

Tagungsbeitrag zu: Jahrestagung der
DBG – Kom. I
Titel der Tagung: Böden – eine
endliche Ressource
Veranstalter: DBG, September
2009, Bonn
Berichte der DBG (nicht begutachtete
online Publikation)
<http://www.dbges.de>

Radionuklidfreisetzung aus Kraftwerksschutt – Simulation von Elutionsversuchen unter transienten Randbedingungen

Tobias L. Hohenbrink, Sascha C. Iden und
Wolfgang Durner

Zusammenfassung

Für die umweltverträgliche Entsorgung des beim Rückbau kerntechnischer Anlagen anfallenden Betonbruchs werden Prognosemodelle des Radionuklidaustrags benötigt. Im Labor wurden Perkolationsversuche mit radioaktiv kontaminiertem Bauschutt durchgeführt und Messreihen der wichtigsten bodenhydraulischen Größen sowie wichtige Stofftransportparameter ermittelt. Erstes Teilziel des laufenden Forschungsvorhabens AuRa war die gekoppelte Modellierung der hydraulischen Prozesse und des nichtreaktiven Stofftransports. Die Auswertung der resultierenden Daten und die Überprüfung der Korrektheit der Prozesskenntnisse erfolgte mit der Methode der inversen Modellierung.

Der Wasserfluss konnte mit der Richardsgleichung unter Verwendung des van Genuchten-Mualem-Modells der hydraulischen Funktionen zufriedenstellend beschrieben werden. Das Durchbruchverhalten eines konservativen Tracers zeigte eindeutig auf, dass präferenzielle Flüsse auftraten. Diese konnten mit dem Mobil-Immobil-Modell zutreffend modelliert werden.

Institut für Geoökologie,
Technische Universität Braunschweig
Langer Kamp 19c, 38106 Braunschweig
t.hohenbrink@tu-bs.de

Schlüsselwörter

Instationäre Perkolationsversuche, Stofftransport, hydraulische Eigenschaften, Radionuklide, inverse Modellierung, Betonbruch

Einleitung

Der für die Zukunft zu erwartende Rückbau stillgelegter kerntechnischer Anlagen wird zum Anfall signifikanter Mengen von schwach mit Radionukliden kontaminiertem Bauschutt führen. Eine Ausbringung dieser porösen Abfallstoffe in die Umwelt erfordert eine sorgfältige Risikoanalyse im Hinblick auf die Schutzgüter Boden, Wasser und Mensch. In dem Projekt AuRa werden modellgestützte Aussagen über die Umweltrisiken der Deponierung dieser Materialien getroffen. Hierzu werden transiente Stofftransportexperimente an Versuchsbehältern im Labor durchgeführt und mit Methoden der Stofftransportsimulation in porösen Medien und Parameteridentifikationstechniken ausgewertet. Erstes Teilziel des Projekts war die Erstellung eines FEM-Modells zur Beschreibung der Hydraulik und des nichtreaktiven Stofftransportes in den Versuchssystemen.

Material und Methoden

Abb. 1 zeigt den Aufbau der acht Versuchscontainer, die mit Bauschutt der Kornfraktionen < 20 mm oder < 45 mm gefüllt wurden. Hierbei kamen

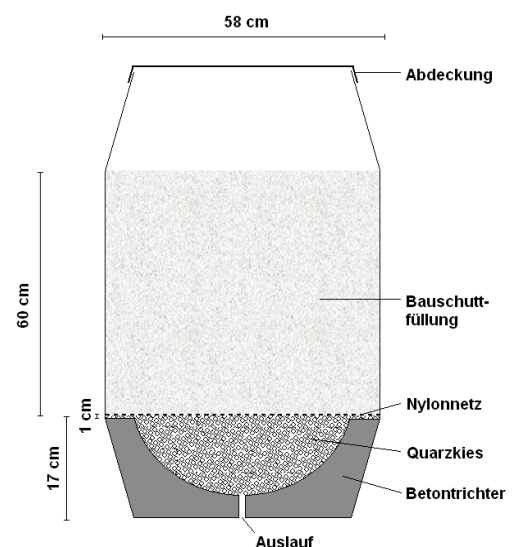


Abb. 1: Aufbau eines Versuchscontainers.

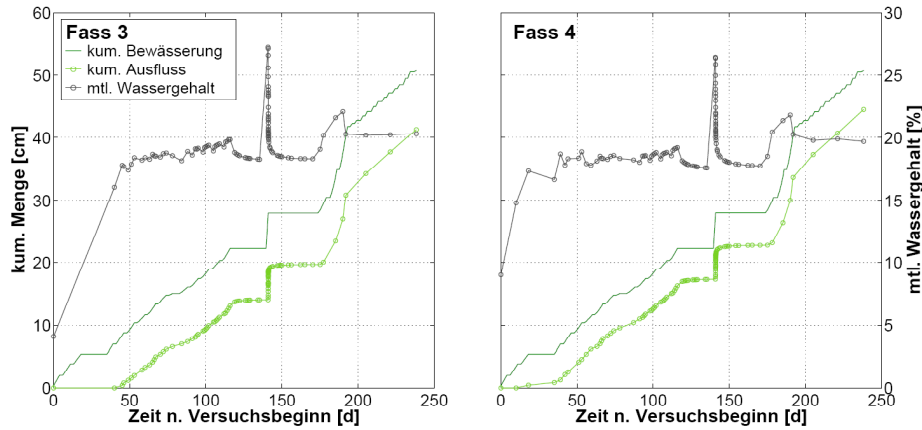


Abb. 2: Wasserbilanzen und gemittelte Wassergehalte der Versuchssysteme 3 und 4.

unterschiedliche Betonarten (Strahlenschutz-, Normalbeton und Zementmörtel) zum Einsatz, die künstlich entweder oberflächlich oder homogen mit den Radionukliden Uran, Thorium, Iod und Radium kontaminiert wurden. Über einen Zeitraum von zunächst einem Jahr wurden die Substrate mit variierenden Intensitäten einschließlich Flussunterbrechungen berechnet. Das Perkolat wurde quantitativ erfasst und auf Nuklidkonzentrationen untersucht. In den Fässern 3 und 4 (beide

Strahlenschutzbeton, < 20 mm) wurden in drei Tiefen die Matrixpotenziale gemessen. Als hydraulischer Tracer wurde einmalig Perchlorat mit dem Bewässerungswasser aufgegeben. Für die Simulation der hydraulischen Prozesse haben wir mit dem Softwarecode HYDRUS-1D (Šimůnek et al., 1998) die Richardsgleichung unter Verwendung des van Genuchten-Mualem (VGM) Modells (van Genuchten, 1980) gelöst. Die sechs VGM-Parameter wurden mittels globalen inversen Schätzverfahren (SCE-UA Algorithmus von Duan et al., 1992) bestimmt, wobei Zeitreihen der kumulativen Ausflüsse Q_{kum} und Matrixpotenziale h sowie ein Wert für den profilgemittelten Wassergehalt θ_{mtl} in jede Parameterbestimmung eingegangen sind. Die verwendeten Datensätze bezogen sich auf einen Zeitraum (112 d bis 170 d nach Versuchsbeginn), in dem stark variierende Wassergehalte in den Substraten auftraten.

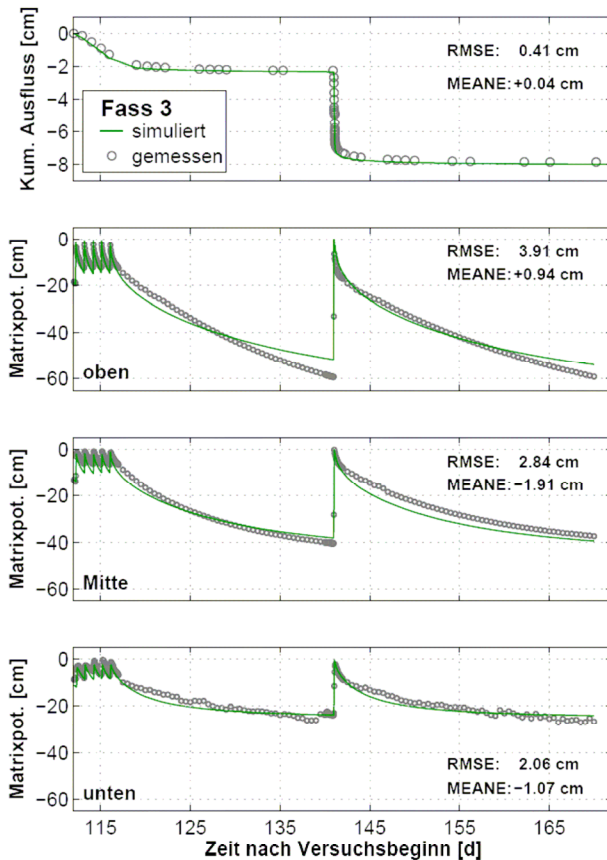


Abb. 3: Gemessene und simulierte Daten in dem Zeitraum, der für die Parameterschätzung benutzt wurde.

Um das resultierende Modell zu validieren, wurden die hydraulischen Prozesse für einen unabhängigen Zeitraum (56 d bis 112 d nach Versuchsbeginn) modelliert und mit den Messdaten verglichen. Auf Basis des hydraulischen Modells wurden im Anschluss die Tracerdurchbrüche mit dem Mobil-Immobil-Modell (MIM) simuliert. Die Stofftransportparameter wurden mit dem Levenberg-Marquardt-Algorithmus (Marquardt, 1963) anhand der Tracerkonzentrationen im Perkolat geschätzt. Die Güte der Modellanpassung an die Messdaten wurde mit den Fehlermaßen *root mean square error* (RMSE) und *mean error* (MEANE) quantifiziert.

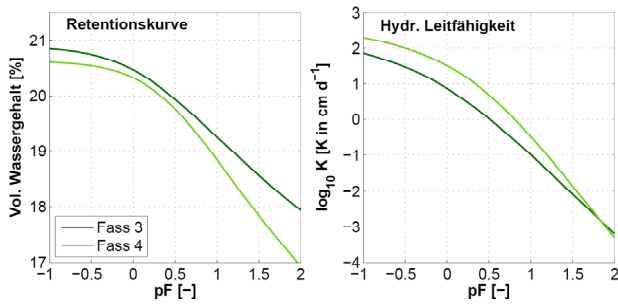


Abb. 4: Durch inverse Modellierung ermittelte bodenhydraulische Eigenschaften. Links: Retentionskurve (van Genuchten). Rechts: Leitfähigkeitsfunktion (van Genuchten / Mualem).

Ergebnisse und Diskussion

Abb. 2 zeigt die Wasserbilanzen der beiden Versuchssysteme, in denen die bodenhydraulischen Messungen durchgeführt wurden. Der profilgemittelte Wassergehalt (grau) ergibt sich aus der Differenz zwischen berechneter (dunkelgrün) und ausgeflossener Menge (hellgrün). Die Unterschiede in den Anfangswassergehalten von 4.2 % (Fass 3) und 9 % (Fass 4) wurden durch die Differenz der Ausflüsse kompensiert, sodass sich in beiden Fässern sehr ähnliche profilgemittelte Wassergehalte einstellen. Die grauen Kreise in Abb. 3 stellen die Messwerte dar, die für die Identifikation der VGM-Parameter verwendet wurden. Aus der Optimierung resultierten die in Abb. 4 gezeigten hydraulischen Funktionen, mit

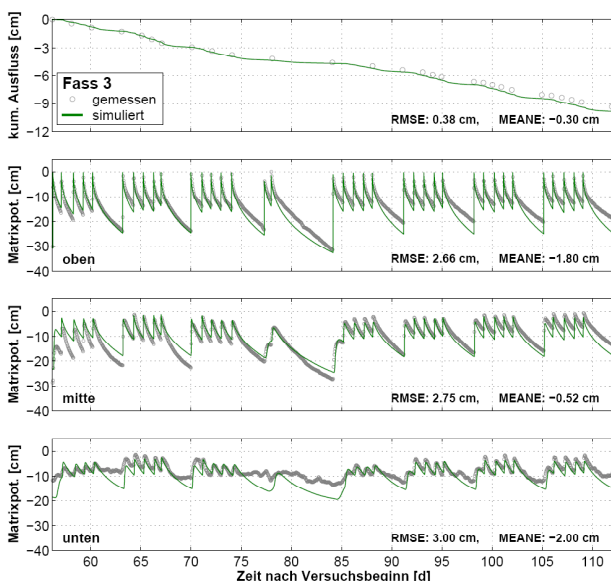


Abb. 5: Validierung des hydraulischen Modells und der bodenhydraulischen Eigenschaften anhand unabhängiger Daten.

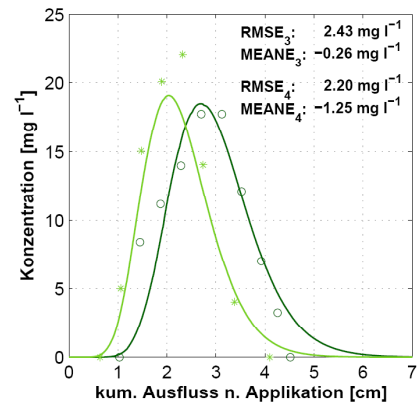


Abb. 6: Messwerte (Symbole) und mit MIM-Modell simulierte Verläufe (Linien) des Tracerdurchbruchs. Die geschätzten Dispersionslängen betragen 1.92 cm für Fass 3 (dunkelgrün) und 2.19 cm für Fass 4 (hellgrün).

denen sowohl die Ausflussdynamik, als auch die Zeitreihen der Matrixpotenziale in den drei Messtiefen simuliert werden können (grüne Linien in Abb. 3).

Mit der Modellvalidierung kann gezeigt werden, dass die effektive Parametrisierung geeignet ist um die Verläufe der Größen Q_{kum} und h in den drei Messebenen (in Abb. 5 exemplarisch für Fass 3) zu prognostizieren. Die stetig ansteigende Überschätzung des kumulierten Ausflusses ist möglicherweise darauf zurückzuführen, dass in den Experimenten trotz Abdeckung Wasser aus den Fässern verdunstet ist. Der Verdunstungsprozess wurde in den Simulationen jedoch bislang nicht berücksichtigt.

Der Tracerdurchbruch hat gezeigt, dass der Stofftransport in den Schüttungen präferenziell erfolgt. Nur 26 % (Fass 3) bzw. 20 % (Fass 4) des im System befindlichen Wassers sind für den Stofftransport relevant. Wie in Abb. 6 gezeigt wird, konnte der Tracerdurchbruch mit dem MIM-Ansatz erfolgreich beschrieben werden.

Abb. 7 zeigt die Ausflusskonzentrationen und kumulativ ausgetragenen Massen der Elemente Uran, Thorium und Iod sowie des Sulfats für die Fässer 3 und 4. Die Konzentrationsverläufe schwanken teilweise stark zwischen Einzelproben, zeigen im Vergleich zwischen den beiden Fässern jedoch ähnliche Muster. Der auf die Kontaminationsmasse normierte Nuklidaustrag aus dem oberflächlich kontaminierten Bauschutt ist gegenüber dem Austrag aus dem homogen kontaminierten Substrat deutlich erhöht.

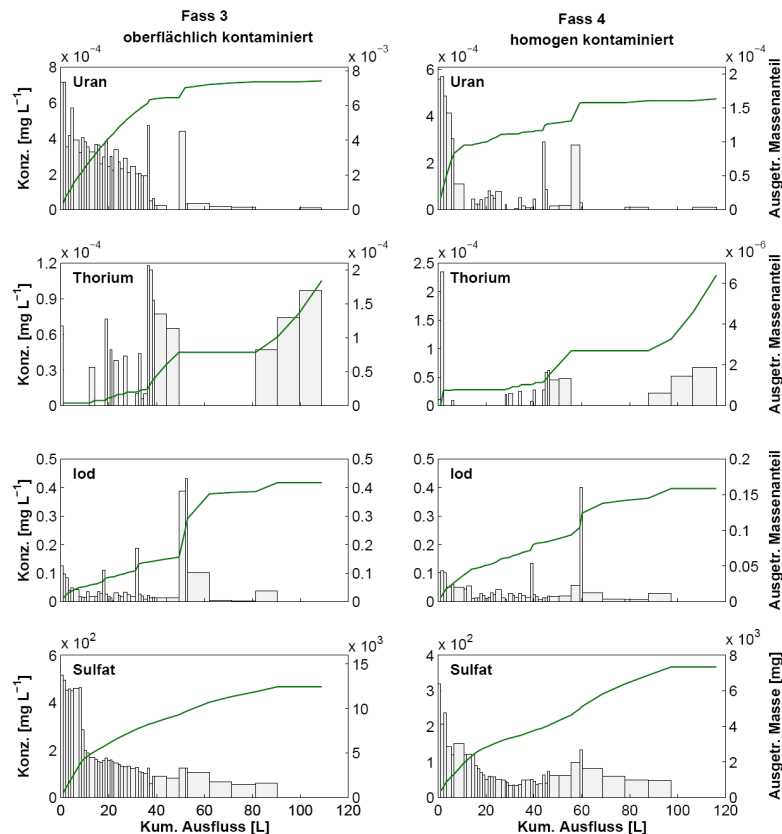


Abb. 7: Radionuklid- und Sulfataustrag aus den Fässern 3 und 4. Gemessene Konzentration im Eluat (Balken, die Balkenbreite gibt das jeweilige Probenvolumen an). Ausgetragene Massen (grüne Linie, kumuliert). Die Massen der Elemente U, Th und I sind auf die Kontaminationsmasse normiert.

Fazit und Ausblick

Die hydraulischen Prozesse in den Versuchscontainern können mit den ermittelten Parametern des VGM-Modells abgebildet werden. Weil in den Systemen präferenzzieller Fluss auftritt, muss für die Stofftransportmodellierung mindestens der MIM-Ansatz verwendet werden. Der Transport eines idealen Tracers konnte mit dem MIM-Ansatz beschrieben werden. Zukünftige Arbeiten im Projekt AuRa sind die inverse Modellierung des reaktiven Stofftransportes in den Versuchssystemen. Die auf diese Weise gewonnenen Transportparameter werden für die Modellierung von Szenarien der Nuklidfreisetzung unter Freilandbedingungen verwendet.

Danksagung

Wir danken unserem Projektpartner, der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) in Braunschweig für die Bereitstellung der Labordaten und dem Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) für die Förderung des Projektes AuRa.

Literatur

- Duan, Q.; Sorooshian, S. und Gupta, V. (1992): Effective and efficient global optimization for conceptual rainfall-runoff models, *Water Resources Research*, 28, 1015-1031.
- Marquardt, D. W. (1963): An algorithm for least-squares estimation of non-linear parameters, *SIAM Journal of Applied Mathematics*, 11, 431-441.
- Šimůnek J.; M. Šejna und van Genuchten, M. Th. (1998): The HYDRUS-1D Software Package. U.S. Salinity Laboratory, Riverside, California.
- van Genuchten, M. Th. (1980): A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils, *Soil Science of America Journal*, 44, 892-898.