könnten sowohl dazu beitragen diese Lücke zu schließen als auch unabhängig von den Daten der Eigenüberwachung des früheren Betreibers die ^{14}C -Ableitungen abzuschätzen. Daten, die die Freisetzung von ^{14}C bei offenen Einlagerungskammern und einem aktiven Umgang mit den radioaktiven Abfällen eingrenzen, würden auch genutzt werden können, um Grundlagen für die Strahlenschutzplanung bei der Rückholung abzuleiten.

Dass derartige Untersuchungen messbare Effekte finden und auch Ableitungen quantifizieren können, zeigen die im Kapitel 2.6 aufgeführten Arbeiten.

Um die Möglichkeit einer retrospektiven Messung von ^{14}C -Ableitungen fachlich weiter aufzuklären und auch Aussagen zu Emissionen vor dem Beginn der Messreihe, also zu Zeiten einer aktiven Handhabung von radioaktiven Abfällen treffen zu können sowie ggf. auch die Qualität der früheren Messungen einschätzen zu können, werden Voraussetzungen und Grenzen zur Bestimmung einer früheren ^{14}C -Emission der Schachtlage Asse II anhand von Baumringen näher betrachtet.

2. Grundlagen

2.1 Eigenschaften von Radiokohlenstoff (^{14}C)

Das Radionuklid ^{14}C (Radiokohlenstoff) ist ein Betastrahler mit einer Halbwertszeit von ca. 5700 Jahren. Es wird durch die von der Höhenstrahlung ausgelösten Kernreaktionen in der Atmosphäre natürlicherweise gebildet und ist daher in der Umwelt stets vorhanden. Allerdings ist ^{14}C ab 1945 als Folge von Kernwaffentests in die Atmosphäre gelangt (<https://de.wikipedia.org/wiki/Kernwaffen-Effekt>).

Chemisch verhält sich ^{14}C wie Kohlenstoff und wird daher in alle kohlenstoffhaltigen chemischen Verbindungen lebender Organismen eingebaut. Die spezifische ^{14}C -Aktivität in biologischen Materialien (^{14}C -Gehalt) hängt daher vom Kohlenstoffgehalt ab. Bezogen auf den kernphysikalisch stabilen Kohlenstoff (Isotope ^{12}C , ^{13}C) findet eine Anreicherung von ^{14}C in den Umweltmedien nicht statt.

Das natürliche ^{14}C trägt mit etwa 12 μSv zur jährlichen Strahlenexposition der Bevölkerung bei [18].

2.2 ^{14}C -Inventar und ^{14}C -Ableitungen der Schachtanlage Asse II

Das in die Schachtanlage Asse II eingebrachte Inventar an ^{14}C betrug zum Stichtag 01.01.2003 nach Angaben in dem GSF-Abschlussbericht [3] 3850 GBq ($3,85\text{E}+12$ Bq). Nach Überprüfung der Inventardaten gab der TÜV 2013 [4] das Inventar zum Stichtag 01.01.1980 mit 2650 GBq ($2,65\text{E}+12$ Bq) an. Reduziert wurde vom TÜV das ^{14}C -Inventar in den Einlagerungskammern 6/750m, 8/750m, 10/750m, 11/750m und 12/750m. Der größte Teil dieses Inventars (28 %) befindet sich in der ELK 11/750m, gefolgt von 2/750mNA2 (15 %) und 6/750m (13 %).

Durch radioaktiven Zerfall wurde dieses Inventar seit seiner Einlagerung in den 1970er Jahren (also im Zeitraum von ca. 50 Jahren), nur zu weniger als 1 % reduziert.

Die mit dem Abwetter jährlich emittierte Aktivität von ^{14}C lag am Anfang der Messreihe von 1978 bis 1983 in einem Bereich größer 4 GBq während im restlichen Messzeitraum bis 2017 die Jahresaktivität an ^{14}C kleiner 4 GBq bzw. seit 1994 kleiner 2 GBq ist.

Bezüglich der ^{14}C -Ableitungen aus der Schachtanlage Asse II wird in [5] festgestellt, dass ca. 10 % des ^{14}C in Form von Kohlenwasserstoffverbindungen vorliegt. Dieser Teil der Ableitungen wird durch die übliche Probenahme, die nur das CO_2 aus dem Wetterstrom erfasst, nicht einbezogen.

Die nach den Daten der Umgebungsüberwachung [5] maximale Emission in der Messreihe lag im Jahr 1982 bei 14,8 GBq ^{14}C bei einer Aktivitätskonzentration in der Ableitung von 16 Bq/m³ (Abbildung 1). Summiert man die Jahresemissionen von ^{14}C seit 1978, so wurden aus der Schachtanlage bis zum Jahresende 2017 etwa 103 GBq ^{14}C abgeleitet. Das sind ca. 2,7 % des Inventars. Man muss daher damit rechnen, dass praktisch das gesamte eingelagerte Inventar an ^{14}C noch in den Einlagerungskammern liegt und bei der Rückholung eine höhere Freisetzung auftreten wird als im derzeitigen Zustand.

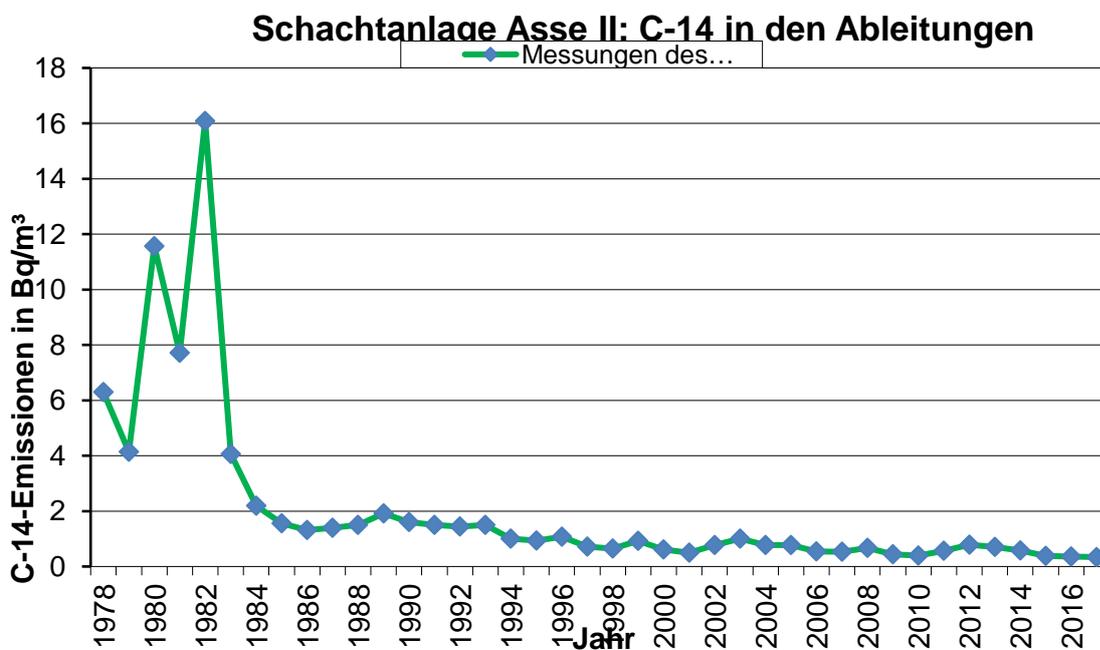


Abbildung 1: ^{14}C -Emissionen seit 1978 in den Ableitungen der Schachtanlage Asse II. Daten aus [5]

2.3 ¹⁴C-Messungen

Eine frühere, lokale Ableitung von ¹⁴C aus der Schachanlage Asse II ist retrospektiv nur nachweisbar, wenn sie:

- in der Vegetationsperiode eines Jahres den ¹⁴C-Gehalt der Umgebungsluft signifikant verändert hat und
- diese Veränderung nicht in den messtechnisch unvermeidlichen Unsicherheiten untergeht.

Wie im Weiteren gezeigt wird, sind die Messungen von ¹⁴C in Biomasseproben (Gras), wie sie im Rahmen der Umgebungsüberwachung ausgeführt werden (s. z.B. [6]), nur geeignet, um Strahlenexpositionen bei Verzehr von lokal angebauten Nahrungsmitteln abzuschätzen, nicht aber für Aussagen über frühere Ableitungen. Retrospektive Ermittlungen von ¹⁴C-Ableitungen erfordern Präzisionsmessungen. Solche Messungen werden nach aktuellem Stand der Wissenschaft mittels Beschleuniger-Massenspektrometrie (AMS, accelerator mass spectrometry) ausgeführt. Dabei werden die Messergebnisse in wissenschaftlichen Veröffentlichungen in verschiedenen Einheiten angegeben. [7].

Primäre Messgröße bei der AMS ist das Verhältnis der Anzahl der Kohlenstoffisotope von ¹⁴C zu ¹²C und/oder ¹⁴C zu ¹³C. Da Kohlenstoff als chemisches Element aus den beiden stabilen Isotopen ¹²C und ¹³C besteht, wobei ¹²C einen Stoffmengenanteil von 98,9 %, ¹³C einen Anteil von 1,1 % besitzt, muss für eine exakte Bestimmung von ¹⁴C bezogen auf den Gesamtkohlenstoff C die Isotopenzusammensetzung des stabilen Kohlenstoffs berücksichtigt werden.

Als Bezug für die Isotopenzusammensetzung des stabilen Kohlenstoffs wird z.B. ein fossiles Kalziumkarbonat (Peedee-Belemnit) als Standard verwendet. Die Abweichung einer Probe zu diesem Standard wird als $\delta^{13}\text{C}$ bezeichnet und in ‰ angegeben. Die gemessenen Isotopenverhältnisse einer Holzprobe werden meist auf ein Verhältnis von $\delta^{13}\text{C} = -25\text{‰}$ normiert, um die rezente Isotopenverteilung in Holz zu berücksichtigen [4].

Auch für die Messung von ¹⁴C werden Standards verwendet. Ein üblicher Radiokohlenstoff-Standard war der NIST-Oxalsäure-Standard mit einem $\delta^{13}\text{C}$ -Wert nahe -19‰. Dieser Standard wurde 1955 aus Zuckerrüben hergestellt. Da 1955 bereits ein erster Anstieg der ¹⁴C-Konzentrationen durch nukleare Waffentests vorhanden

war, wird der Standard mit dem Faktor 0,95 korrigiert, um auf das prä nukleare Niveau von 1950 zu schließen [4]. Bei Messungen mit diesem Standard wird auf ein $\delta^{13}\text{C}$ von - 19‰ normalisiert, um auf die normalisierte Aktivität der Oxalsäure zu schließen. Da dieser Standard nicht mehr verfügbar ist, wurde der Standard OxII entwickelt, der wiederum seine eigenen Faktoren zur Umrechnung auf die Standardaktivität von 1950 hat [4].

Da in einer Referenzprobe aus 1950 inzwischen ^{14}C durch den radioaktiven Zerfall um fast 1 % abgenommen hat, gibt es zwei unterschiedliche Ansätze, diesen Effekt bei der Angabe von Messwerten zu berücksichtigen:

- Die Messeinheit pMC (*percent Modern Carbon*) setzt das Verhältnis von $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ in der Probe in Relation zum normalisierten Bezugsverhältnis des Standards zu 1950 [8, 4]. 100 pMC entsprechen nach dem absoluten Standard für Kohlenstoffe (bezogen auf das Jahr 1950) einer Aktivität von 226 Bq/kg C [4].
- Geht man allerdings von einem Standard aus, der die aktuell messbare ^{14}C -Aktivität einer Probe aus 1950 als Bezug verwendet, so beträgt die Aktivität 224 Bq/kg C.

Auch bei der häufig in der Literatur verwendeten (abgeleiteten) Messgröße $\Delta^{14}\text{C}$ ist zu einem Vergleich mit anderen Werten wichtig, ob der angegebene Wert den Atomzahl-Überschuss zum Zeitpunkt der Messung (z.B. in 2023) oder zum Zeitpunkt der Entstehung des Probenmaterials (vor ca. 50 Jahren) meint. Obwohl die Unterschiede gering sind, müssen sie bei der Planung und Auswertung von Messungen beachtet werden, da (wie unten noch gezeigt wird) mögliche Signale von früheren ^{14}C -Emissionen nur wenig vom Hintergrund abweichen werden.

Mittels AMS kann der absolute Wert des Verhältnisses $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ von Proben mit einer Standardabweichung (1σ -Abweichung) von ca. $\pm 0,3\%$ - $0,5\%$, in älteren Publikationen noch mit $\pm 1\%$, bestimmt werden [8, 9, 10, 11]. In diesen Messunsicherheiten sind die Unsicherheiten bei der Zählung, den Standards und der Hintergrundkorrektur eingerechnet. In [5] wird der relative Fehler der Poisson-Verteilung bei der Zählung mit $\pm 0,17\%$ und der Fehler durch die Kalibrierung mit $\pm 0,09\%$ angegeben. Laut Radiokohlenstofflabor Heidelberg wird das Ziel verfolgt, eine Messunsicherheit von kleiner 0,1% zu erreichen [12].

Mit dieser Unsicherheit können „Signale“ allerdings nur erkannt werden, wenn sie an direkt vergleichbaren Materialproben (gleiche Baumart, evtl. ähnliche Böden, ähnliche Alter, unterschiedliche Entfernung zum Emissionspunkt) aus der Asse-Region gewonnen wurden. Bei einem Vergleich mit den Daten aus anderen Regionen sind die Referenzwerte deutlich unsicherer anzugeben.

2.4 ^{14}C in Baumringen

Die ^{14}C -Aktivität von Baumringen wird üblicherweise bezogen auf die Menge des chemischen Elementes Kohlenstoff gemessen (Bq ^{14}C je kg Kohlenstoff, abgekürzt Bq/kg C). Da der Kohlenstoff der Baumringe überwiegend aus der Aufnahme von CO_2 aus der Atmosphäre stammt, reflektiert die Messgröße das Isotopenverhältnis $^{14}\text{C}/\text{C}$ in der Umgebungsluft des Baumes, wobei die Wachstumsphase (Frühjahr, Sommer) besonders eingeht.

Durch die Kernwaffentests, die in erheblichem Maße ^{14}C erzeugten wurde dieses Isotopenverhältnis erhöht. Andererseits nimmt durch die Verbrennung von fossilem (also ^{14}C -freiem) Kohlenstoff das Isotopenverhältnis (langsam) ab. In Abbildung 2 ist eine Referenzkurve für die ^{14}C -Gehalte in Baumringen in Deutschland für den hier besonders interessanten Zeitraum zwischen 1965 und 1980 dargestellt.

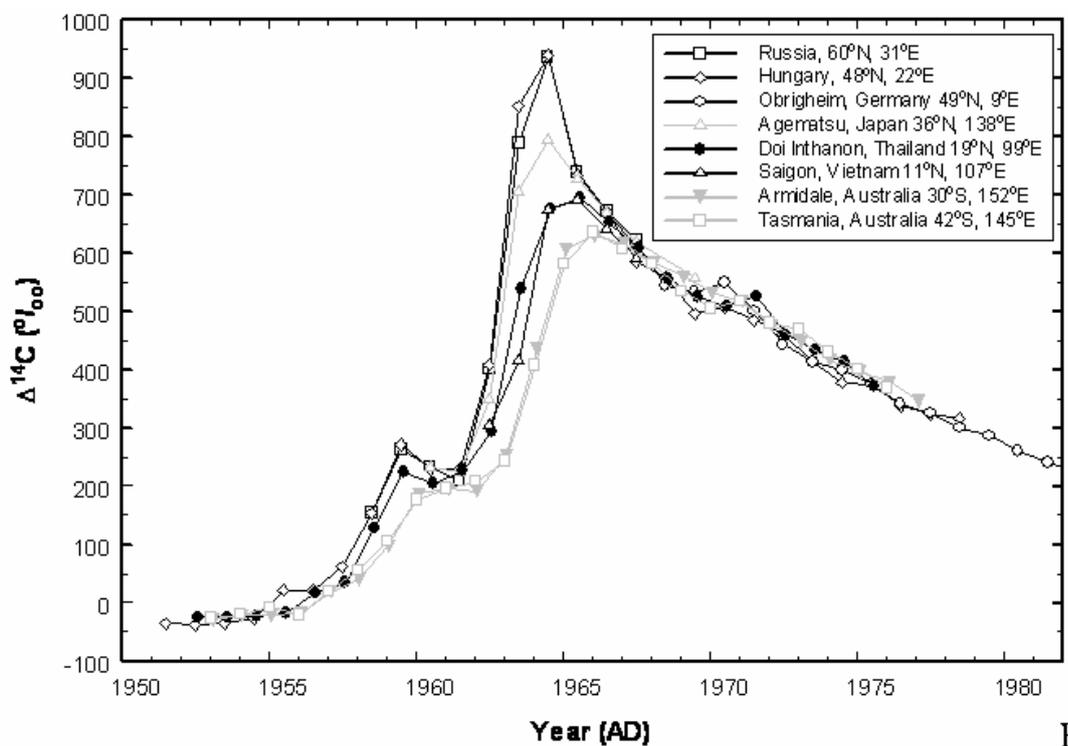


Abbildung 2: ^{14}C Daten von Baumringen in unterschiedlichen Weltregionen 1950 bis 1985. Die Unterschiede vor 1965 reflektieren die örtliche Nähe zu Kernwaffentests. Ab ca. 1967 verschwinden diese Unterschiede Quelle: [19].

In diesem Zeitraum lag die allgemeine ^{14}C -Aktivität in Baumringen ca. um den Faktor 1,4 – 1,6 höher als im Bezugsjahr 1950 und betrug folglich ca. 316 Bq/kg C – 362 Bq/kg C.

2.5 Verdünnungsvermögen der Atmosphäre

Aus der Atmosphäre wird nur das als Kohlendioxid gebundene ^{14}C in die Pflanzen eingebaut. ^{14}C , das in anderen chemischen Verbindungen (z.B. Methan, $^{14}\text{CH}_4$) freigesetzt wird, wird bei der Photosynthese durch die Pflanzen nicht verstoffwechselt und hinterlässt damit keine Spuren in Baumringen. Da sich in der Atmosphäre stets natürliches (und technogenes) ^{14}C befindet, wird bei einer Freisetzung das emittierte ^{14}C mit dem natürlichen ^{14}C vermischt.

Die CO_2 -Konzentration der Atmosphäre wird üblicherweise in ppmv (*parts per million by volume*) angeben. Ein ppmv bezieht sich dabei auf ein Stoffmengenverhältnis. Der Satz von Avogadro besagt, dass sich bei idealen Gasen bei gleichem Druck und Temperatur immer die gleiche Stoffmenge (Teilchenzahl), unabhängig von der Größe der Teilchen in einer Volumeneinheit befindet. So entspricht bei idealen Gasen 1 mol bei 1 atm ($1\text{E}+5$ Pa) und 273,15 K immer 22,4 Liter. Daraus folgt, dass 1 mol CO_2 mit 22,4 l eine Masse von 44 g (C 12 g/mol und 2x O 16 g/mol = 44 g/mol) aufweist, eine Dichte von 1,96 g/l besitzt und einen Kohlenstoffanteil von 27,3 % aufweist. Je ppmv CO_2 enthält die Atmosphäre folglich $0,535 \text{ mg/m}^3$ Kohlenstoff.

Die CO_2 -Konzentration in der Atmosphäre lag in den 1970er Jahren bei ca. 330 ppm bis 340 ppm. Sie hatte zu diesem Zeitpunkt verglichen mit 1950 bereits deutlich zugenommen und ist seitdem weiter stetig angestiegen (Abbildung 3). Die Konzentration an Kohlenstoff lag damit in den 1970er Jahren bei ca. 176 mg/m^3 - 182 mg/m^3 und die ^{14}C -Konzentration bei ca. 58 mBq/m^3 bis 64 mBq/m^3 .

Die Emissionen der Schachanlage Asse II wiesen von 1978 – 83 stets ^{14}C -Konzentrationen von mehr als 4 Bq/m^3 auf, lagen also ca. 100-fach höher als das natürliche Niveau. Durch die Verdünnung der Grubenwetter bei der Ausbreitung in der Atmosphäre wird allerdings die Konzentration schnell soweit verringert, dass sie sich nicht mehr messbar von der natürlichen Konzentration unterscheidet. Im Kapitel 3 werden einige Modellbetrachtungen vorgenommen, um abzuschätzen, bis zu welcher Entfernung von der Schachanlage mit messbaren Veränderungen der ^{14}C -Signaturen in Baumringen gerechnet werden kann.

Kohlendioxid-Konzentration in der Atmosphäre (Monatsmittel)

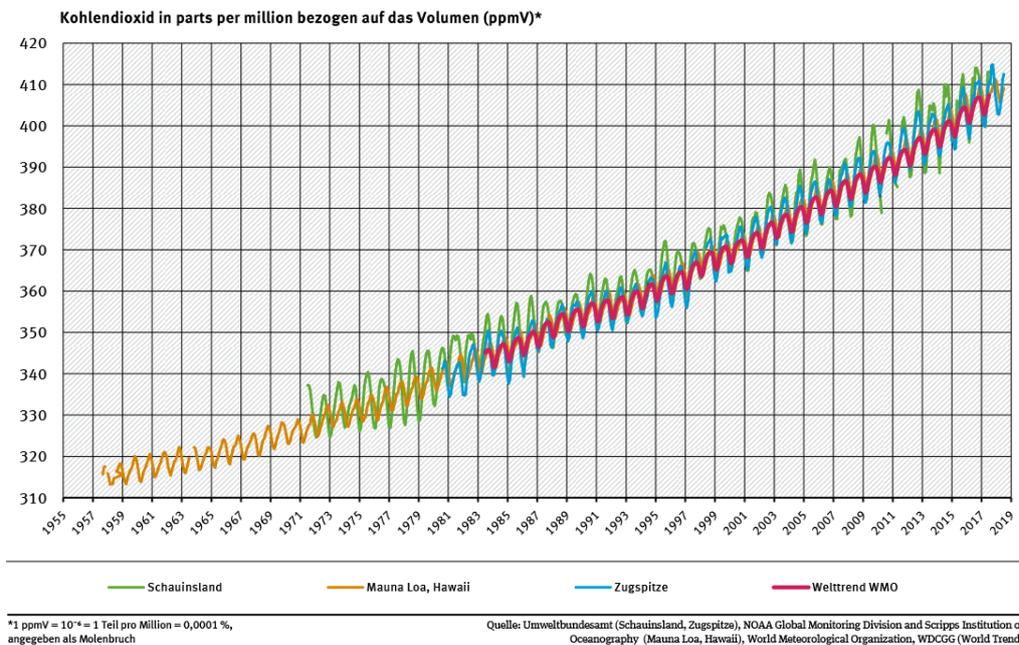


Abbildung 3: Entwicklung des atmosphärischen CO₂ Gehaltes ab 1957 bei Mauna Loa, Hawaii; ab 1972 bei Schauinsland, ab 1979 bei der Zugspitze, Quelle: www.umweltbundesamt.de.

Zu beachten ist allerdings auch, dass die CO₂-Konzentration in der Atmosphäre einem jährlichen Gang folgt, der von der Vegetationsperiode abhängig ist. Die höchsten CO₂-Konzentrationen treten vor Beginn der Vegetationsperiode im Februar/März auf und die geringsten CO₂-Konzentrationen zum Ende der Vegetationsperiode von Juli bis September auf [10]. Bei der Messstation Schauinsland beträgt die jährliche Schwankung ca. ±9 ppm [13] und ist somit größer, als die Schwankung bei der internationale Messstation auf Mauna Loa, die sich in einem Bereich von ±6 ppm bewegt (siehe Abbildung 3).

2.6 Ergebnisse der internationalen Fachliteratur

Um zu prüfen, welche Erfahrungen mit entsprechenden Fragen international vorliegen, wurde Fachliteratur recherchiert und ausgewertet.

Bei einem Kernkraftwerk in Litauen (Ignalina Nuclear Power Plant, INPP), das von 1984 bis 2002 in Betrieb war, wurden die Emissionen anhand von Baumringen in Hauptwindrichtung untersucht [14]. Dabei wurde die ¹⁴C-Aktivität mittels flüssig-Szintillation von Benzol bestimmt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4 dargestellt. Sie zeigen für den Zeitraum 1983 – 2002 sehr deutliche Erhöhungen der ¹⁴C-Gehalte in

Baumringen aus der Nähe des INPP im Vergleich zu weiter entfernten Bäumen und der globalen Vergleichskurve.

Allerdings lag die berechnete ^{14}C -Emissionen mit bis zu 11 TBq/a um ca. das 1000-fache höher als die bei der Schachtanlage Asse II dokumentierten maximal 15 GBq/a. Durch den hohen Kühlturm lag der Langzeitausbreitungsfaktor mit $1,75\text{E}-8 \text{ s/m}^3$ um mehr als den Faktor 1000 niedriger als im Kapitel 2.2 für die Schachtanlage Asse II abgeschätzt [11].

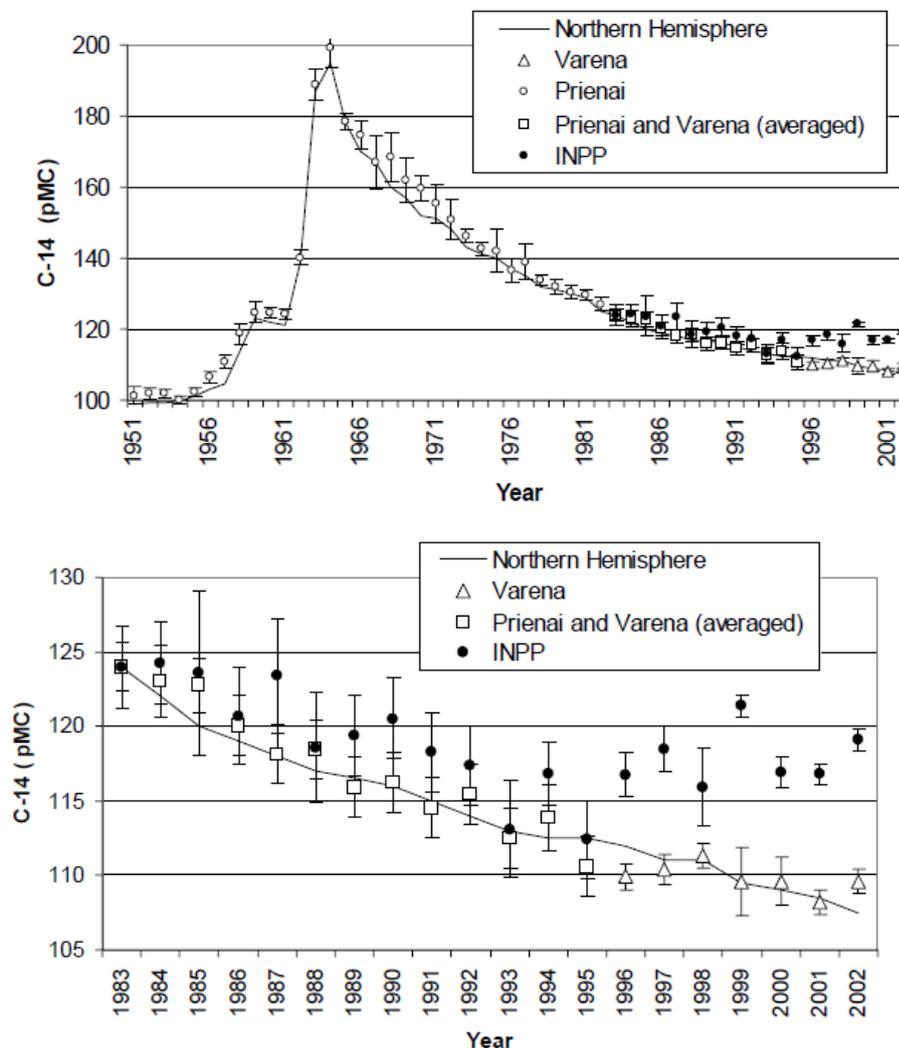


Abbildung 4: Spezifische ^{14}C Aktivität von Kiefern im Umfeld des Kernkraftwerkes INPP [14].

In der Arbeit von Vogel et al. [15] wird gezeigt, dass man den Einfluss von Kernkraftwerken auf lokaler und regionaler Ebene in Kanadas größtem Stadtgebiet (Greater Toronto Area) verfolgen kann. In diesem Gebiet sind die Hintergrundwerte

von $^{14}\text{CO}_2$ aufgrund der CO_2 -Emissionen aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe reduziert. Die ^{14}C -Daten von einem Standort 20 Kilometer windabwärts von einem Kernkraftwerk korrelieren stark mit den jährlich gemeldeten Emissionen des Kraftwerks für den Zeitraum 2009 - 2018. Durch Zurückverfolgen der Analyse bis in die 1990er Jahre zeigen die Autoren, dass die $^{14}\text{CO}_2$ -Emissionen früher 4– bis 8-mal höher waren als zum Zeitpunkt der Untersuchung (2018).

Eine Studie, die ^{14}C -Emissionen in der Nähe eines chinesischen Kernkraftwerkes untersuchte, zeigte meist keine gegenüber dem natürlichen ^{14}C -Wert erhöhten Hintergrundwerte. Zum Ende der Messreihe wurde ein ^{14}C -Peak von 26% über dem Hintergrund festgestellt, der von den Autoren als Störung in der Reinigungsanlage interpretiert wird [16].

Insgesamt zeigt die Fachliteratur, dass es grundsätzlich möglich ist, Informationen über lokale Emissionen von ^{14}C durch Baumringuntersuchungen auch rückblickend (retrospektiv) zu erhalten und zu bewerten. Um verwertbare Ergebnisse zu erhalten, sind mehrere Baumringuntersuchungen vorteilhaft, da es darauf ankommt, das Signal des Emittenten vom lokalen Hintergrund zu unterscheiden. Außerdem muss die Freisetzung des Emittenten hinreichend groß sein. Inwieweit diese Anforderungen an der Asse gegeben sind, wird im folgenden Kapitel geprüft. Als Referenz wird das Jahr 1982 betrachtet. In diesem Jahr lag nach Angaben in [5] die messtechnisch erfasste ^{14}C -Ableitung am höchsten. Da allerdings 1982 die aktive Einlagerung von radioaktiven Abfällen in die Schachanlage Asse II schon abgeschlossen war, ist es möglich, dass davor noch höhere Ableitungen vorkamen. Als besonders relevanter Zeitraum werden die Jahre 1976 bis 1977 angesehen, in denen die meisten Abfälle in die Schachanlage verbracht wurden.

3. Modellbetrachtungen (Referenzfall 1982)

Nach den Angaben in [3] wurden 1982 mit ca. 15 GBq die höchste ^{14}C -Aktivität aus der Schachanlage Asse II abgeleitet. Im Folgenden wird abgeschätzt, ob daraus messtechnisch nachweisbare Veränderungen der ^{14}C -Gehalte in Baumringen der Asse-Region zu erwarten sind.

Diese Abschätzungen sollen zunächst nur einen allgemeinen Rahmen liefern, mit dem beurteilt werden kann, ob eine retrospektive Untersuchung fachlich begründbar ist und welche Anforderungen an die Durchführung einer solchen Untersuchung ggf. zu stellen sind. Sofern eine solche Untersuchung tatsächlich geplant und realisiert wird,

ist eine detailliertere Analyse der Rahmenbedingungen unter Berücksichtigung des lokalen Reliefs der Umgebung als Grundlage einer Auswertung von Messbefunden nötig.

Grundlage der Modellbetrachtungen sind die Ausbreitungsmodelle für den Luftpfad nach der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift (AVV) zu § 47 StrlSchV aus dem Jahr 2012 [17]. Die Ausbreitung radioaktiver Stoffe in der Atmosphäre wird in dieser AVV mit dem Gauß-Modell beschrieben. Dieses Modell wurde inzwischen durch das Lagrange-Modell ersetzt, ist aber für orientierende analytische Abschätzungen durchaus noch geeignet.

Für den hier zu betrachtenden Fall von früheren Emissionen wird beim derzeitigen Stand der Kenntnisse von einer mittleren ^{14}C -Emission verteilt über das ganze Jahr ausgegangen. Aus diesem Grund ist das Modell der Langzeitausbreitung für eine Abschätzung zugrunde zu legen.

Der Diffusor als Emissionspunkt der Schachtanlage Asse II befindet sich bei N 52.12977° / E 10.67057° in einer Tallage (Abbildung 5).



Abbildung 5: Satellitenbild der Schachtanlage Asse II (Bildquelle: Google 2019).

In einem Umkreis von weniger als 200 m um den Emissionspunkt befinden sich Bäume vor allem im Westen, Südwesten und Südosten. Im Norden und Nordosten tangiert ein Waldstreifen den 200 m-Abstand. Dieser Waldstreifen liegt geografisch deutlich höher als der Emissionspunkt.

Die tatsächliche Emissionshöhe beträgt 11 m über Gelände. Diese Bedingungen weichen von den Modellannahmen der AVV, die eine Emission in (weitgehend) ebenem Gelände mit einer Emissionshöhe von mehr als 20 m zugrunde legen, ab. Um eine erste Vorstellung von möglichen Effekten zu erhalten, wird das vereinfachte Ausbreitungsmodell der AVV trotzdem genutzt.

Die vereinfachte Formel zur Langzeitausbreitung lautet nach AVV:

$$\bar{C}_i^\tau(x) = \chi_i^\tau(x) * \dot{A} \quad (1)$$

mit:

$\bar{C}_i^\tau(x)$: Aktivitätskonzentration in der Luft in Bq/m³ im Sektor i, im Abstand x in m und im Zeitraum $\tau = G$ für das Gesamtjahr oder $\tau = S$ für das Sommerhalbjahr (April bis Oktober)

$\chi_i^\tau(x)$: Langzeitausbreitungsfaktor im Sektor i, im Abstand x in m für den Zeitraum $\tau = G$ oder S

\dot{A} : Quellstärke in Bq/s.

Die mittlere ¹⁴C-Ableitung \dot{A} im Jahr 1982 errechnet sich zu ca. 470 Bq/s (15E+9 Bq/3,15E+7s).

Der sektorabhängige Langzeitausbreitungsfaktor $\chi_i(x)$ wird berechnet mit:

$$\chi_i^\tau(x) = p_i * \chi^\tau(x) \quad (2)$$

mit:

p_i : Häufigkeit der Windrichtung eines 30° Sektors i, wobei gilt: $\sum p_i = 1$

$\chi^\tau(x)$: Langzeitausbreitungsfaktor abhängig von der Quelledistanz, Emissionshöhe für einen 30° Sektor. Ablesewert aus einem Diagramm (Abbildung 6) als χ^G . Für $\tau = S$ gilt $\chi^S = 2\chi^G$.

Für $\chi(x)$ ist aus Abbildung 6 für einen Abstand von 200 m und einer Emissionshöhe von 20 m ein Wert von $4,5E-5 \text{ s/m}^3$ abzulesen.

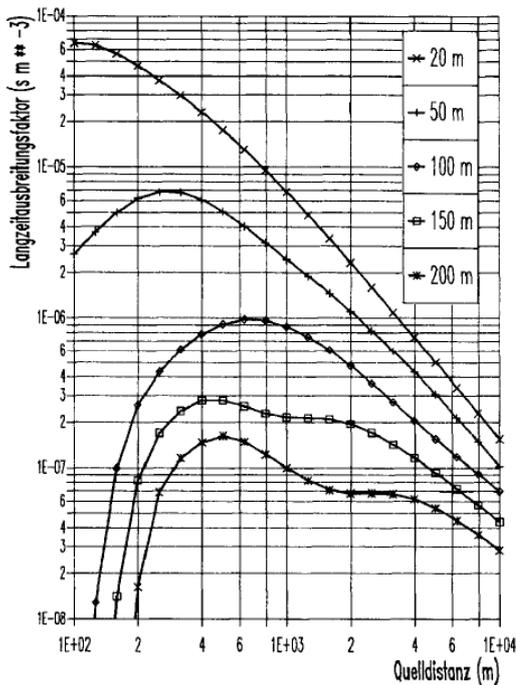


Abbildung 6: Langzeitausbreitungsfaktor $\chi(x)$ für verschiedene effektive Emissionshöhen, Windrichtungshäufigkeit 100 % im 30°-Sektor. 1969-1986 [13].

Für eine Auswertung der Windrichtungsverteilung war eine Windrose mit 16 Sektoren ($22,5^\circ$ Klassen) im Internet (s.u.) verfügbar (Abbildung 7). Diese Windrose mittelt Daten aus 30 Jahren und ist für einen Zeitraum, der inzwischen 50 Jahre zurückliegt, im Rahmen der hier vorgenommenen groben Abschätzungen als ausreichend zu bewerten. Sie zeigt eine Hauptwindrichtung aus WSW mit etwa 1200 Std. im Jahr mit einer häufigsten Windgeschwindigkeit um ca. 20 km/h. Die angrenzenden Sektoren W und SW sind mit Zeiten von ca. 1100 Std. (W) und ca. 1050 Std. (SW) von ähnlicher Dauer. Hochgerechnet auf einen 30° Sektor aus der Hauptwindrichtung WSW ergibt sich eine Dauer dieser Windrichtung von $1200 + 0,125 (1100 + 1050) = 1470$ Std. bzw. ein p_i von ca. 16,8 %.

Der so nach Gleichung (2) errechnete maximale $\chi_i(200m)$ beträgt $0,76E-5 \text{ s/m}^3$. Der entsprechende Wert für das Sommerhalbjahr beträgt $1,51E-5 \text{ s/m}^3$.

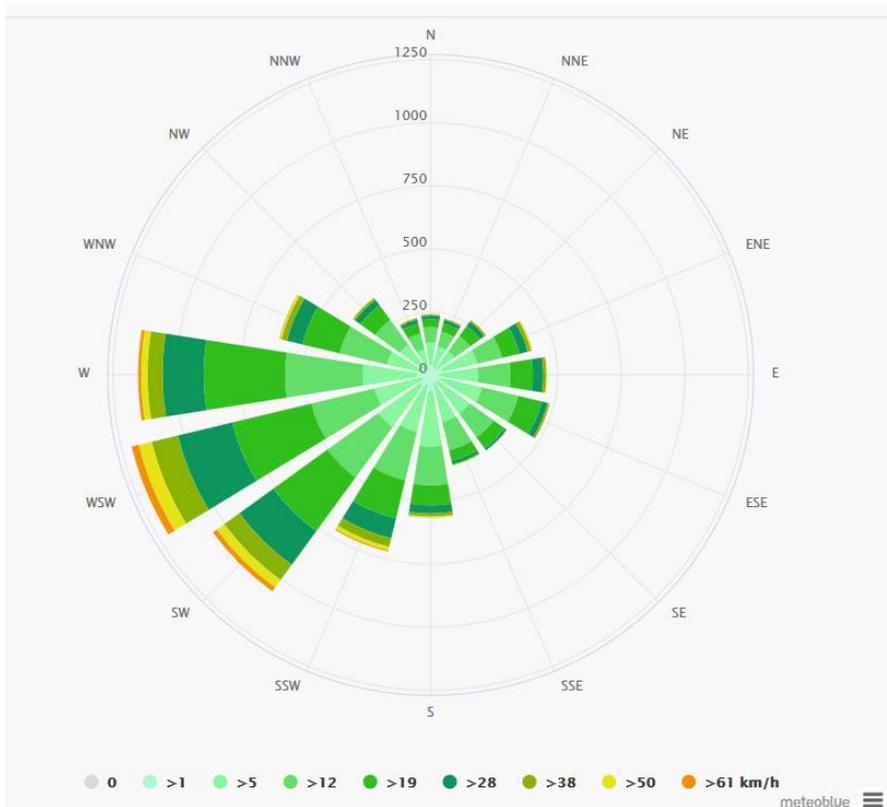


Abbildung 7: Windrose für den Standort Asse, Wettermodell mit einer Auflösung von 30x30 km über 30 Jahre gerechnet Quelle: www.meteoblue.com.

Mit Gleichung (1) errechnen sich ^{14}C -Aktivitätskonzentration in der Luft im Hauptwindrichtungssektor WSW von:

$$\bar{c}_{WSW}^G(200m) = 0,76 \cdot 10^5 \frac{s}{m^3} * 470 \frac{Bq}{s} = 3,57 \frac{mBq}{m^3}$$

$$\bar{c}_{WSW}^S(200m) = 1,51 \cdot 10^5 \frac{s}{m^3} * 470 \frac{Bq}{s} = 7,10 \frac{mBq}{m^3}$$

Diese Werte liegen deutlich unterhalb des im Kapitel Fehler: Verweis nicht gefunden abgeschätzten Hintergrundwertes von ca. 60 mBq/m³. Sie zeigen, dass die ^{14}C -Emissionen der Schachanlage bereits in Entfernungen von 200 m vom Diffusor den allgemeinen Wert von ^{14}C in der Luft nur wenig verändern. In anderen Sektoren als dem Hauptwindrichtungssektor muss mit noch deutlich geringeren Konzentrationen gerechnet werden.

Sofern die Hauptwindrichtung im Nahbereich der Schachanlage Asse II nicht durch die Tallage des Diffusors wesentlich beeinflusst wird, ist die Jahresemission 1982 von 15 GBq nur mit sehr präzisen Messungen zu erkennen. Legt man den für 1982 aus Abbildung 2 ablesbaren ^{14}C -Gehalt von ca. 125 pMC zugrunde, dann ist als Hintergrundwert in Baumringen mit ca. 280 Bq/kg C zu rechnen. In Hauptwindrichtung

könnte mit etwa 10 % höheren Werten, also 300 Bq/g C – 310 Bq/g C gerechnet werden.

Die AMS-Methode ist allerdings in der Lage, eine reine Messunsicherheit von weniger als 0,2 % zu erreichen. Bei einem Hintergrundwert von 280 Bq/kg C entspricht dies einer Genauigkeit von ca. 0,5 Bq/g C. Diese Genauigkeit reicht zunächst aus, um ein Signal in der abgeschätzten Höhe zu ermitteln. Allerdings ist damit zu rechnen, dass die lokalen Unterschiede in den Baumringen zu einer Unsicherheit des Bezugswertes führen, die deutlich größer ist als die messtechnischen Unsicherheiten.

Unter den lokalen Bedingungen sind Bäume innerhalb einer kurzen Distanz von 100 m nur im Westen, also entgegen der Hauptwindrichtung des Emissionspunktes vorhanden. Ob unter den örtlichen Bedingungen die geringere Entfernung den Einfluss der Windverteilung kompensiert, kann derzeit nicht beurteilt werden. Dazu sind genauere Ausbreitungsmodelle nötig.

4. Fazit

Die Untersuchung von Baumringen ist eine geeignete Methode, um frühere ¹⁴C-Emissionen aus der Schachanlage Asse II zu messen. Die Abschätzungen in diesem Bericht zeigen, dass es grundsätzlich möglich sein sollte, auswertbare Messsignale zu erhalten.

Eine solche Untersuchung könnte helfen, Vermutungen über die in den 1960er und 1970er Jahren im Zusammenhang mit der damaligen Einlagerung radioaktiver Abfälle erfolgten Freisetzungen einzugrenzen. Eine Kenntnis der damaligen Emissionen könnte auch als Planungsgrundlage zum Strahlenschutz bei der Rückholung dienen, da bei einer aktiven Handhabung der Abfälle mit ähnlichen Emissionen gerechnet werden muss.

Um eine solche Untersuchung durchzuführen, sind nach Einschätzung der AGO mindestens 3 hinreichend alte Bäume mit einem Alter von ca. 70 Jahren erforderlich (eine Referenz aus Waldgebieten im Westen des Asse-Höhenzuges, zwei in möglicherweise beeinflussten Bereichen um die Schachanlage Asse II). Der Untersuchungsumfang kann beim derzeitigen Stand der Kenntnisse auf Baumringe aus den Jahren 1965 – 1985 begrenzt werden. Zusätzlich zur ¹⁴C-Bestimmung ist eine unabhängige Dendrochronologie nötig, um Jahresringe absoluten Jahreszahlen

zuzuordnen sowie eine darauf basierende Auswahl der zu analysierenden Jahresringe aus dem Zeitraum 1965 – 1985 vornehmen zu können.

Alle hier auf der Grundlage der Überwachungsergebnisse der GSF vorgenommenen Abschätzungen lassen den Schluss zu, dass eine Erhöhung der ^{14}C -Gehalte durch Ableitungen klein im Vergleich zum natürlichen (allerdings durch Kernwaffentests erhöhten) ^{14}C -Niveau war. Bei einem Dosisbeitrag von natürlichem ^{14}C von etwa $12\ \mu\text{Sv}$ im Jahr führt eine Erhöhung um 5 % bei ausschließlichem Verzehr lokal angebaute Nahrung zu einer zusätzlichen Dosis von (rechnerisch) $0,6\ \mu\text{Sv}$. Dieser Wert ist für sich genommen klein. Da allerdings ^{14}C nicht das einzige Radionuklid ist, welches bei Ableitungen freigesetzt wird, darf dieser Wert nicht isoliert bewertet werden.

Literaturverzeichnis

- [1] Stippler, R. & Kleinmann, H. (1977): Umgebungsüberwachung im Bereich des Salzbergwerks Asse. Zusammengefasster Bericht 1966 – 1976. Bericht GSF-T71. April 1977
- [2] AGO (2019): AGO-Diskussionspapier „Anforderungen an die Umgebungsüberwachung der Schachanlage Asse II“. Abgestimmte Endfassung vom 30.04.2019.
- [3] Gerstmann, U., Meyer, H. & Tholen, M. (2002): Bestimmung des nuklidspezifischen Aktivitätsinventars der Schachanlage Asse. Abschlussbericht. August 2002. GSF Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit.
- [4] TÜV (2013): Schachanlage Asse II: Bericht zur Überprüfung des Abfallinventars. 3. Einzelbeauftragung: Überprüfung der sonstigen Abfalldaten. Bericht ETS4-43/2011, Rev. 1, November 2013.
- [5] GSF (2008): Jahresberichte zu Strahlenschutz und Umgebungsüberwachung im Bereich der Schachanlage Asse - 1977 bis 2008. Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH, München (2008: Asse GmbH)
- [6] Schulz, H. & Lämmel, A. (2021): Jahresbericht 2020. Radiologische Umgebungsüberwachung der Schachanlage Asse II der unabhängigen Messstelle. IAF Radioökologie GmbH. 14.06.2021

- [7] Stenström, K. E., Skog, G., Georgiadou, E., Genberg, J. & Johansson, A. (2011): A guide to radiocarbon units and calculations. Lund University, Department of Physics, internal report, 1-17.
- [8] Meijer, H. A. J., Pertuisot, M. H. & van der Plicht, J. (2006): High-accuracy ^{14}C measurements for atmospheric CO_2 samples by AMS. *Radiocarbon*, 48(3): 355-372.
- [9] Bonani, G., Beer, J., Hofmann, H., Synal, H. A., Suter, M., Wölfli, W., Pfeleiderer, C., Kromer, B., Junghans, C. & Münnich, K. O. (1987): Fractionation, precision and accuracy in ^{14}C and ^{13}C measurements. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 29(1-2): 87-90.
- [10] Suter, M., Balzer, R., Bonani, G., Hofmann, H., Morenzoni, E., Nessi, M., Wölfli, W., Andree, M., Beer, J. & Oeschger, H. (1984): Precision measurements of ^{14}C in AMS—some results and prospects. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 5(2): 117-122.
- [11] Goodsite, M. E., Rom, W., Heinemeier, J., Lange, T., Ooi, S., Appleby, P. G., Shotyk, W., W O van der Knaap, Lohse, C. & Hansen, T. S. (2001): High-resolution AMS ^{14}C dating of post-bomb peat archives of atmospheric pollutants. *Radiocarbon*, 43(2B): 495-515.
- [12] <http://www.icos-infrastruktur.de/icos-/komponenten/labore/radiokohlenstofflabor-heidelberg/> (abgerufen am 19.12.2019).
- [13] GAW (2003): Brief des Deutschen Wetterdienstes, Nr. 19: CO_2 Messungen an den GAW-Stationen Zugspitze und Schauinsland. Global Atmosphere Watch (GAW), 2003
- [14] Mazeika, J., Petrosius, R., & Pukiene, R. (2007): Carbon-14 in tree rings in the vicinity of Ignalina Nuclear Power Plant, Lithuania. *Geochronometria*, 28(1): 31-37.
- [15] Vogel, F., Crann, C. & Pisaric, F.J. (2022): Tracking local radiocarbon releases from nuclear power plants in southern Ontario (Canada) using annually-dated tree-ring records. *Anthropocene*, 38: 100338.

- [16] Wang, Z., Xiang, Y., & Guo, Q. (2012): ^{14}C levels in tree rings located near Qinshan Nuclear power Plant, China. *Radiocarbon*, 54(2): 195-202.
- [17] AVV (2012): Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 47 Strahlenschutzverordnung: Ermittlung der Strahlenexposition durch die Ableitung radioaktiver Stoffe aus Anlagen oder Einrichtungen, Bundesanzeiger BAnz AT 05.09.2012 B1, Herausgegeben vom Bundesministerium der Justiz.
- [18] UNSCEAR (2000): Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR) 2000 Report to the General Assembly, New York.
- [19] Hua, Q. & Barbetti, M. (2004): Review of Tropospheric Bomb ^{14}C Data for Carbon Cycle Modeling and Age Calibration Purposes. *Radiocarbon*, 46(3): 1273–1298