

**Zwei Perspektiven auf die radioökologische
Expositionsabschätzung bei der Endlagerung hochradioaktiver
Abfälle**

Der Fakultät für Mathematik und Physik
der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover

zur Erlangung des Grades der
Doktorin der Naturwissenschaften
Dr. rer. nat.

vorgelegte Dissertation von
Dipl.-Geol. Claudia König

2019

Referent: Prof. Dr. C. Walther

Korreferent: Prof. Dr. G. Steinhauser

Korreferent: PD Dr. A. Brunnengräber

Korreferent: Prof. Dr. K.-J. Röhlig

“So eine Arbeit wird eigentlich nie fertig;
man muss sie für fertig erklären,
wenn man nach Zeit und Umständen das Möglichste gethan hat.”
Johann Wolfgang Goethe, Caserta, den 16. März 1787

Zusammenfassung

Die radioökologische Expositionsabschätzung für die Bevölkerung ist ein wichtiger Bestandteil der Langzeitsicherheitsanalyse für ein Endlager für hochradioaktive Abfälle. Für ein Endlager im geologischen Untergrund stellt der Transfer von Radioisotopen mit dem Grundwasser in die Biosphäre einen wichtigen Expositionspfad für den Störfall dar. Mit einem interdisziplinären Arbeitsansatz werden in dieser Arbeit zwei Aspekte der radioökologischen Expositionsabschätzung näher untersucht: Zum einen werden die Prozesse, die beim Übergang des naturwissenschaftlichen Abschätzungsmodells hin zum Unterstützungsinstrument für behördliche Entscheidungen stattfinden, näher beleuchtet. Zum anderen werden Prozesse in der Biosphäre untersucht, die zur Rückhaltung von Radioisotopen im Boden führen können und folglich eine Rolle für den Transfer der Radioisotope hin zum Menschen spielen.

Der erste Aspekt wurde mittels leitfadengestützter Interviews mit Experten aus den Bereichen Expositionsabschätzung, Endlagerung radioaktiver Abfälle und/oder Politikberatung im Strahlenschutz untersucht. Die Interviews wurden in Anlehnung an die qualitative Inhaltsanalyse ausgewertet. Zur Untersuchung des zweiten Aspektes wurden experimentelle Untersuchungen zur Sorption von ^{129}I od, einem aufgrund seiner hohen Halbwertszeit und hohen Mobilität relevanten Radioisotop, durchgeführt. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden Sorptionsprozesse an Referenzböden mittels Batchversuchen, Säulenversuchen und sequentieller Extraktion näher untersucht.

Die Auswertung der leitfadengestützten Interviews ergab Hinweise auf drei besondere Spannungsfelder beim Übergang der Expositionsabschätzungsverfahren hin zum Regulierungsinstrument: 1) Die Rechtssicherheit der behördlichen Entscheidung muss durch das Ergebnis des Abschätzungsverfahrens gewährleistet werden. Dazu werden zumeist konservative Parameter-Annahmen eingesetzt. Derartige konservative Annahmen sind allerdings für den Zeitraum der Sicherheitsbetrachtungen bei der Endlagerung von einer Million Jahren problematisch. 2) Die Risikokommunikation zu den Abschätzungsergebnissen wird als große Herausforderung beschrieben. 3) Der Prozess der Weiterentwicklung radioökologischer Abschätzungsverfahren während laufender Genehmigungsverfahren bedarf der regulatorischen Implementierung.

Die Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen zur Sorption von Iod im Boden zeigten, dass für 4 Referenzböden die weite Spannweite der Verteilungskoeffizienten in der Literatur auf Werte von 0,23 bis 91 L kg^{-1} eingeengt werden konnte. Darüber hinaus wurde deutlich, dass die Sorption von Iod im Boden konzentrationsabhängig verläuft und unterschiedliche Untersuchungsmethoden einen Einfluss auf den Wert des Verteilungskoeffizienten haben.

Die gemeinsame Betrachtung der beiden Untersuchungsperspektiven führt zu der Einschätzung, dass die Ergebnisse einer radioökologischen Expositionsabschätzung infolge der komplexen Prozesse in der Biosphäre für den Sicherheitsbetrachtungszeitraum eines Endlagers nicht alleine durch Zahlenwerte dargestellt werden können. Eine öffentliche Diskussion zum Umgang mit den Ungewissheiten hinsichtlich der Prognostizierbarkeit der Exposition erscheint notwendig und empfehlenswert.

Schlagworte: Expositionsabschätzung, Endlagerung, Regulierung, Iod im Boden

Abstract

The assessment of radiological exposure of the public is an important part of the long-term safety assessment for the final disposal of high level radioactive waste. An important aspect of radio-ecological assessment regarding a repository in geological formations is the transfer of radio-isotopes with groundwater into the biosphere. This study examines two aspects of dose assessment with an interdisciplinary two-pronged approach: On the one hand the transition from a scientific model to a regulatory instrument, which supports decision-making, is studied. On the other hand, processes in the biosphere, which lead to retardation of radio-isotopes in soil and which have therefore an influence on the transfer to humans, are investigated.

The science-policy transition of a dose assessment model was examined conducting guideline-based interviews with experts in the field of either dose assessment, final disposal and/or policy-making in radiation protection. The interviews were analyzed by quantitative content analysis. Regarding the examination of sorption processes of radio-isotopes in soil, experimental studies with ^{129}I in German reference soils were conducted, namely batch experiments, column experiments and sequential extraction.

Results of the first perspective of the study indicate three areas of conflict regarding the transition of dose assessment models: 1) Results from dose assessment modelling must provide legal security for regulatory decision-making. Therefore, conservative assumptions regarding modelling parameters are used. For the period of one million years to be considered in safety assessments such assumptions need to be taken into account. 2) Risk communication of dose assessment results is named a huge challenge by the experts. 3) During licensing procedures for nuclear disposal sites, which can take decades, ongoing development of assessment models needs regulatory implementation.

The results regarding sorption of iodine in soil show, that the wide variety of distribution coefficients in literature could be narrowed down to values ranging from 0,23 to 91,0 L kg⁻¹. Furthermore, it became obvious that sorption of iodine in soil depends on concentration and that different experimental methods influence the values of the distribution coefficients.

The combined view in both investigation perspectives leads to the assumption that numbers alone are not suited to represent results from radio-ecological dose assessment for final disposal, given the complex processes in the biosphere and a period of one million years for safety assessment. A public discussion on how to deal with the uncertainty regarding predicted dose seems highly necessary and useful.

Keywords: Dose assessment, final disposal, regulation (policy making), iodine in soil

Inhaltsverzeichnis

Vorwort	1
a) Über die Forschungsplattform ENTRIA	1
b) Sprachlicher Ausdruck	2
c) Dank	3
1 Einleitung	5
1.1 Endlagerung hochradioaktiver Abfälle.....	7
1.2 Expositionsabschätzung im Strahlenschutz.....	8
1.2.1 Expositionsmodellierung im regulativen Strahlenschutz: Die Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum § 47 der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV)	11
1.3 Sorption und das K_d -Konzept im Rahmen der radioökologischen Expositionsabschätzung	12
1.4 Expositionsabschätzung bei der Endlagerung – Sicherheitsnachweis und Langzeitsicherheitsanalyse	16
1.4.1 Rechtliche Situation, Darlegung im Standortauswahlgesetz und in den bisherigen Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung Wärme entwickelnder radioaktiver Abfälle .	20
1.5 Motivation und Ziel der Arbeit.....	23
2 Erste Perspektive: Übergang des naturwissenschaftlichen Abschätzungsmodells zum regulatorischen Instrument	27
2.1 Einführung und Fragestellung	27
2.2 Methode.....	29
2.2.1 Qualitative leitfadengestützte Interviews	29
2.2.2 Befragte Personen.....	30
2.2.3 Durchführung und Ablauf der Interviews	32
2.2.4 Auswertung der Interviews.....	33
2.3 Ergebnisse	34
2.3.1 Anforderungen an die Rechtssicherheit: Problematik der konservativen Annahmen gegenüber realistischer Annahmen bei der Expositionsabschätzung	35
2.3.2 Problematik der Risikokommunikation zur Expositionsmodellierung.....	36
2.3.3 Dilemma der Weiterentwicklung radioökologischer Expositions-abschätzungsverfahren während laufender behördlicher Genehmigungsverfahren.....	37
3 Zweite Perspektive: Radioökologische Parameter zu Transferprozessen von ^{129}I od im Boden..	38
3.1 Einführung.....	38
3.1.1 ^{127}I od und ^{129}I od in der Umwelt.....	38
3.1.2 Sorptionsprozesse von Iod im Boden	44
3.1.3 Fragestellung	45
3.2 Experimentelles Vorgehen	47

3.2.1 Untersuchte Böden	47
3.2.2 Synthetisches Bodenwasser	50
3.2.3 Batchversuche	51
3.2.4 Säulenversuche	53
3.2.5 Sequentielle Extraktion	56
3.2.6 Probenaufbereitung und Messtechnik	58
3.3 Ergebnisse	59
3.3.1 Batchversuche	59
3.3.2 Säulenversuche	63
3.3.3 Sequentielle Extraktion	68
3.4 Zusammenfassung der Ergebnisse	72
4 Diskussion der beiden Untersuchungsperspektiven und Schlussfolgerungen	73
4.1 Diskussion zu den Problemfeldern der radioökologischen Expositions-abschätzung beim Übergang zu einem regulatorischen Instrument	73
4.1.1 Anforderungen an die Rechtssicherheit: Problematik der konservativen Annahmen gegenüber realistischer Annahmen bei der Expositions-abschätzung	73
4.1.2 Problematik der Risikokommunikation zur Expositionsmodellierung	75
4.1.3 Dilemma der Weiterentwicklung radioökologischer Expositions-abschätzungsverfahren während laufender behördlicher Genehmigungsverfahren	78
4.2 Diskussion der Ergebnisse der Untersuchungen zu Parametern der Iodmigration in Böden	79
4.2.1 Spannbreite der Verteilungskoeffizienten für Iod im Boden	80
4.2.2 Unterschiede im Sorptionsverhalten für unterschiedliche Böden	81
4.2.3 Einfluss unterschiedlicher Untersuchungsmethoden auf die Bestimmung der Verteilungskoeffizienten	83
4.2.4 Zusammenfassung der Diskussion der experimentellen Untersuchungen	84
4.3 Schlussfolgerungen	85
4.4 Fazit	87
4.5 Ausblick	87
Literaturverzeichnis	89
Anhang	103
Anhang A Beispiele für Dosisabschätzungen für potentielle Freisetzungen aus Endlagern in unterschiedlichem Wirtsgestein	105
Anhang B Vorlage der Einverständniserklärung	109
Anhang C XRD-Messung der RefeSol Böden 1-4	113
Wissenschaftlicher Werdegang	117
Veröffentlichungen	119
Selbstständigkeitserklärung	121

Abbildungsverzeichnis

Abb. 1: Visualisierte Darstellung der beiden Forschungsperspektiven	6
Abb. 2: Exemplarische schematische Darstellung der Wege der Radioisotope von einer Quelle zum Menschen (SSK 2013).....	10
Abb. 3: Sorption von Ionen (Sorbit) an ein Mineral (Sorbent) (Scheffer, Schachtschabel et al. 2010).	13
Abb. 4: Beispiele für Sorptionsisothermen: A: keine Sorption, B: lineare Sorption, C: nicht-lineare Sorption (Appelo und Postma 2005)	14
Abb. 5: Bestandteile des Sicherheitsnachweises für ein Endlager im Überblick (Müller-Lyda, Sailer et al. 2008).....	17
Abb. 6: Szenario der ungestörten Entwicklung eines Endlagers im Tongestein (Müller-Lyda, Sailer et al. 2008).....	18
Abb. 7: Auflösung der Teilmodelle nach Raumbereichen mit ihren Komponenten (Müller-Lyda, Sailer et al. 2008).	19
Abb. 8: Beispiel für die Dosisbeiträge von einzelnen Radioisotopen in der Langzeitsicherheitsanalyse für ein Endlager in Tonstein (Müller-Lyda, Sailer et al. 2008)	24
Abb. 9: Prinzip der Qualitativen Inhaltsanalyse (Gläser und Laudel 2009).....	33
Abb. 10: Der Iod-Kreislauf der Erde (Angaben für Stoffflüsse pro Jahr) (Ito und Hirokawa 2009)	39
Abb. 11: Eh/pH-Diagramm für Iod (Fuge und Johnson 2015).....	41
Abb. 12: Zerfallsschema von ^{129}I (Firestone and Shirley 1997).....	42
Abb. 13: Schematische Darstellung der potentiellen Übergänge von Iod im Boden-Pflanze-Luft-System: a) Verdunstung (volatilsation), b) Lösung (dissolution), c) Adsorption (adsorption), d) Desorption (desorption) (Ashworth 2009).....	44
Abb. 14: Zerfallsschema von ^{125}I (Firestone and Shirley 1997).....	50
Abb. 15: Zerfallsschema von Tritium.....	50
Abb. 16: Beispiel einer Durchbruchskurve bei permanenter Tracer- bzw. Schadstoffzugabe (Iden und Durner 2014).....	54
Abb. 17: a) Schema des Säulenaufbaus, b) Versuchsaufbau im Labor	55
Abb. 18: K_d -Werte für RefeSol 1 und 3, natürlich und sterilisiert	60
Abb. 19: K_d -Werte bei steigender Iodidkonzentration für 4 unterschiedliche Böden	61
Abb. 20: K_d -Werte für Unterboden des RefeSol 1 bei $10^{-8} \text{ mol L}^{-1}$ Iodidkonzentration ...	62
Abb. 21: Durchbruchskurve des inerten Tracers für Iodidkonz. $10^{-4} \text{ mol L}^{-1}$	64
Abb. 22: Durchbruchskurve des Iodid $10^{-4} \text{ mol L}^{-1}$	64
Abb. 23: Durchbruchskurve des inerten Tracers für Iodidkonz. $10^{-6} \text{ mol L}^{-1}$	65
Abb. 24: Durchbruchskurve des Iodids, $10^{-6} \text{ mol L}^{-1}$	65
Abb. 25: Durchbruchskurve des inerten Tracers für Iodidkonz. $10^{-7} \text{ mol L}^{-1}$	66
Abb. 26: Durchbruchskurve des Iodids, $10^{-7} \text{ mol L}^{-1}$	66
Abb. 27: Durchbruchskurve des inerten Tracers für Iodidkonz. $10^{-8} \text{ mol L}^{-1}$	67
Abb. 28: Durchbruchskurve des Iodids, $10^{-8} \text{ mol L}^{-1}$	67
Abb. 29: Prozentuale Anteile des Iodids in den Fraktionen, 18 h Kontaktzeit.....	69

Abb. 30: Prozentuale Anteile des Iods in den Fraktionen bei 30 Tagen Kontaktzeit.....	70
Abb. 31: Vergleich der Extraktionsergebnisse der natürlichen und sterilisierten Varianten der RefeSol-Böden 1 und 3.....	71
Abb. 32: Variations in the predictability of the main repository components, against assessment time (OECD/NEA 1999).....	74
Abb. 33: Ergebnisse der sequentiellen Extraktion eines dänischen Bodens und eines IAEA-Referenzbodens (Hansen et al. 2011).	81
Abb. 34: Anstieg der Iodisorption nachdem frischer Boden (1 % oder 10 %) mit autoklaviertem Boden gemischt wurde (Muramatsu et al. 2004).	82

Tabellenverzeichnis

Tab. 1: Überblick über Verteilungskoeffizienten unterschiedlicher Radioisotope für Böden (über unterschiedliche Bodentypen gemittelt) (modifiziert nach IAEA 2009).....	16
Tab. 2: Tabelle mit Verteilungskoeffizienten für Iod aus dem Technischen Bericht 1616 der IAEA.....	25
Tab. 3: Zusammenstellung der ¹²⁷ Iod-Gehalte in unterschiedlichen Umweltmedien und dem menschlichen Körper (aus Hu und Moran 2010).....	39
Tab. 4: Die Hauptquellen für ¹²⁹ Iod in der Umwelt (Hu und Moran 2010).....	43
Tab. 5: Zu deponierende Mengen ¹²⁹ Iod in den Wärme erzeugenden hochradioaktiven Abfällen in Deutschland (Müller-Lyda, Sailer et al. 2008).	43
Tab. 6: Bodenparameter der RefeSol-Böden 1-4 und des anmoorigen Oberbodens aus Gohre.....	48
Tab. 7: Bodenparameter des selbstbeprobten RefeSol-Oberbodens und der -Unterböden, Standort Neustadt am Rübenberge, 2015.....	49
Tab. 8: Extraktionsschritte der sequentiellen Extraktion von Iod im Boden.....	56
Tab. 9: Auflistung der Böden und Kontaminationsdauer	57
Tab. 10: K _d -Werte für RefeSol 1 und 3, natürlich und sterilisiert	59
Tab. 11: K _d -Werte für 4 unterschiedliche Böden.....	60
Tab. 12: K _d -Werte für Unterbodenmaterial des RefeSol 1 bei 10 ⁻⁸ mol L ⁻¹ Iodid-konzentration.....	62
Tab. 13: Retardationskoeffizienten, berechnet aus K _d -Werten.....	63
Tab. 14: Prozentuale Anteile des Iods in den Fraktionen bei 18 h Kontaktzeit.....	68
Tab. 15: Prozentuale Anteile des Iods in den Fraktionen bei 30 Tagen Kontaktzeit.....	70
Tab. 16: Prozentuale Anteile des Iods in den Fraktionen für sterilisierte Böden	71
Tab. 17: Zielstellungen und Anwendungen der Expositionsabschätzung in Wissenschaft und ‚policy‘ bzw. Administration (modifiziert nach Mosbach-Schulz 2013).	78
Tab. 18: Parameter für Iod aus Säulenversuchen (Weather et al. 2007).....	83

Abkürzungsverzeichnis

Anm.	Anmerkung
AtG	Atomgesetz
AVV	Allgemeine Verwaltungsvorschrift
BfE	Bundesamt für kerntechnische Entsorgungssicherheit
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
Bq	Becquerel, Zerfälle pro Sekunde, s ⁻¹
BMBF	Bundesministerium für Bildung und Forschung
BMU	von 1986 bis 2013: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit; seit 2018: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit
BMUB	von 2013 bis 2018: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit
DAEF	Deutsche Arbeitsgemeinschaft Endlagerforschung
Eh	Redoxpotential in Volt
ENTRIA	Forschungsverbundprojekt „Entsorgungsoptionen für radioaktive Reststoffe: Interdisziplinäre Analysen und Entwicklung von Bewertungsgrundlagen“
EPA	(United States) Environmental Protection Agency
EURATOM	Europäische Atomgemeinschaft
g	Gramm
IAEA	International Atomic Energy Agency
ICRP	International Commission on Radiation Protection
IME	Fraunhofer Institut für Molekularbiologie und angewandte Ökologie
K _d -Wert	Verteilungskoeffizient
kg	Kilogramm
L	Liter
NEA	Nuclear Energy Agency
OECD	Organisation for Economic Co-operation and Development
pH	Negativer dekadischer Logarithmus der Aktivität der H ⁺ -Ionen
R _d -Wert	Retardationskoeffizient
rpm	revolutions per minute
SSK	Strahlenschutzkommission
StandAG	Standortauswahlgesetz
StrlSchG	Strahlenschutzgesetz
StrlSchV bisher	Strahlenschutzverordnung bis 31.12.2018
StrlSchV neu	Strahlenschutzverordnung seit 1.1.2019
Sv, mSv, µSv	Sievert, Millisievert, Mikrosievert
UBA	Umweltbundesamt
WHO	World Health Organisation, dt. Weltgesundheitsorganisation

Vorwort

a) Über die Forschungsplattform ENTRIA

„In the early years of atomic energy,
the problem of how to deal with the radioactive waste products
was approached with a feeling of apprehension,
but their disposal had not proved insurmountable and has,
as anticipated, required only a small fraction of the ingenuity
that brought such fission products into being.
The confidence with which the engineers and scientists
currently approach these developments
is reflected in this research report.”

Atomic Energy Waste - Its Nature, Use and Disposal (Glueckauf 1961)

Die optimistische Einschätzung des Herrn Glueckauf zum Umgang mit radioaktiven Abfällen hat sich leider nicht bewahrheitet. Die Endlagerung hochradioaktiver Abfälle stellt seit Jahrzehnten eine ungelöste Herausforderung für alle Staaten dar, in denen die Kernenergienutzung ein Teil der nationalen Energiepolitik ist oder war. Auch in Deutschland ist die Entsorgung dieser Abfälle eine Aufgabe, die mit ihren vielschichtigen und komplex verschränkten Problemlagen noch nicht abschließend bearbeitet werden konnte. Die im Jahr 2011 getroffene politische Entscheidung zur Beendigung der Kernenergienutzung hat einen gesellschaftlichen Grundkonflikt der Endlagerungsproblematik – die sichere Verwahrung der Abfälle als positives Argument für die weitere Produktion von hochradioaktiven Abfällen – aufgelöst. Dennoch verbleibt der Auftrag, dass „radioaktive Abfälle geordnet beseitigt werden (direkte Endlagerung)“ (§ 9a, Abs.1, Atomgesetz (AtG) 2015) technisch komplex und gesellschaftlich konfliktbehaftet (Brunnengräber, Mez et al. 2012).

Die vorliegende Arbeit ist in ihrer interdisziplinären Ausrichtung, bei der sowohl radio-ökologische als auch die Regulierung betreffende Fragestellungen des Strahlenschutzes behandelt werden, im Rahmen des Forschungsverbundprojektes „Entsorgungsoptionen für radioaktive Reststoffe: Interdisziplinäre Analysen und Entwicklung von Bewertungsgrundlagen“ (ENTRIA) erstellt worden. Das Verbundprojekt wurde vom Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF) von Januar 2013 bis Juni 2018 gefördert. Durch die Zusammenarbeit von elf Instituten deutscher Universitäten und Großforschungseinrichtungen sowie einem Schweizer Partner konnten fachübergreifende Fragestellungen der Endlagerung identifiziert und bearbeitet werden. Die Strukturierung des Verbundprojektes erfolgte über eine Aufteilung in sogenannte Vertikal- und Transversalprojekte. In den Vertikalprojekten wurden die drei Entsorgungsoptionen „Endlagerung in tiefen geologischen Formationen ohne Vorkehrung zur Rückholbarkeit“ (wartungsfreie Tiefenlagerung), „Einlagerung in tiefen geologischen Formationen mit Vorkehrungen zur Überwachung und Rückholbarkeit“ und „Oberflächenlagerung“ im

Hinblick auf technische Aspekte und disziplinübergreifende Kriterien untersucht. Die Transversalprojekte befassten sich optionenübergreifend mit problemrelevanten Fragestellungen aus den Bereichen „Technikfolgenabschätzung und Governance“, „Ethisch-moralische Begründungen, rechtliche Voraussetzungen und Implikationen“ und „Interdisziplinäre Risikoforschung“. Die vorliegende Arbeit gliederte sich als Arbeitspaket 2.3 unter dem Titel „Kritische Evaluationen der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zum § 47 der Strahlenschutzverordnung“ in das Transversalprojekt 2 „Technikfolgenabschätzung und Governance“ ein. Für weitergehende Informationen zum Verbundprojekt ENTRIA sei an dieser Stelle auf das Memorandum (ENTRIA 2014), auf die offizielle Webseite www.entria.de sowie auf die ENTRIA-Arbeitsberichte verwiesen.

b) Sprachlicher Ausdruck

In der vorliegenden Arbeit wird statt des in der Kernphysik und teilweise in der Radiochemie üblichen Ausdrucks 'Radionuklid' der in der Chemie, den Geo- und Umweltwissenschaften üblichere Ausdruck 'Radioisotop' gewählt. Dies soll Missverständnisse über die Natur und das Vorkommen der radioaktiven Substanzen vermeiden helfen. Fachsprachliche Bezeichnungen werden außerhalb des Fachkontextes, hier außerhalb der Kernphysik, teilweise nicht wie ursprünglich intendiert interpretiert. Zum Ausmaß der resultierenden Irreführung siehe auch die *Richtlinie 2011/70/Euratom vom 19. Juli 2011 über einen Gemeinschaftsrahmen für die verantwortungsvolle und sichere Entsorgung abgebrannter Brennelemente und radioaktiver Abfälle*, Einleitung, Absatz 21:

„Radioaktive Abfälle, einschließlich abgebrannter Brennelemente, die als Abfall angesehen werden, müssen eingeschlossen und langfristig vom Menschen und der belebten Umwelt isoliert werden. Ihre spezifischen Eigenschaften, nämlich Radionuklide zu enthalten, verlangen spezielle Vorkehrungen, um die Gesundheit des Menschen und die Umwelt vor den Gefahren durch ionisierende Strahlung zu schützen, einschließlich der Endlagerung in geeigneten Anlagen als Endverbleib.“

Die genannte spezifische Eigenschaft ist unpräzise formuliert. Nahezu alle Materialien, natürliche wie auch menschlich hergestellte, enthalten Radionuklide, bzw. Radioisotope. Die spezielle Eigenschaft der radioaktiven Abfälle besteht darin, dass in ihnen die Konzentration beziehungsweise Aktivität der Radioisotope besonders hoch ist, so dass daraus Gefährdungen für Menschen und die belebte Umwelt entstehen können.

In dieser Arbeit wird das generische Maskulinum („Experten“, „Wissenschaftler“ etc.) verwendet, das gleichermaßen männliche und weibliche Personen umfasst. Die Entscheidung für diese Schreibweise beruht auf rein praktischen Erwägungen.

c) Dank

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen Personen bedanken, die mich beim Schreiben dieser Arbeit unterstützt haben. Diese Arbeit ist das Ergebnis eines langjährigen Prozesses und es ist unmöglich all diejenigen zu benennen, die zum Gelingen beigetragen haben. Ich danke allen, die hier ungenannt bleiben, von ganzem Herzen.

Besonderen Dank möchte ich aussprechen

an Herrn Prof. Dr. Clemens Walther, der mir diese Promotion innerhalb des ENTRIA-Verbundprojektes ermöglicht hat und sie mit konstruktiver Geduld begleitet und betreut hat;

an Herrn Prof. Dr. Georg Steinhauser für die Übernahme des Korreferats;

an Herrn Privatdozent Dr. habil. Achim Brunnengräber für die Übernahme des Gutachtens sowie die Diskussionen und Zusammenarbeit im ENTRIA-Verbundprojekt.

an Herrn Prof. Dr. Klaus-Jürgen Röhlrig für die Übernahme des Gutachtens sowie die Zusammenarbeit im ENTRIA-Verbundprojekt.

Außerdem: den Interviewpartnern und externen Spezialisten, die Gespräche mit mir geführt haben und ohne deren Offenheit und klugen Hinweise diese Arbeit nicht möglich gewesen wäre;

meinen ehemaligen Kolleginnen und Kollegen im Institut für Radioökologie und Strahlenschutz der Leibniz Universität Hannover: Dr. Cord Drögemüller, Dr. Beate Riebe, Dr. Stefan Bister, Fabian Köhler, Monika Gorny, Gabriele Erb-Bunnenberg, Karl-Heinz Iwannek, Dr. Stephanie Schneider, Dr. Frank Tawussi, Dr. Alfatih Osman, Dr. Natallia Torapava und Dr. Erik Pönitz,

meinen Kolleginnen und Kollegen im ENTRIA-Verbundprojekt: Prof. Ulrich Smeddinck, Dr. Sophie Kuppler, sowie allen, die in ungezählten Gesprächen während der ENTRIA-Meetings und -Tagungen meinen Horizont für die unterschiedlichen Dimensionen des Endlagerungsthemas erweitert haben;

Hilal Alemдар-Aydin danke ich für die Bestimmung der bodenkundlichen Parameter an den selbstgenommen Bodenproben und die zuverlässige Unterstützung im Labor;

Dr. Susanne K. Woche für bodenkundliche Messungen an einem Referenzboden;

Dr. Olaf Mosbach-Schulz und Matthias Zimmermann für die hilfreichen Gespräche;

Elisabeth Assmy für das unerschütterliche Zutrauen und den Beistand, gerade auch in schwierigen Zeiten;

Kerstin Brauer, Anne Weth und Dr. Ingrid Rügge für ihre herzerfrischenden

Ermutigungen und die tatkräftige Unterstützung, Philipp Althaus und Elsbeth Husheer für ebensolches sowie das Korrekturlesen;

meiner Mutter Heidrun König und meiner Schwester Judith König für beständigen Rückhalt und Unterstützung.

1 Einleitung

Die Schutzziele des Strahlenschutzes werden in der Regel über die Einhaltung bestimmter Dosiswerte, d.h. Werte für die Höhe der Exposition durch radioaktive Stoffe oder ionisierende Strahlung, definiert. Überall dort, wo diese Dosis nicht direkt gemessen werden kann, müssen Expositionsabschätzungen vorgenommen werden. In den Fällen, in denen radioaktives Material aus industriellen Anlagen in die Umwelt freigesetzt wird, erfordert die Expositionsabschätzung nicht nur Angaben zum Material selbst und zu Aufnahmeraten beziehungsweise Expositionszeiten der betroffenen Personen, sondern auch Informationen zu den Transferpfaden der Radioisotope durch die jeweils betroffenen Umweltkompartimente. Die Kenntnis des ökologischen Transfers der Radioisotope spielt daher eine zentrale Rolle bei der Gefährdungsabschätzung. Die Instrumente zur belastbaren Prognostizierung des Transfers sind folglich von zentraler Bedeutung für die regulatorische Entscheidungsfindung der mit strahlenschützerischen Aufgaben betrauten staatlichen Behörden.

Die vorliegende Arbeit bewegt sich im Rahmen der interdisziplinären Thematik „Radioökologische Instrumente als fachliche Unterstützung zur regulatorischen Entscheidungsfindung“. International wird diese Thematik seit Jahren auf diversen Konferenzen diskutiert (siehe auch ICRER 2017, BIOPROTA 2016, Mrdakovic Popic et al. 2018), da sie allerdings keiner einzelnen wissenschaftlichen Disziplin zugewiesen werden kann, wird sie im wissenschaftlichen Bereich nur sehr randständig bearbeitet.

Im Rahmen des vorgestellten interdisziplinären Forschungsverbundes zur Endlagerung ENTRIA bestand die Möglichkeit, sich der Thematik im Rahmen einer Dissertation zu widmen. Die vorliegende Arbeit untersucht sowohl hinsichtlich der gesellschaftswissenschaftlichen Aspekte als auch hinsichtlich der naturwissenschaftlichen Aspekte die Expositionsmodellierung im Hinblick auf die Endlagerung hochradioaktiver Abfälle. Daraus ergeben sich zweierlei Perspektiven:

1. Die gesellschaftswissenschaftliche Perspektive kann in dieser Untersuchung auch als Perspektive des Risikomanagements im Strahlenschutz aufgefasst werden, sie nimmt den Übergang der radioökologischen Expositionsabschätzung vom naturwissenschaftlichen Modell zum untergesetzlichen Regelwerk in den Fokus.
2. Die naturwissenschaftliche Perspektive kann auch als Perspektive der Risikoabschätzung bezeichnet werden. Dabei fokussieren sich die Untersuchungen vornehmlich auf die Parameter zur Beschreibung der Transferpfade der Radioisotope durch die Umwelt (siehe Abbildung 1).

In der folgenden Abbildung werden die beiden Forschungs-Perspektiven grafisch dargestellt: Perspektive 1 betrachtet die Prozesse am Übergang des naturwissenschaftlichen Expositionsabschätzungs-Modells hin zu einem Regulierungs-Instrument; Perspektive 2 betrachtet die Ermittlung und Darstellung der Radioisotop-Transferpfade in der Umwelt (übersetzt und modifiziert nach Salbu 2013).



Abb. 1: Visualisierte Darstellung der beiden Forschungsperspektiven

Die Arbeit gliedert sich in 4 Abschnitte:

Im ersten Abschnitt, der Einleitung, werden die grundlegenden Voraussetzungen für das Verständnis des Themenbereiches vorgestellt. Das sind Informationen zur Endlagerung in Deutschland, zum grundsätzlichen Verfahren radioökologischer Expositionsabschätzung, zur Rolle des Verteilungskoeffizienten bei der radioökologischen Expositionsabschätzung, sowie der Rolle der Expositionsabschätzung bei der Endlagerung hochradioaktiver Abfälle. Aus der Darlegung der Problemlage wird die Motivation und Zielstellung der Arbeit abgeleitet und vorgestellt. Im zweiten Abschnitt wird die Untersuchung zur ersten Perspektive, dem Übergang des naturwissenschaftlichen Abschätzungsmodells zum regulatorischen Instrument, dargelegt. Nach einer Einführung in die Problemlage und die Forschungsfrage wird die Methode beschrieben und schließlich werden die Ergebnisse vorgestellt.

Im dritten Abschnitt werden die Untersuchungen zur zweiten Perspektive, den Untersuchungen zu den Transferprozessen des endlagerungsrelevanten Radioisotops ¹²⁹Iod, beschrieben. Auch hier folgt auf die Einführung in das Problemfeld die Darstellung der unterschiedlichen Untersuchungsmethoden sowie die Vorstellung der Ergebnisse.

Im folgenden vierten Abschnitt werden die Untersuchungsergebnisse beider Perspektiven diskutiert. Durch die Kombination der Betrachtungsweisen werden Problemlagen identifiziert, die durch disziplinäre Untersuchungen in ihrer Dimension nicht ausreichend erkannt werden können. Die Arbeit schließt mit einem Fazit und einem Ausblick.

1.1 Endlagerung hochradioaktiver Abfälle

Infolge der industriellen, medizinischen, wissenschaftlichen und militärischen Nutzung radioaktiver Materialien sind im Laufe der letzten Jahrzehnte weltweit radioaktive Abfälle entstanden. In Deutschland wird für das Jahr 2080 ein Aufkommen von 28.100 m³ Wärme entwickelnder hochradioaktiver¹ Abfälle durch die industrielle Nutzung zur Stromerzeugung prognostiziert (Röhlig 2017). Die Endlagerung der radioaktiven Abfälle ist in Deutschland nach dem *Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren* (Atomgesetz – AtG) Aufgabe des Bundes (§ 9a, Abs. 3, AtG). Dabei wird Endlagerung als die dauerhafte und wartungsfreie Lagerung von radioaktiven Abfällen zum Zwecke ihrer dauerhaften Beseitigung definiert.

Durch die Richtlinie 2011/70/EURATOM sind in der Europäischen Union alle Kernenergie nutzenden Mitgliedstaaten aufgefordert, nationale Strategien für die Entsorgung radioaktiver Abfälle zu entwickeln und regelmäßig Bericht zu führen. Nach dem Kernreaktorunfall in Fukushima in Japan 2011 wurde in der Bundesrepublik Deutschland der Ausstieg aus der zivilen Nutzung der Kernenergie zur gewerblichen Nutzung von Elektrizität bis zum Jahr 2022 beschlossen. Um dieser Situation und den Anforderungen der EURATOM-Richtlinie zu entsprechen wurde ein *Nationales Entsorgungsprogramm* (BMUB 2015) entwickelt und das *Gesetz zur Suche und Auswahl eines Standortes für ein Endlager für Wärme entwickelnde radioaktive Abfälle* (Standortauswahlgesetz – Stand AG) erarbeitet und verabschiedet. Ziel des Gesetzes ist, dass bis zum Jahr 2031 „in einem partizipativen, wissenschaftsbasierten, transparenten, selbsthinterfragenden und lernendem Verfahren für die im Inland verursachten hochradioaktiven Abfälle ein Standort mit der bestmöglichen Sicherheit für eine Anlage zur Endlagerung nach § 9a Absatz 3 Satz 1 des Atomgesetzes in der Bundesrepublik Deutschland ermittelt werden.“ (§ 1 (1) StandAG). Laut Nationalem Entsorgungsprogramm soll die Einlagerung der Abfälle dann ab dem Jahre 2050 beginnen (bei einer Zeitplanung ohne Verzögerung und Rücksprünge).

In Expertenkreisen besteht Konsens, dass der größtmögliche Schutz des Menschen und der Biosphäre durch die Verbringung der Abfälle in tiefe geologische Formationen

¹ „International gibt es zahlreiche verschiedene Möglichkeiten, radioaktive Abfälle in unterschiedliche Kategorien einzuteilen. Die Einteilung der Abfälle richtet sich dabei nach der geplanten Endlagerung (tiefe geologische Schichten oder oberflächennah) oder der nötigen Handhabung der Abfälle. Häufig wird aufgrund ihrer Dosisleistung eine Unterscheidung zwischen hochradioaktiven Abfällen (HAW), mittlerradioaktiven Abfällen (MAW) und schwachradioaktiven Abfällen (LAW) vorgenommen.[...] Da in Deutschland für alle Arten radioaktiver Abfälle die Endlagerung in tiefen geologischen Schichten vorgesehen ist und somit nicht die Dosisleistung die entscheidende Größe ist, sondern das radioaktive Inventar und die beim radioaktiven Zerfall entstehende Wärme, werden die radioaktiven Abfälle in Deutschland in Wärme entwickelnde Abfälle und Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung unterteilt.“(Quelle: https://www.bfe.bund.de/DE/ne/abfaelle/arten/arten_node.html) Stand 28.01.2019.

gewährleistet wird. Geologische, geotechnische und technische Barrieren isolieren die Abfälle von der Biosphäre. In Deutschland liegt der Schwerpunkt des Barrierekonzeptes auf geologischen Schichten, die bereits seit vielen Millionen Jahren existieren und stabil sind. In der Bundesrepublik sind drei Gesteinsarten als sogenannte „Wirtsgesteine“ für ein Endlager vorhanden: Salzgestein, Tongestein und Kristallingestein kommen in hinreichender Mächtigkeit und in geologisch ausreichend stabilen Umgebungen vor. Laut StandAG „soll die Endlagerung in tiefen geologischen Formationen an einem für diese Zwecke errichteten Endlagerbergwerk mit dem Ziel des endgültigen Verschlusses erfolgen. Die Möglichkeit einer Rückholbarkeit für die Dauer der Betriebsphase des Endlagers und die Möglichkeit einer Bergung für 500 Jahre nach dem geplanten Verschluss des Endlagers sind vorzusehen.“ (§ 1 Abs. 4 StandAG).

Der erwartete sichere Einschluss der Abfälle soll durch regelmäßige vorläufige Sicherheitsuntersuchungen evaluiert werden, wobei das Schutzniveau durch Sicherheitsanforderungen festgelegt ist. Für die Sicherheitsanforderungen sind folgende Schutzziele und Sicherheitsprinzipien verbindlich:

Die radioaktiven Abfälle sind mit dem Ziel, die Schadstoffe von der Biosphäre fernzuhalten, innerhalb der geologischen, geotechnischen und technischen Barrieren zu konzentrieren und einzuschließen. Für einen Zeitraum von einer Million Jahre muss sichergestellt werden, dass Expositionen aufgrund von Freisetzungen radioaktiver Stoffe aus dem Endlager im Vergleich zur natürlichen Strahlenexposition geringfügig sind. Es ist außerdem zu gewährleisten, dass die Auswirkungen der Endlagerung im Ausland nicht größer sind als im Inland. Wie bereits erwähnt, muss auch die Möglichkeit der Rückholung für 500 Jahre und der Bergung nach der Verschlussphase gegeben sein. Dabei ist das Endlager so zu errichten, dass in der Nachverschlussphase keine Eingriffe und Wartungsarbeiten erforderlich werden.

Für die bisher gültigen Sicherheitsanforderungen (BMU 2010) wurde infolge der Neuregelung des Endlagerungs- und Standortauswahlprozesses eine Neuformulierung eingefordert. Die Sicherheitsanforderungen werden im Kapitel 1.4.1 tiefergehend beschrieben.

1.2 Expositionsabschätzung im Strahlenschutz

Expositionsabschätzungen sind ein wichtiges Instrument im Gesundheits- und Umweltschutz. Durch unterschiedliche radiotoxische, chemotoxische oder biotoxische Schadstoffe können für Menschen und die Umwelt Risiken für die Gesundheit bzw. den ökologischen Bestand entstehen. Die Abschätzung der Exposition ist daher ein wichtiger Baustein in der Beurteilung solcher Risiken. Das Umweltbundesamt definiert Exposition als „Ausgesetztsein des Schutzgutes gegenüber Schadstoffen oder Noxen“ bzw. als „Kontakt zwischen einer Person und einer biologischen, chemischen oder physikalischen Noxe über Zeit und Raum“ oder auch als „Kontakt einer Umweltkontaminante mit den äußeren Grenzflächen des menschlichen Körpers (Haut, Atemtrakt, Magen-Darm-Trakt)“ (Mekel, Mosbach-Schulz et al. 2007). Das Strahlenschutzgesetz definiert: „Exposition ist

die Einwirkung ionisierender Strahlung auf den menschlichen Körper durch Strahlungsquellen außerhalb des Körpers (äußere Exposition) und innerhalb des Körpers (innere Exposition) oder das Ausmaß dieser Einwirkung“ (StrlSchG, § 2 Abs. 1).

Die Abschätzung von Expositionen wird an unterschiedlichen Stellen notwendig: Sie findet dort statt, wo die Exposition – im Strahlenschutz also die Strahlendosis – durch ein Monitoring nicht direkt gemessen werden kann oder nicht durch Indikatoren, wie beispielsweise der Konzentration von Schadstoffen in Ausscheidungen, rekonstruiert werden kann. Oft beziehen sich solche Betrachtungen auf:

- die Rekonstruktion vergangener Expositionen für epidemiologische Untersuchungen
- die Abschätzung geplanter und existierender Expositionen, etwa im praktischen Strahlenschutz für Arbeiten und Tätigkeiten
- die Gefährdungsabschätzung radioaktiver Altlasten.

Doch gerade für die regulative Anwendung ist die Expositionsabschätzung mittels Modellierung² zur Prognose zukünftiger Strahlenexpositionen essentiell. Sie wird für die Begründung von Freigabewerten, zur Beurteilung geplanter Änderungen kerntechnischer Anlagen oder für die Risikoanalyse zur Planung von Endlagern für radioaktive Abfälle benötigt.

Wie Barthel und Thierfeldt (2015) in ihrem umfassenden Vergleich unterschiedlicher Modellierungsmethoden beschreiben, gehören folgende Elemente zur Kausalkette der Exposition:

- die primären Strahlenquellen, von denen eine radiologisch relevante Direktstrahlung ausgeht bzw. radioaktive Stoffe, die in die Umwelt freigesetzt werden,
- die Ausbreitung von Radioisotopen in den Umweltkompartimenten: a) geologischer Untergrund, b) Grundwasser, c) Oberflächenwasser, d) Luft, sowie in der Biosphäre bis hin zu den betroffenen Personen³,
- die Exposition von Einzelpersonen oder von Personengruppen durch äußere Exposition oder Inkorporation von Radioisotopen, die im Zusammenhang mit den spezifischen Verhaltensparametern wie z.B. Aufenthaltsort und -dauer, Verzehrsmengen und der Atemrate zu betrachten sind.

In Expositionsbetrachtungen für konventionelle Schadstoffe wird entlang der U.S. EPA Nomenklatur zwischen Expositionsrouten und Expositionspfad unterschieden (EPA 1992). Als Expositionsrouten werden die Prozesse der Schadstoffaufnahme im und am Körper

² In der Literatur werden die Begriffe Expositionsabschätzung, Expositionsermittlung und Expositionsmodellierung (im engl. dose assessment, dose modelling) oft synonym verwendet. In dieser Arbeit deckt der Begriff Expositionsabschätzung alle Vorgehensweisen ab, in denen die Exposition aus anderen Daten errechnet werden muss. Es wird nicht zwischen der Abschätzung, die auf konservativen Parameter-Annahmen beruht, und der Ermittlung, die auf realistischeren Annahmen beruht, unterschieden. Für die Abschätzungen werden unterschiedliche Rechenmodelle eingesetzt, daher wird auch der Begriff Expositionsabschätzungsmodell eingesetzt.

³ Seit einigen Jahren werden auch die sogenannten “non-human-biota”, also nicht-menschliche Organismen als schutzbedürftige Zielgröße erkannt, siehe ICRP (2008) oder IAEA (2012a).

bezeichnet. Das umfasst die Inhalation, die Ingestion und die dermale Aufnahme; für ionisierende Strahlung umfasst dies auch die äußere Exposition durch Aufenthalt in einem Strahlungsfeld. Der Expositionspfad hingegen bezeichnet den Weg, den ein Schadstoff durch die Umweltkompartimente von der Schadstoffquelle hin zur exponierten Person nimmt.

Der Schwerpunkt der radioökologischen Expositionsabschätzung liegt in der Betrachtung der Ausbreitung, Mobilisierung, Immobilisierung und ggf. Akkumulation der Schadstoffe in den Umweltkompartimenten, das heißt in der Betrachtung des Expositionspfads. In der Abbildung 2 ist ein grundsätzliches Schema der Expositionspfade dargestellt.

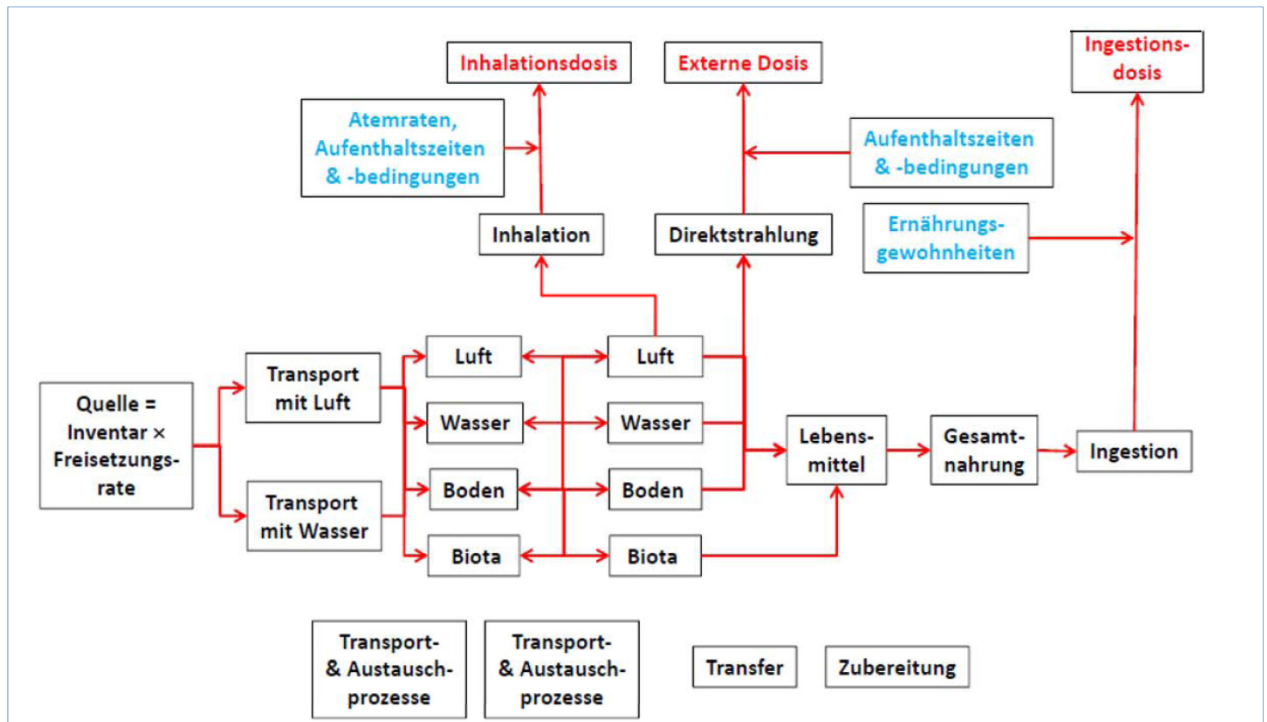


Abb. 2: Exemplarische schematische Darstellung der Wege der Radioisotope von einer Quelle zum Menschen (SSK 2013)

Für jegliche Abschätzung muss das Expositionsszenario definiert werden. Barthel und Thierfeldt (2015) definieren das „Expositionsszenario [als] Gesamtheit der Bedingungen und Annahmen zu Quellen, Expositionspfaden und Mengen bzw. Konzentrationen relevanter Schadstoffe, der Art, Anzahl bzw. Charakteristika belasteter Organe, Personen oder Personengruppen, die zur Modellierung und Abschätzung von Expositionen in einer gegebenen oder einer zukünftigen Situation herangezogen werden“.

Die Ziele und Zielgrößen der Expositionsabschätzungen sind unterschiedlich je nach Anwendungszweck. Es können standort- und einzelfallspezifische Dosisabschätzungen für konkrete Entscheidungen erforderlich sein, wie bei der Sanierung von Altlasten oder den Ableitungen aus medizinischen Einrichtungen; für die Ableitung von Freigabewerten oder Werten für Überwachungsgrenzen werden generische Dosisabschätzungen gefordert. Es können Dosisabschätzungen sowohl für reale Personen und Personengruppen als auch

für hypothetische Personen und Personengruppen durchgeführt werden⁴. Die Gruppe der Adressaten und Nutzer der Expositionsabschätzungen ist heterogen: Sie besteht aus Spezialisten für den betrieblichen Strahlenschutz, Experten in wissenschaftlichen Abteilungen von Betrieben, wissenschaftlichen Instituten sowie Mitarbeitern in spezialisierten Planungs- und Beratungsfirmen oder Entscheidungsträger in Genehmigungs- und Aufsichtsbehörden.

1.2.1 Expositionsmodellierung im regulativen Strahlenschutz: Die Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum § 47 der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV)

Eines der bekanntesten radioökologischen Expositionsabschätzungs-Modelle im Regelwerk des deutschen Strahlenschutzes ist die *Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum § 47 der Strahlenschutzverordnung* (AVV). Wie anhand der Bezeichnung bereits ersichtlich, wird im § 47 Absatz 2 der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV), die bis zum 31.12.2018 Gültigkeit besaß, direkt auf sie verwiesen:

„Die Bundesregierung erlässt mit Zustimmung des Bundesrates allgemeine Verwaltungsvorschriften über die zu treffenden weiteren Annahmen. Die zuständige Behörde kann davon ausgehen, dass die Grenzwerte des Absatzes 1 eingehalten sind, wenn dies unter Zugrundelegung der allgemeinen Verwaltungsvorschriften nachgewiesen wird.“

Der § 47 der ‚alten‘ StrlSchV⁵ befindet sich im Abschnitt 4, der sich mit dem „Schutz von Bevölkerung und Umwelt bei Strahlenexpositionen aus Tätigkeiten“ befasst. Er regelt die Begrenzung der Ableitungen radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen und Einrichtungen und gibt „Grenzwerte der durch Ableitungen radioaktiver Stoffe mit Luft oder Wasser aus diesen Anlagen oder Einrichtungen jeweils bedingten Strahlenexposition von Einzelpersonen der Bevölkerung im Kalenderjahr“ vor. Diese liegen bei 0,3 mSv für die effektive Dosis, ebenfalls bei 0,3 mSv für die Organdosis der Keimdrüsen, der Gebärmutter und des roten Knochenmarkes, bei 0,9 mSv für die Organdosis für den Dickdarm, die Lunge, den Magen, die Blase, und weiter Organe, sowie bei 1,8 mSv für

⁴ Für Angaben zur effektiven Dosis wird dabei von der Referenzperson ausgegangen, d.h. einer Person mit definierten Maßen und Organverteilungen sowie beiderlei Geschlechtsmerkmalen und nicht für tatsächliche Personen. Siehe auch ICRP (2007).

⁵ Die Strahlenschutzverordnung wurde zum 1.1.2019 modernisiert. Die im Text gemachten Aussagen beziehen sich auf die Version der Strahlenschutzverordnung, die bis zum 31.12.2018 Gültigkeit besaß. Die Angaben, die ehemals im § 47 geregelt wurden, werden seit 1.1.2019 durch die Paragraphen §§ 99-102 im Kapitel 6, Abschnitt 6 innerhalb der Regelungen zum *Schutz der Bevölkerung und Umwelt* aufgeführt. Die Allgemeinen Verwaltungsvorschrift, nach der die Exposition der Personen der Bevölkerung ermittelt wird, wird derzeit ebenfalls modernisiert: „Die Bundesregierung erlässt mit Zustimmung des Bundesrates Allgemeine Verwaltungsvorschriften über zugrunde zu legende Annahmen und Berechnungsverfahren für die Ermittlung der zu erwartenden Exposition einer repräsentativen Person.“ § 100 (2) StrlSchV ‚neu‘ (2018). Diese modernisierten Verwaltungsvorschriften liegen derzeit noch nicht vor. Grenzwerte für die Exposition der Bevölkerung werden seit Oktober 2017 auch durch das Strahlenschutzgesetz (StrlSchG) geregelt. Der § 80 StrlSchG benennt die Grenzwerte für die Exposition der Bevölkerung.

die Organdosis für die Knochenoberfläche und die Haut. Die Strahlenexposition ist nicht für eine reale Person, sondern für „eine Referenzperson an den ungünstigsten Einwirkungsstellen“ zu ermitteln. In den Anlagen der StrlSchV werden zudem dezidiert die weiteren Annahmen, die zu den Expositionspfaden, der Lebensgewohnheiten und Verzehrswerten zu treffen sind, aufgeführt. Die AVV ist ein wichtiges Instrument in Genehmigungsverfahren für Anlagen oder Einrichtungen. In der Beschreibung des Anwendungsbereiches wird darauf deutlich verwiesen: „Die Ergebnisse dienen der Feststellung im Genehmigungsverfahren, ob die Strahlenschutzverantwortlichen die technische Auslegung und den Betrieb ihrer Anlagen so geplant haben, dass die durch die Ableitung radioaktiver Stoffe mit Luft oder mit Wasser bedingte Strahlenexpositionen die Dosisgrenzwerte nach § 47 der StrlSchV nicht überschreitet“ (BMU 2012).

Durch diesen primär auf die Genehmigung kerntechnischer Anlagen beschränkten Anwendungszweck ergibt sich die Notwendigkeit möglichst konservativer Annahmen, um die Strahlenexposition der Bevölkerung in keinem erdenklichen Szenario zu unterschätzen. Die Vorgängerin der AVV, die *Allgemeine Berechnungsgrundlage für die Strahlenexposition bei radioaktiven Ableitungen mit der Abluft oder in Oberflächengewässern* (AGB) (BMI 1979) wurde bereits 1979 vom Bundesministerium des Innern nach Beratungen im Länderausschuss für Atomenergie zur „Harmonisierung der Genehmigungsverfahren, zur Gewährleistung einer einheitlichen Genehmigungspraxis und zur Erleichterung der staatlichen Aufsicht“ veröffentlicht (BMI 1979; SSK 1992). Sie basierte auf Rechenmodellen, die seit 1977 bereits in Genehmigungsverfahren angewandt wurden. Die Parameter- und Szenariovorgaben in der AVV sind ihrem Anwendungszweck entsprechend auf anthropogen entstandene Radioisotope und Freisetzungen in oberirdischen Umweltkompartimenten fokussiert.

1.3 Sorption und das K_d -Konzept im Rahmen der radioökologischen Expositionsabschätzung

Für den Transferpfad der Radioisotope aus dem Grundwasser durch den Boden zur Pflanze sind die Prozesse zwischen Bodenmatrix und Bodenwasser von hoher Bedeutung. Sowohl der Retardationskoeffizient (R_d -Wert) als auch der Verteilungskoeffizient (K_d -Wert; solid-liquid-distribution-coefficient) sind phänomenologische Größen in der Bodenkunde, der Geologie und der Hydrogeologie für die Beschreibung von Geschwindigkeit und Ausmaß des Stofftransportes in Böden, Sedimenten und grundwasserführenden Schichten. Sie quantifizieren die sogenannte Sorption, die Anlagerung von gelösten Stoffen an eine Festphase. Dies kann durch eine Vielzahl von unterschiedlichen Prozessen verursacht werden, wie beispielsweise der Anlagerung infolge elektrostatischer Ladungsunterschiede, der Chemisorption bis hin zu Oberflächenausfällungen und Kopräzipitation, siehe Abbildung 3 (Scheffer, Schachtschabel et al. 2010). Mit zunehmender Bindungsstärke (von oben nach unten)

nimmt die Mobilität und Bioverfügbarkeit der sorbierten Substanzen ab. Allerdings unterscheidet der Sorptionsbegriff nicht zwischen diesen Prozessen⁶.

Der Verteilungskoeffizient (K_d -Wert) ist eine einfache Darstellung des Verhältnisses der Konzentration der Stoffe, die an der Festphase sorbiert werden, zur Konzentration der Stoffe in der dazugehörigen Flüssigkeit, hier in der Bodenlösung.

(1)

$$K_d \text{ (L} \cdot \text{kg}^{-1}) = \frac{\text{Konzentration in der festen Phase (Bq} \cdot \text{kg}^{-1})}{\text{Konzentration in der flüssigen Phase (Bq} \cdot \text{L}^{-1})}$$

Die Modellierung von Sorptionsprozessen in Böden bildet eine wichtige Voraussetzung für die Vorhersage des reaktiven Stofftransportes und der Pufferung der Bodenlösung bei Stoffeinträgen oder -austrägen (z.B. Auswaschung ins Grundwasser, Kontamination, Pflanzenaufnahme von Nähr- oder Schadstoffen). Grundsätzlich sind Sorptionsisothermen ein wichtiges Instrument für die Modellierung. Sie stellen die Beziehung zwischen der Konzentration des an der Festphase sorbierten Stoffes in Abhängigkeit von seiner Gleichgewichtskonzentration bzw. -aktivität in Lösung unter ansonsten konstanten Bedingungen dar.

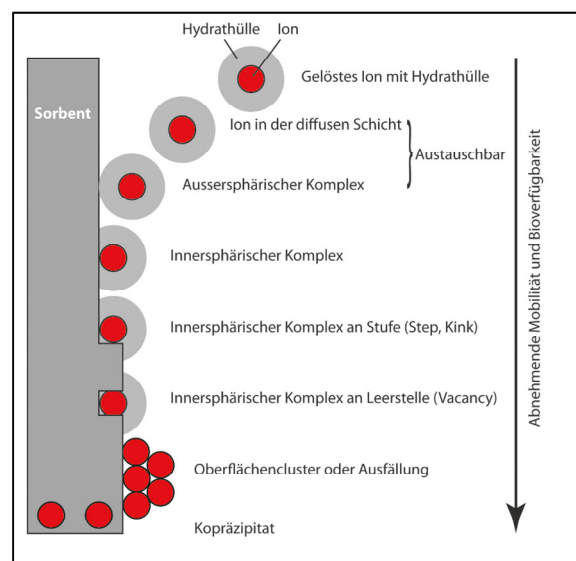


Abb. 3: Sorption von Ionen (Sorbant) an ein Mineral (Sorbent) (Scheffer, Schachtschabel et al. 2010).

⁶ Teilweise wird auch zwischen „schneller“ und „langsamer“ Sorption bzw. K_d -Werten unterschieden oder zwischen den K_d -Werten für bestimmte Bodenbestandteile, wie dem K_{oc} -Wert/ K_d^{humus} für die Sorption an der organischen Substanz des Bodens bzw. dem K_d^{clay} für die Sorption an der Tonfraktion (bsp. in Uematsu et al. (2016))

Der K_d -Wert entspricht einem linearen Zusammenhang zwischen der Konzentration eines Stoffes in der Lösung und der Konzentration eines Stoffes an der Festphase (siehe Abbildung 4).

Sorptionsisothermen geben ebenso wenig wie ein K_d -Wert Auskunft über die Kinetik der Sorptionsprozesse. Häufig genutzte nicht-lineare Isothermen-Gleichungen in der Bodenkunde sind die Freundlich- und die Langmuir-Isothermen (Scheffer, Schachtschabel et al. 2010). Mit ihnen ist es möglich, konzentrationsabhängige Sorptionsverläufe abzubilden. Lineare, also konzentrationsunabhängige Verläufe werden durch die Henry-Isotherme beschrieben, faktisch entspricht dann ein einziger K_d -Wert der Steigung des Graphen. In den Fällen, in denen nur einzelne K_d -Werte für Sorptionsprozesse angegeben werden, wird folglich davon ausgegangen, dass es sich um konzentrationsunabhängige Verläufe handelt, beziehungsweise dass für den betrachteten Konzentrationsbereich ein linearer Zusammenhang besteht.

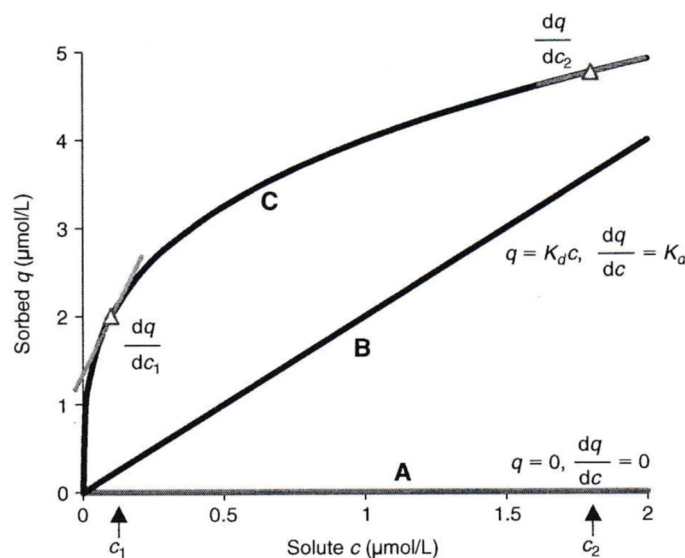


Abb. 4: Beispiele für Sorptionsisothermen: A: keine Sorption, B: lineare Sorption, C: nicht-lineare Sorption (Appelo und Postma 2005)

Die Art und das Ausmaß der Sorption von Radioisotopen im Boden werden durch ihren Oxidationszustand, ihre Speziation und die Eigenschaften des Bodens gesteuert. Auf diesem Wege beeinflussen sowohl die Spezies- als auch die Bodeneigenschaften die Mobilität und damit die Verweilzeiten der Schadstoffe im Wurzelbereich von Pflanzen und so mittelbar die Aufnahme der Schadstoffe durch Organismen und Pflanzen.

Die K_d -Werte für die spezifischen Radioisotope werden größtenteils durch Laborversuche bestimmt. Da sich seit den Kernwaffentests, den Kernkraftwerks-Havarien in Tschernobyl und Fukushima sowie durch kontrollierte und unkontrollierte Ableitungen aus industriellen Anlagen und Deponien technisch produzierte Radioisotope in der Umwelt befinden, können mittlerweile auch Feldstudien durchgeführt werden. Die K_d -Werte, die in situ bestimmt werden, liegen teilweise über denjenigen, die in Kurzzeit-

Versuchen im Labor ermittelt werden (IAEA 2010), jedoch gibt es Streuungen über viele Größenordnungen.

Für einige gut untersuchte Radioisotope wurde der Einfluss spezifischer Co-Faktoren auf die K_d -Werte abgeschätzt. Als Co-Faktoren wirken Bodenbestandteile, die in die jeweiligen Sorptionsmechanismen eingebunden sind. Die Vielzahl der ermittelten K_d -Werte wird meist nach diesen Co-Faktoren gruppiert, so dass die Variabilität der Werte reduziert werden kann. Als wiederholt relevante Bodencharakteristika haben sich die Korngrößenverteilung und der Gehalt an organischem Material erwiesen (IAEA 2010). Es ist zudem bekannt, dass die Zeitspanne vom Eintrag der Radioisotope in den Boden bis zur Untersuchung einen Einfluss auf den K_d -Wert hat, da im Laufe der Zeit ein Teil der Radioisotope irreversibel an die Festphase fixiert wird (auch als Ageing-Effekt bekannt).

An dieser Stelle muss darauf hingewiesen werden, dass die Sorption von Schadstoffen im Boden in vielen Fällen im Hinblick auf das Schutzgut Grundwasser untersucht wird. Das bedeutet konkret, dass Situationen untersucht werden, in denen die Schadstoffe in hohen Konzentrationen infolge von Unfällen oder fahrlässiger Deponierung in der Umwelt vorliegen und der Sanierungsbedarf zum Schutze des Grundwassers abgeschätzt werden muss. Im Vergleich zur hier behandelten Fragestellung werden für derlei Situationen der vertikale Transport hoher Schadstoffkonzentrationen durch die vadosa Zone hin zum gesättigten Grundwasser betrachtet, wobei auch Gesteinsschichten, die bodenkundlich dem C-Horizont entsprechen, berücksichtigt werden. Im Hinblick auf die Schadstoffaufnahme durch Pflanzen aus Böden sind diese Kenndaten nur bedingt übertragbar. Abhängig von der Zugehörigkeit zu einer bestimmten Forschungsdisziplin wird beispielsweise das in dieser Arbeit untersuchte Iod als inerter Tracer (Hydrogeologie, wo der Transport von Iod in Aquiferen, die nahezu keine organische Substanz enthalten, betrachtet wird (siehe auch Schwehr, Santschi et al., 2005), oder aber als an Böden sorbierendes Element aufgefasst (siehe auch Ashworth, 2009). Der Forschungsstand zum Verhalten von Iod im Boden wird in Kapitel 3 ausführlicher dargestellt.

Wie bereits erwähnt, hängt der K_d -Wert stark von den physikochemischen Eigenschaften der Radioisotope, den Bodeneigenschaften und den Umweltbedingungen ab. Daher ist in der Literatur die Variabilität der K_d -Werte immens: zwischen Minimal-Werten und Maximal-Werten können bis zu 5 Größenordnungen liegen (siehe Tabelle 1, IAEA 2009).

Tab. 1: Überblick über Verteilungskoeffizienten unterschiedlicher Radioisotope für Böden (über unterschiedliche Bodentypen gemittelt) (modifiziert nach IAEA 2009)

Element	Verteilungskoeffizient/ K_d -Wert		
	Geometrischer Mittelwert	Minimal-Werte	Maximal-Werte
<i>Endlagerungs-relevant</i>			
Uran	$2,0 \times 10^2$	$7,0 \times 10^{-1}$	$6,7 \times 10^4$
Plutonium	$7,4 \times 10^2$	$3,2 \times 10$	$9,6 \times 10^2$
Americium	$2,6 \times 10^3$	$5,0 \times 10$	$1,0 \times 10^5$
Technetium	$2,3 \times 10^{-1}$	$1,0 \times 10^{-2}$	$1,1 \times 10$
Iod	6,9	$1,0 \times 10^{-2}$	$5,8 \times 10^2$
<i>Freisetzungen bei Unfällen</i>			
Strontium	$5,2 \times 10$	$4,0 \times 10^{-1}$	$6,5 \times 10^3$
Cäsium	$1,2 \times 10^3$	4,3	$3,8 \times 10^5$
<i>Natürlich vorkommende Radioisotope</i>			
Thorium		$3,2 \times 10^3*$	$8,9 \times 10^4*$
Radium	$2,5 \times 10^3$	$1,2 \times 10$	$9,5 \times 10^5$
Polonium	$2,1 \times 10^2$	$1,2 \times 10$	$7,0 \times 10^2$

*nach (Till und Grogan 2008)

Folglich ist die Nutzung von Literaturangaben zu K_d -Werten für die Modellierung von Stofftransportprozessen mit hohen Unsicherheiten behaftet (Barthel und Geißmann 2006). Im Hinblick auf die Expositionsabschätzung bei der Endlagerung hoch radioaktiver Abfälle werden für die Darstellung der Migrationsprozesse in Böden in unterschiedlichen Ländern unterschiedlich definierte Faktoren eingesetzt. In Belgien, Spanien, Ungarn, und Schweden werden Retardationsfaktoren, die von K_d -Werten abgeleitet werden, eingesetzt; in Deutschland werden elementspezifische Migrationsraten genutzt, die aus Untersuchungen von Fall-out-Einträgen stammen (Pröhl, Olyslaegers et al. 2005).

1.4 Expositionsabschätzung bei der Endlagerung – Sicherheitsnachweis und Langzeitsicherheitsanalyse

Ebenso wie die Errichtung, der Betrieb und die Stilllegung oberirdischer kerntechnischer Anlagen nur stattfinden kann, wenn die radiologische Unbedenklichkeit nachgewiesen ist, muss für ein Endlager für radioaktive Abfälle die Sicherheit entsprechend der Genehmigungsanforderungen nachgewiesen werden. Ein besonderer Aspekt ist hierbei die zeitliche Dimension. Der aktive Betrieb der Deponie ist mit den Zeiträumen des Betriebes kerntechnischer und anderer Anlagen vergleichbar, allerdings ist die sogenannte Nachbetriebsphase – diejenige Phase, in der das Endlager seine eigentliche Funktion erfüllt – jenseits des menschliche Zeithorizonts. Nach derzeitigem Stand muss in

Deutschland die radiologische Sicherheit für einen Nachweiszeitraum von einer Million Jahre nach Verschluss des Endlagers dargelegt werden (§ 26 StandAG 2017). Dies stellt erhebliche Anforderungen an die Sicherheitsbetrachtungen und die administrativen Nachweise des angestrebten sicheren Einschlusses. Für ein Endlager müssen unterschiedliche Sicherheitsnachweise erbracht werden. In der folgenden Abbildung 5 sind die Bereiche, für die Nachweise erbracht werden müssen, schematisch dargestellt. Zum einen kann zwischen den Nachweisen für die Betriebsphase und die Nachbetriebsphase unterschieden werden, zum anderen zwischen den radiologischen Nachweisen und den nicht-radiologischen Nachweisen.

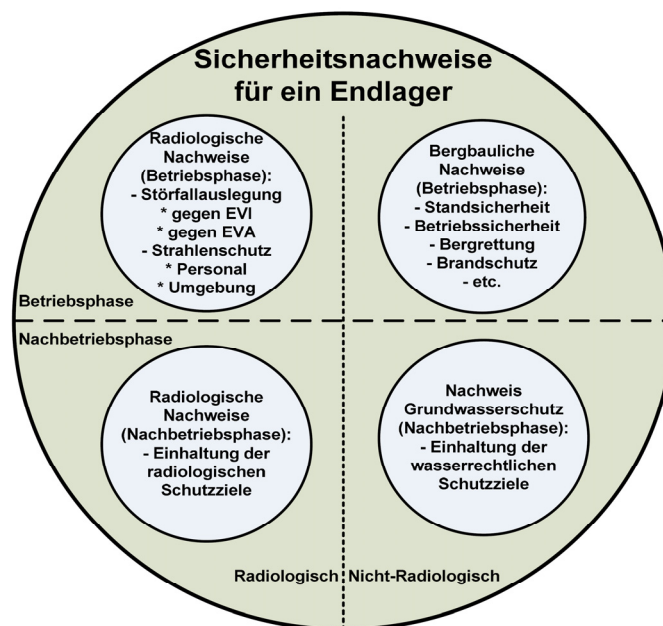


Abb. 5: Bestandteile des Sicherheitsnachweises für ein Endlager im Überblick (Müller-Lyda, Sailer et al. 2008)

Der Nachweis für die Nachbetriebsphase wird auch Langzeitsicherheitsnachweis genannt; er enthält die Langzeitsicherheitsanalyse (Mönig, Buhmann et al. 2012). Im internationalen Raum werden hier auch die Bezeichnungen „Safety Case“, „Safety Assessment“ für die Nachweise im Allgemeinen und „Safety Analysis“ für die Langzeitsicherheitsanalyse verwendet (IAEA 2012b; DAEF 2017; Schmidt, Kallenbach-Herbert et al. 2017). Es ist darauf hinzuweisen, dass diese Begriffe in unterschiedlichen Ländern nicht synonym verwendet werden, sondern die Ausgestaltung der Sicherheitsdarstellungen den jeweiligen Regelwerken und Traditionen folgt⁷. Die Langzeitsicherheitsanalyse befasst sich im Besonderen mit den radiologischen Folgen der Endlagerung. Dafür wird der potentielle Transfer von Radioisotopen aus dem Endlager

⁷ Schmidt (2017) weist darauf hin, „dass der deutsche Begriff ‚Sicherheitsnachweis‘ insofern in die Irre führt, als der ‚Safety Case‘ [...] nicht nur in Nachweis- und Genehmigungssituationen erstellt wird. Es kann sich auch um eine rein akademische Übung handeln, deren Ziel es ist, das verfügbare Handwerkszeug für die Untersuchung von Teilaspekten der Sicherheit zu erproben.“ (Siehe auch DAEF 2017).

betrachtet, die Integrität sowie das Rückhaltevermögen der technischen, geotechnischen und geologische Barrieren ermittelt und das Migrationsverhalten der Radioisotope in den

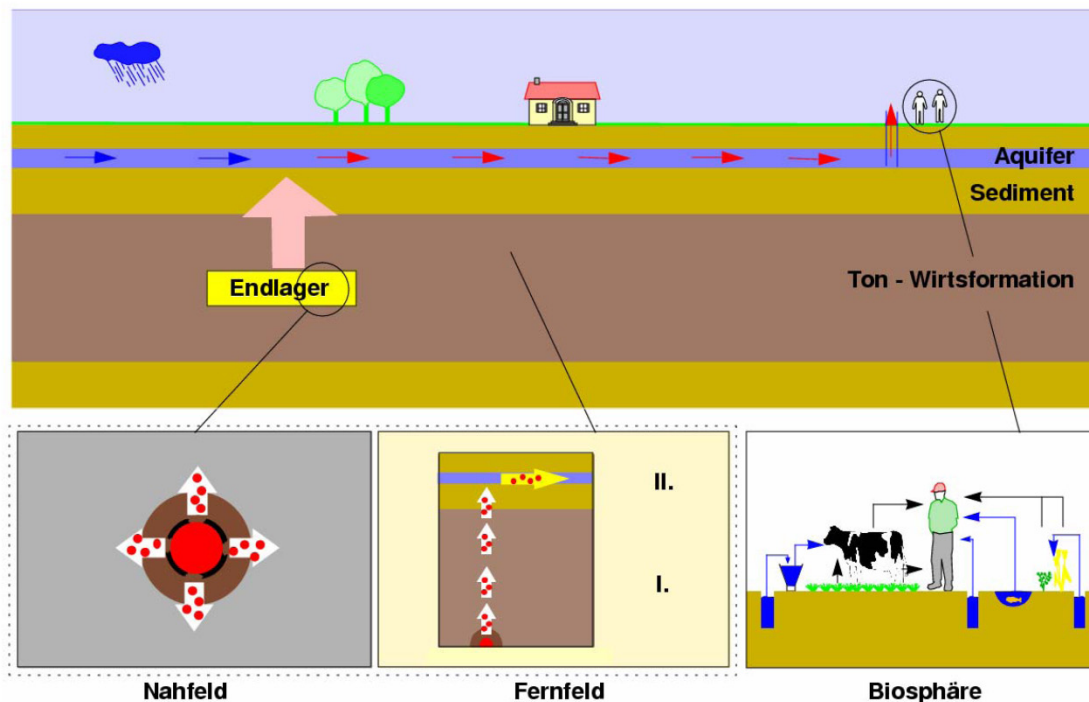


Abb. 6: Szenario der ungestörten Entwicklung eines Endlagers im Tongestein (Müller-Lyda, Sailer et al. 2008)

betroffenen Umweltkompartimenten abgeschätzt. Die Umweltkompartimente werden dazu in drei Raumbereiche unterteilt, für die die jeweils spezifischen Prozesse modelliert werden können. Man unterscheidet somit zwischen dem Nahfeld des Endlagers, dem Fernfeld und der Biosphäre. Die Abbildung 6 veranschaulicht auf schematische Weise die drei Bereiche. Als Beispiel wurde die Darstellung eines Endlagers in einer Tonsteinformation gewählt. In den Wirtsgesteinen Salz oder Kristallin verläuft die Aufteilung in die drei Raumbereiche ähnlich.

In den Nahfeld-Modellierungen werden Lösungsbewegungen im Grubengebäude, die Gebirgskonvergenz, Gasbildung und Gasausbreitung, die Temperaturentwicklung und ähnliche Prozesse modelliert. Im Hinblick auf das Verhalten der Radioisotope werden hier der radioaktive Zerfall und gegebenenfalls die Bildung von Tochternukliden, die Mobilisierung von Radioisotopen, der Transport von Radioisotopen durch Advektion, Konvektion, Dispersion und Diffusion sowie die Rückhaltung von Radioisotopen durch Löslichkeitsgrenzen und Sorption betrachtet (Buhmann, Mönig et al. 2008). In den Fernfeld-Betrachtungen spielen weiterhin der radioaktive Zerfall, die Rückhaltung von Radioisotopen durch Sorption und ebenso der Transport von Radioisotopen durch Advektion, Konvektion, Dispersion und Diffusion eine Rolle. Für die prospektive Expositionsabschätzung ist daran anschließend vor allem der Expositionspfad durch das Grundwasser in die Biosphäre hin zum Menschen und der belebten Umwelt relevant⁸. In

⁸ Auch der sogenannte Gaspfad wird mittlerweile verstärkt untersucht (BIOPROTA 2016).

Abbildung 7 ist die sukzessive Betrachtung und Modellierung des Radionuklidtransfers durch die Umweltkompartimente bzw. die sogenannten Raumbereiche dargestellt. Der für das deutsche Sicherheitskonzept wichtige Bereich des „einschlusswirksamen Gebirgsbereiches“, der für Endlagerungskonzepte definiert wird, in denen der sichere Einschluss des hochradioaktiven Abfalls vorrangig auf den Barriere-Eigenschaften des Wirtsgesteines beruht, befindet sich in dieser Raumbereichs-Anordnung zwischen Nahfeld und Fernfeld.

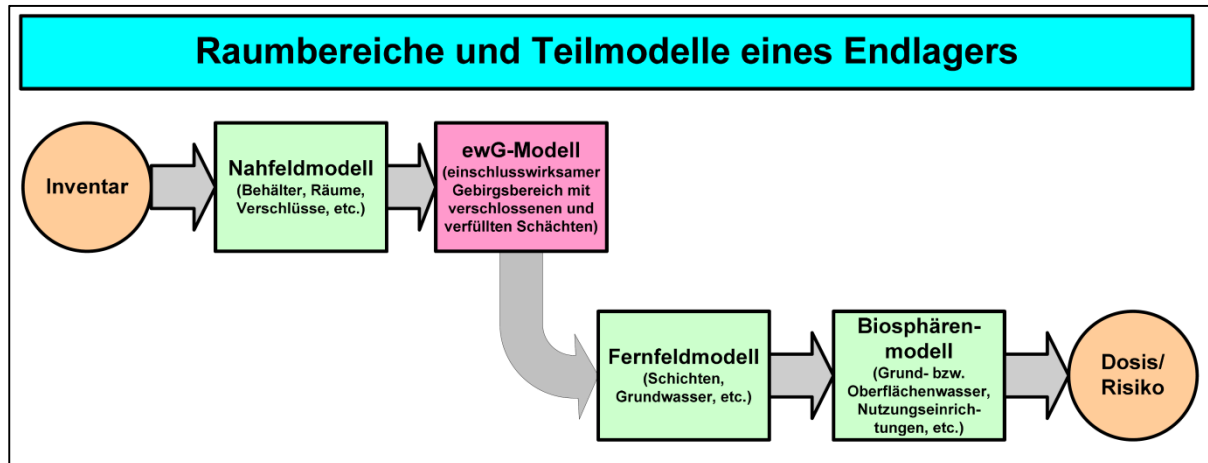


Abb. 7: Auflösung der Teilmodelle nach Raumbereichen mit ihren Komponenten (Müller-Lyda, Sailer et al. 2008).

Die unterschiedlichen denkbaren Entwicklungen in den jeweiligen Bereichen werden auch hier über Szenarien beschrieben. Ein Szenario kann als eine Art „Drehbuch“ aufgefasst werden, mit dem die relevanten Prozesse durch eine bestimmte Kombination von Eigenschaften, Ereignissen und Prozessen eindeutig charakterisiert werden (engl. Features, Events, Processes (FEP)) (Buhmann, Mönig et al. 2008). Für die unterschiedlichen Raumbereiche wurden und werden generisch und standortspezifisch ausführliche FEP-Kataloge entwickelt, in denen die jeweilig relevanten Eigenschaften, Ereignisse und Prozesse für die Modellierungsfragestellung aufgeführt werden (siehe (OECD/NEA 2000; Wolf, Behlau et al. 2012).

Die Expositionsabschätzung findet letztendlich durch die Biosphärenmodellierung statt. Die Ungewissheit über zukünftige Expositionsbedingungen stellt dabei die größte Herausforderung dar. Die Übereinstimmung der zukünftigen Expositionen potentieller Bevölkerungsgruppen mit den derzeitigen Strahlenschutz-Standards ist nur unter sehr unsicheren Annahmen zu demonstrieren. Um die sehr komplexen Transfer- und Akkumulationsprozesse der Radioisotope innerhalb der Biosphäre für unterschiedliche Gegebenheiten strukturiert abbilden zu können und eine Vergleichbarkeit der verschiedenen Schutzmaßnahmen zu ermöglichen, wurden von der IAEA in einem großangelegten Forschungsprogramm Referenzbiosphären entwickelt (siehe auch „Research Project on Biosphere Modelling and Assessment (BIOMASS)“ (IAEA 2003)). Zu den Kernpunkten der Methodologie gehört unter anderem das Erstellen des Begutachtungszusammenhangs, die Identifikation und Rechtfertigung von Biosphärensystemen, die Beschreibung der Biosphärensysteme und die Begutachtung

möglicher exponierter Gruppen. Nach der Modellentwicklung wird ein Satz von isoton-spezifischen Dosiskonversionsfaktoren berechnet. Bei einer vorgegebenen Aktivitätskonzentration im Boden oder im Grundwasser kann damit die Dosis abgeschätzt werden, die in verschiedenen Altersgruppen einer Bevölkerungsgruppe auftreten könnte. Diese Dosiskonversionsfaktoren für Biosphären (engl. Biosphere Dose Conversion Factor, BDCF) bilden den Endpunkt der Modellierung. Mithilfe dieser Konversionsfaktoren können aus den modellierten Radioisotop-Konzentrationen, die aus dem Fernfeld in die Biosphäre übergehen, potentielle Expositionen für die zukünftige Bevölkerung berechnet werden. Für die Langzeitsicherheitsbetrachtungen des Endlagers Konrad für radioaktive Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung wurden beispielsweise Dosiskonversionsfaktoren nach dem Entwurf der AVV entlang der zu erwartenden Expositionspfade berechnet (Pröhl und Gering 2002). Mittlerweile werden auch die erwartbaren klimatischen Veränderungen auf die zukünftigen Biosphären in die Modellierung von Dosiskonversionsfaktoren miteinbezogen (siehe (Texier, Loutre et al. 2003; Staudt, Semiochkina et al. 2012)).

1.4.1 Rechtliche Situation, Darlegung im Standortauswahlgesetz und in den bisherigen Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung Wärme entwickelnder radioaktiver Abfälle

Die derzeit aktuellen „Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung Wärme entwickelnder radioaktiver Abfälle“ wurden 2010 vom damaligen Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit nach ausführlichen Beratungen mit dem Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) und der Strahlenschutzkommission (SSK) veröffentlicht (BMU 2010). Dort wird festgelegt, „welches Sicherheitsniveau zur Erfüllung der atom-rechtlichen Anforderungen ein Endlager für Wärme entwickelnde radioaktive Abfälle in tiefen geologischen Formationen nachweislich einzuhalten hat“. Durch die Neuregelung des Endlagerungs- und Standortauswahlprozesses durch das Standortauswahlgesetz (StandAG) 2013 und 2017 wurde auch eine Neuformulierung der Sicherheitsanforderungen eingefordert. Im § 26 Absatz 3 des StandAG wird

„das Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit [...] ermächtigt, durch Rechtsverordnung auf Grundlage der Sicherheitsprinzipien nach Absatz 2 Sicherheitsanforderungen für die Endlagerung festzulegen. Soweit erforderlich, sind wirtsgesteinsabhängige Anforderungen für jedes der nach § 23 Absatz 1 zu betrachtenden Wirtsgesteine festzulegen. Die festzulegenden Anforderungen umfassen insbesondere: 1. Anforderungen an den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlung; 2. Anforderungen an die Rückholbarkeit und zur Ermöglichung der Bergung; 3. Anforderungen zum Sicherheitskonzept des Endlagers für die Betriebs- und Nachverschlussphase einschließlich dessen schrittweiser Optimierung. Die Verordnung muss spätestens zum Zeitpunkt der Durchführung repräsentativer vorläufiger Sicherheitsuntersuchungen nach § 14 Absatz 1 Satz 2 vorliegen. Sie ist spätestens alle zehn Jahre zu überprüfen und, soweit erforderlich, an den Stand von Wissenschaft und Technik anzupassen“.

Im StandAG selbst werden keine Angaben zu Expositions- bzw. Dosiskriterien für das angestrebte Sicherheitsniveau gemacht. International wie national wird darauf hingewiesen, dass derartige Werte nicht als Grenzwerte im klassischen Sinne verstanden werden können. In den Empfehlungen der „International Commission on Radiation Protection“ (ICRP) zur Endlagerung radioaktiver Abfälle mit langlebigen Radioisotopen (ICRP 2013) wird beispielsweise als radiologisches Kriterium für die Planung einer Abfall-Entsorgungs-Anlage 0,3 mSv pro Jahr für Einzelpersonen der Bevölkerung angegeben. Dies wird allerdings mit dem deutlichen Hinweis versehen, dass Dosis (und Risiko-)Kriterien in diesem Rahmen grundsätzlich nur zum Vergleich unterschiedlicher Entsorgungsoptionen eingesetzt werden sollten und nicht um zukünftige Gesundheitsschäden abzuschätzen (siehe auch OECD/NEA 2012).

Den internationalen Empfehlungen wird in Deutschland soweit gefolgt, als auch hier in den Sicherheitsanforderungen von 2010 (BMU 2010) darauf verwiesen wird, dass „berechnete oder abgeschätzte Risiken oder Dosen in dieser Phase [der Nachverschlussphase eines Endlagers, Anm. d. Autorin] nur als Indikatoren für das mit der Endlagerung zu erzielende Schutzniveau interpretiert werden dürfen.“ Wie oben ausgeführt, ist in Deutschland für die Betrachtung der Deponierung der hochradioaktiven Abfälle im geologischen Untergrund der „einschlusswirksame Gebirgsbereich“ definiert worden. Dies „ist der Teil des Endlagersystems, der im Zusammenwirken mit den technischen Verschlüssen [...] den Einschluss der Abfälle sicherstellt“ (BMU 2010). Weiterhin wird in Deutschland zwischen wahrscheinlichen und weniger wahrscheinlichen Entwicklungen in der Nachverschlussphase eines Endlagers unterschieden.

Zum Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen ist für die Nachverschlussphase neben der Integrität des einschlusswirksamen Gebirgsbereiches „nachzuweisen, dass für wahrscheinliche Entwicklungen durch Freisetzung von Radioisotopen, die aus den eingelagerten radioaktiven Abfällen stammen, für Einzelpersonen der Bevölkerung nur eine zusätzliche effektive Dosis im Bereich von 10 Mikrosievert im Jahr auftreten kann“ (BMU 2010). Für weniger wahrscheinliche Entwicklungen der Nachverschlussphase ist nachzuweisen, dass eine zusätzliche effektive Dosis von 0,1 mSv pro Jahr nicht überschritten wird. Im Wortlaut heißt es in den Sicherheitsanforderungen:

„6.1. Maßgeblich für den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen in der Nachverschlussphase ist die Integrität des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs. Die radioaktiven Abfälle müssen in diesem Gebirgsbereich so eingeschlossen sein, dass sie dort verbleiben und allenfalls geringe Stoffmengen diesen Gebirgsbereich verlassen können. Zusätzliche Strahlenexpositionen sollen nur in einem begrenzten Gebiet auftreten können, so dass möglichst wenige Personen einer Generation betroffen sein können.

6.2 Für die Nachverschlussphase ist nachzuweisen, dass für wahrscheinliche Entwicklungen durch Freisetzungen von Radioisotopen, die aus den eingelagerten radioaktiven Abfällen stammen, für Einzelpersonen der Bevölkerung nur eine zusätzliche effektive Dosis im Bereich von 10 Mikrosievert (Fußnote: in Anlehnung an ICRP 104, triviale Dosis) im Jahr auftreten kann. Dabei sind Einzelpersonen mit einer heutigen Lebenserwartung, die während der gesamten

Lebenszeit exponiert werden, zu betrachten.

6.3 Für weniger wahrscheinliche Entwicklungen in der Nachverschlussphase ist nachzuweisen, dass die durch Freisetzung von Radioisotopen, die aus den eingelagerten radioaktiven Abfällen stammen, verursachte zusätzliche effektive Dosis für die dadurch betroffenen Menschen 0,1 Millisievert pro Jahr (Fußnote: In Anlehnung an ICRP 81 (Risiko kleiner $10^{-5}/a$) nicht überschreitet. Dabei sind Einzelpersonen mit einer heutigen Lebenserwartung, die während der gesamten Lebenszeit exponiert werden, zu betrachten.

Für derartige Entwicklungen sind höhere Freisetzungen radioaktiver Stoffe zulässig, da das Eintreten solcher Entwicklungen eine geringere Wahrscheinlichkeit aufweist.“

Der Beurteilungswert von 10 μ Sv im Jahr, die sogenannte triviale Dosis, ist ein sehr tief angesetzter Wert. Wie bereits erwähnt, werden international 0,3 mSv pro Jahr empfohlen, genau wie der Wert, der im § 47 der StrlSchV als Grenzwert für die Ableitungen aus Anlagen gesetzt wird. Auch Experten, die von der *Kommission Lagerung hoch radioaktiver Abfallstoffe*⁹ im November 2015 angehört wurden, bewerteten „die Indikatorwerte der Sicherheitsanforderungen als sehr ambitioniert im internationalen Vergleich“. Diese Werte würden sicherstellen, „dass das radiologische Risiko für künftige Generationen nach heutigem Wissensstand vernachlässigbar klein bleibt“ (Bundestag 2015).

Darüber hinaus wird in den Sicherheitsanforderungen eine weitere Konstruktion eingeführt, die vereinfachte radiologische Langzeitaussage¹⁰, mittels derer die Sicherheit dargestellt werden kann:

„Eine vereinfachte radiologische Langzeitaussage ohne Modellierung einer Ausbreitung von Stoffen im Deck- und Nebengebirge [das bedeutet im Fernfeld, Anm. d. Autorin] ist zulässig, falls die jährlich aus dem einschlusswirksamen Gebirgsbereich freigesetzten radioaktiven Stoffe für die Bevölkerung höchstens zu 0,1 Personen-Millisievert pro Jahr für wahrscheinliche und höchstens zu 1 Personen-Millisievert¹¹ pro Jahr für weniger wahrscheinliche Entwicklungen

⁹ Die Kommission wurde im April 2014 nach § 3 StandAG vom Deutschen Bundestag und Bundesrat eingesetzt. Der Kommission gehörten zwei Kommissionsvorsitzende und 32 Mitglieder an. Sie sollte nach § 4 StandAG einen umfassenden Bericht erstellen, der auf sämtliche entscheidungserhebliche Fragestellungen zur Entsorgung hoch radioaktiver Abfälle eingeht. Die Kommission sollte auch das StandAG selbst einer Prüfung unterziehen und dem Bundestag und Bundesrat Handlungsempfehlungen vorlegen. Sie hat am 22. Mai 2014 erstmals getagt, am 28. Juni 2016 wurde der Abschlussbericht veröffentlicht, Anfang Juli 2016 beendete die Endlagerkommission ihre Tätigkeit (<https://www.bundestag.de/endlager-archiv>) Stand 29.1.2019.

¹⁰ Zur Problematik der Bezeichnung, die auch als irreführend aufgefasst wird, siehe DAEF (2017).

¹¹ Personen-Millisievert sind ein Maß für die Kollektivdosis. Nach SSK (1984) ist die „Kollektivdosis in einer Bevölkerungsgruppe [...] das Produkt aus dem Mittelwert der effektiven Äquivalentdosis in dieser Bevölkerungsgruppe und der Anzahl der Personen dieser Gruppe. Der Zahlenwert der Kollektivdosis in einer Bevölkerungsgruppe ist die Summe aus den Zahlenwerten der effektiven Äquivalentdosen aller Personen dieser Bevölkerungsgruppen. [...] Die Klassifikation nach Bevölkerungsgruppen soll deutlich machen, dass bei der Anwendung der Kollektivdosis ein Entscheidungsspielraum vorhanden ist, welche Gruppen einbezogen werden

führen. Hierdurch wird sichergestellt, dass nur sehr geringe Gesamtmengen an radioaktiven Schadstoffen freigesetzt werden können.“

Die Strahlenschutzkommission äußerte sich im Jahre 2013 zur Expositionsmodellierung bei der Endlagerung hochradioaktiver Abfälle in einer Empfehlung zur realistischen Ermittlung von Strahlenexpositionen (SSK 2013) (siehe auch ICRP 2013) folgendermaßen:

„Die Vorhersage potentieller Strahlenexpositionen im Falle der Endlagerung hochradioaktiver Abfälle stellt die Grundlage jedweder Analyse der Langzeitsicherheit dar. Es handelt sich um Extremfälle prospektiver Ermittlung potenzieller Strahlenexposition, da ein potenzieller Radioisotop-Eintrag aus einem Endlager in die oberflächennahe Biosphäre erst in ferner Zukunft, d.h. in zehntausenden und hunderttausenden von Jahren erfolgen kann (ein menschliches Eindringen in das Endlager wird an dieser Stelle nicht unterstellt). Für diese Zeiträume sind Prognosen zu zivilisatorischen Entwicklungen, zu menschlichen Verhaltensweisen und Nutzungsformen nicht möglich. Zudem bestehen erhebliche Ungewissheiten hinsichtlich der Entwicklungen innerhalb des Endlagers, des Klimas und der hydrologischen Standortverhältnisse und – wenn auch gegenüber der vorgenannten Größen untergeordnet – bezüglich der Entwicklungen der geologischen Verhältnisse. Bei Fragen der Langzeitsicherheit haben die ermittelten Strahlenexpositionen deshalb nur noch den Charakter von Indikatorwerten, die ein relatives Maß für die Sicherheit des Endlagers darstellen, aber nicht den Anspruch einer Abschätzung tatsächlicher künftiger Strahlenexpositionen haben können.“

1.5 Motivation und Ziel der Arbeit

Wie aus dem bisher Dargestellten ersichtlich wird, ist die Expositionsabschätzung bei der Endlagerung hochradioaktiver Abfälle ein Sachverhalt, der sowohl auf der technisch-naturwissenschaftlichen Ebene als auch in seiner Rolle innerhalb des Genehmigungsverfahrens für das Endlager hochkomplex ist, und diese Komplexitäten zusätzlich miteinander verschränkt sind (Brunnengräber, Mez et al. 2012). Während eine große Anzahl von Studien zu naturwissenschaftlichen und mathematischen Fragestellungen zu Expositionsabschätzungen vorliegt, wurde die Rolle dieser Abschätzungsverfahren in Regulierungs-Prozessen bisher noch kaum untersucht. Insbesondere für den Prozess der Endlagerung radioaktiver Abfälle liegen derzeit noch keine vertieften Studien vor.

Das Ziel des ersten Teils der Untersuchung liegt daher darin, eine Übersicht über die Spannungsfelder, die beim Übergang naturwissenschaftlicher Verfahren in Regulierungsinstrumente auftreten, zu gewinnen. Im angelsächsischen Raum werden derartige Prozesse mit „policy making“ beschrieben, ein Ausdruck für den im Deutschen

sollen [...].“ In dieser Veröffentlichung empfiehlt die SSK, „die Kollektivdosis nicht in rechtliche Regelungen aufzunehmen.“

leider das deckungsgleiche Äquivalent fehlt. Als Untersuchungsmethode wurde die Evaluierung des Expertenwissens in Bezug auf die Entwicklung einer Dosisberechnungsgrundlage, bzw. der Langzeitsicherheitsanalyse eines Endlagers für radioaktive Abfälle, gewählt.

Das Ziel des zweiten Teils der Untersuchung liegt in der Innenschau der radioökologischen Expositionsmodellierung. Es ist bekannt, dass jede Modellierung nur so gut sein kann, wie die Parameter, die zur Modellierung zur Verfügung stehen. Für die Prognose der Transferprozesse über einen Zeitraum von 1 Million Jahre stellt die geeignete Parameterwahl eine außerordentliche Herausforderung dar. Eines der Radioisotope, das mit seiner hohen Halbwertszeit von 15,7 Millionen Jahren eine große Relevanz für die Langzeitsicherheit eines Endlagers hat, ist ^{129}I . Nach derzeitigem Stand werden in Deutschland 4,5 t ^{129}I mit einer Aktivität von $3 \cdot 10^{13}$ Bq als Bestandteil der Wärme entwickelnden hochradioaktiven Abfälle einzulagern sein (Müller-Lyda, Sailer et al. 2008). Die Radioisotope ^{79}Se , ^{36}Cl und ^{129}I sind aufgrund ihrer hohen Halbwertszeiten sowie ihrer hohen Löslichkeit und Mobilität diejenigen Isotope, die nicht oder wenig im Fernfeld oder der Biosphäre zurückgehalten werden, falls sie das Barriersystem des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs verlassen. In allen bisher durchgeführten Langzeitsicherheitsanalysen liefern diese Radioisotope in der fernen Zukunft die größten Beiträge zur Strahlenexposition in der Biosphäre für den potentiellen Störfall eines Endlagers.

Die Abbildung 8 veranschaulicht die prognostizierten Beiträge dieser Radioisotope an der Strahlenexposition (in mSv pro Jahr) aus endgelagerten abgebrannten Brennelementen in einem Endlager in Tonstein in der Schweiz über einen Zeitraum von etwa 10 Millionen Jahren. Weitere Abschätzungen für die potentielle Dosis aus Endlagersystemen in unterschiedlichen Wirtsgesteinen und für unterschiedliche Freisetzungsszenarien sind in Anhang A aufgeführt. Auch wenn die prognostizierten Dosen weit unterhalb der regulatorischen Anforderungen liegen, bleibt erkennbar, dass ^{129}I unter jeglichen Endlagerungs- und Freisetzungsbedingungen einen substantiellen Beitrag zur Strahlenexposition liefert.

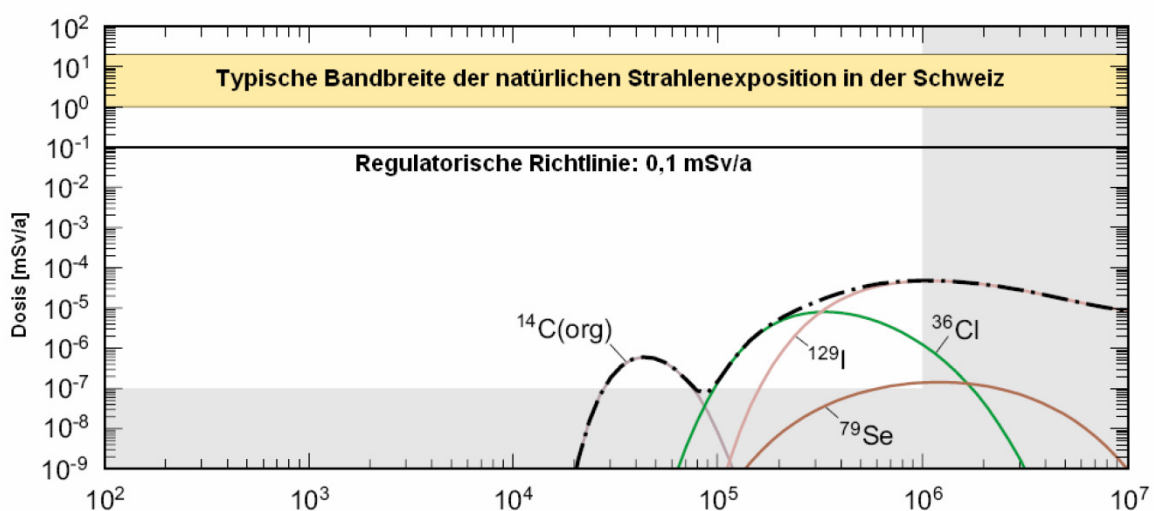


Abb. 8: Beispiel für die Dosisbeiträge von einzelnen Radioisotopen in der Langzeitsicherheitsanalyse für ein Endlager in Tonstein (Müller-Lyda, Sailer et al. 2008)

Wie bereits beschrieben, stellt für die Transferprozesse von Schadstoffen, hier Radioisotopen, im Untergrund und im Boden der K_d -Wert eine pragmatische Größe zur Quantifizierung der Sorption dar. In Parameter-Sammlungen werden die in unterschiedlichen Studien ermittelten K_d -Werte zusammengestellt. Prominente Sammlungen sind die Technischen Berichte und Dokumente der IAEA (TecRep 1616, (2009); TecDoc 472, (2010)), in denen Transferfaktoren und K_d -Werte für eine große Anzahl ökologisch relevanter Radioisotope aufgeführt werden. Die Tabelle 2 ist eine Kopie einer Tabelle der K_d -Werte für Iod aus dem Technischen Bericht 1616. Dort wird zwischen den K_d -Werten für Iodid und Iodat unterschieden, ebenso nach Korngrößenverteilung, Gehalt an organischem Material im Boden und Wassergehalt. Die in den unterschiedlichen Studien zusammengetragenen Minimal- und Maximalwerte verweisen auf eine Spannbreite des K_d -Wertes über 5 Größenordnungen. Inwieweit Mittelwerte (geometrisch wie arithmetisch), die aus solch breiten Verteilungen ermittelt wurden, Aussagekraft besitzen, ist diskussionswürdig. Darüber hinaus ist erstaunlich, dass Werte angegeben werden, für die keine Charakterisierung des Bodens vorliegt.

Tab. 2: Tabelle mit Verteilungskoeffizienten für Iod aus dem Technischen Bericht 1616 der IAEA.

K_d (I) FOR SOILS GROUPED ACCORDING TO THE TEXTURE/OM CRITERION, SPECIATION, AND ORGANIC MATTER CONTENT (L/kg). ADDITIONAL EFFECT OF WATER CONTENT ON K_d (I)

	Soil group	N	GM	GSD	AM ¹	SD	Min	Max	# ref.
All data	All soils	250	6.9	5	2.5×10^1	7.0×10^1	1.0×10^{-2}	5.8×10^2	9
	Sand	48	4.1	7	1.3×10^1	2.0×10^1	1.0×10^{-2}	1.3×10^2	7
	Loam	129	8.0	4	2.5×10^1	7.0×10^1	2.0×10^{-1}	5.4×10^2	6
	Clay	19	1.1×10^1	5	3.1×10^1	4.0×10^1	1.0	1.8×10^2	5
	Organic	11	3.2×10^1	3	8.0×10^1	1.7×10^2	8.5	5.8×10^2	4
	Unspecified	43	4.2	6	1.8×10^1	6.0×10^1	1.0×10^{-1}	3.7×10^2	2
I ⁻	All soils	157	5.4	6	2.5×10^1	7.0×10^1	1.0×10^{-2}	5.8×10^2	6
	Sand	37	3.6	8	1.3×10^1	2.0×10^1	1.0×10^{-2}	1.3×10^2	5
	Loam	74	6.5	5	2.4×10^1	7.0×10^1	2.0×10^{-1}	5.3×10^2	4
	Clay	13	6.8	6	2.1×10^1	3.0×10^1	1.0	1.2×10^2	2
	Organic	9	3.6×10^1	4	9.3×10^1	1.8×10^2	8.5	5.8×10^2	3
	Unspecified	24	2.6	6	2.0×10^1	7.0×10^1	1.0×10^{-1}	3.7×10^2	2
IO ₃ ⁻	All soils	67	7.9	4	2.3×10^1	7.0×10^1	4.0×10^{-1}	5.4×10^2	2
	Sand	6	3.6	5	1.0×10^1	2.0×10^1	4.0×10^{-1}	4.1×10^1	1
	Loam	41	8.9	4	2.9×10^1	8.0×10^1	1.0	5.4×10^2	2

	Organic	1	-	-	1.3×10^1	-	-	-	1
	Unspecified	19	7.7	5	1.6×10^1	2.0×10^1	4.0×10^{-1}	5.8×10^1	2
All data	OM < 2	75	2.3	6	7.3	1.0×10^1	1.0×10^{-2}	5.7×10^1	
	2 < OM < 5	106	9.1	3	2.0×10^1	5.4×10^1	6.0×10^{-1}	5.4×10^2	
	5 ≤ OM < 10	27	1.8×10^1	4	3.8×10^1	5.5×10^1	2.0	2.6×10^2	
	OM ≥ 10	19	3.4×10^1	3	8.7×10^1	1.7×10^2	8.5	5.8×10^2	
<i>Effect of water content on the K_d [30, 35-36]</i>									3
I^-	Sand-dry	1	-	-	2.8×10^1	-	-	-	
	Sand-wet	1	-	-	3.2×10^1	-	-	-	
	Unspecified-dry	9	1.9×10^1	6	7.5×10^1	1.5×10^2	8.0×10^{-1}	4.7×10^2	
	Unspecified-wet	9	5.5×10^2	6	1.4×10^3	2.2×10^3	8.0	7.0×10^3	
IO_3^-	Sand-dry	1	-	-	2.8×10^1	-	-	-	
	Sand-wet	1	-	-	3.5×10^1	-	-	-	
	Unspecified-dry	9	1.5×10^1	7	8.5×10^1	1.8×10^2	7.0×10^{-1}	5.5×10^2	
	Unspecified-wet	9	6.8×10^2	7	1.8×10^3	2.3×10^3	8.0	7.5×10^3	

¹Single value is given in this column if N=1.

Aus dieser Situation ergibt sich das Ziel des zweiten Teils der Untersuchung: Die hohe Spannbreite der K_d -Werte in der Literatur soll für zentraleuropäische Böden eingeengt werden. Damit soll eine „überkonservative“ Dosis-Abschätzung vermieden sowie ein verbessertes Verständnis der Migrations- und Akkumulationsprozesse von ¹²⁹Iod im Boden ermöglicht werden. Als Untersuchungsmethode werden radioökologische experimentelle Untersuchungen – Batchversuche, Säulenversuche, Sequentielle Extraktion – mit Referenzböden des Umwelt-bundesamtes durchgeführt.

Das dritte, übergeordnete Ziel der Arbeit liegt in der Identifizierung von Problemlagen, die an der Schnittstelle von Radioökologie und Regulierung bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle entstehen. Dies findet durch eine integrierende Diskussion der beiden Untersuchungsperspektiven im Anschluss an die Diskussion der Einzelergebnisse statt.

2 Erste Perspektive:

Übergang des naturwissenschaftlichen Abschätzungsmodells zum regulatorischen Instrument

2.1 Einführung und Fragestellung

Um Menschen und Umwelt vor Schäden durch ionisierende Strahlen zu schützen, wurden Regularien zum Strahlenschutz entwickelt. Die maßgeblichen Regularien in Deutschland sind die Strahlenschutzverordnung und das 2017 beschlossene Strahlenschutzgesetz. Diese orientieren sich an folgenden international gültigen Strahlenschutzgrundsätzen:

- der Rechtfertigung der Tätigkeit, durch die Strahlenexpositionen oder Kontaminationen von Mensch und Umwelt hervorgerufen werden können,
- der Dosisbegrenzung, d.h. der Einhaltung von vorgegebenen Dosisgrenzwerten oder -richtwerten,
- und der Vermeidung unnötiger Strahlenexpositionen, bzw. dem Auftrag zur Dosisreduzierung.

Es wird deutlich, dass die Ermittlung der Strahlendosis bzw. -exposition zentral für die Beurteilung strahlenschutzrelevanter Fragestellungen sowie des regelkonformen Verhaltens der beteiligten Akteure ist. Wie in der Einleitung gezeigt wurde, sind radioökologische Expositionsabschätzungsmodelle komplexe Verfahren. Nicht jedes Abschätzungsmodell verfügt über die notwendigen Voraussetzungen, um auf die Vielzahl der zu regulierenden Szenarien übertragen werden zu können. Die Beratungen und die Wege der Entscheidungsfindung darüber, welche Voraussetzungen, bzw. welche Bedingungen ein Expositionsabschätzungsmodell erfüllen muss, um normbildende Qualität zu erreichen, finden in einer Vielzahl von Prozessen statt. Dies können sein:

- Beratungen und Stellungnahmen von Experten-Gremien (Strahlenschutzkommission (SSK) und Entsorgungskommission (ESK) des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit (BMU))
- Anfragen von Behörden an Gutachter (z.B. an Brenk Systemplanung GmbH, Öko-Institut e.V., Colenco Power Engineering Ltd., etc.)
- Beratungen und Vorschlagsentwicklungen innerhalb von Behörden (BMU, Bundesamt für Strahlenschutz (BfS), Bundesamt für kerntechnische Entsorgungssicherheit (BfE))
- Beratungen und Vorschlagsentwicklung in technischen Sicherheitsorganisationen (Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit gGmbH (GRS))
- Gerichtliche Auseinandersetzungen, wenn behördliche Entscheidungen von zivilgesellschaftlichen Akteuren nicht akzeptiert werden.

Derartige Prozesse werden im angelsächsischen Raum mit dem Begriff ‚policy making‘ gefasst und Personen, die zu solchen Fragestellungen tätig sind, bezeichnen sich selbst als „policy advisor“. In der deutschen Sprache gibt es kein direktes Äquivalent zu policy, daher wird im folgenden Text der englische Begriff benutzt. Er orientiert sich an der

Definition von Böhret, Jann und Kronenwett (1988): „[es ergibt sich] eine Differenzierung des Politikbegriffs in

- „*polity* zur Bezeichnung der Organisationsform und des Normengefüges,
- *policy* zur Kennzeichnung der Inhalte, der Art und Weise der Bearbeitung der öffentlichen Angelegenheiten bzw. Aufgaben, der gestaltenden Leistung, der Problemlösung und ihrer Instrumente und schließlich in
- *politics* zur Kennzeichnung des konfliktreichen, durch Interessenkonkurrenz geprägten Prozesses der Austragung von Konflikten, der Durchsetzung von Inhalten, Zielen und Interessen“.

Auch die umweltpolitischen Fragestellungen zur Endlagerung der hochradioaktiven Abfälle können in diese drei Bereiche aufgeschlüsselt werden. Auf der *politics*-Ebene gehört der gesellschaftliche Konflikt um die Endlagerung der Abfälle aus der Kernenergienutzung zu den großen Herausforderungen und bisher ungelösten Problemen der Umweltpolitik. Auf der *polity*-Ebene wurden durch das Standortauswahlgesetz und die Neuordnung der Behördenstruktur ein aktualisiertes Normen- und Institutionsgefüge geschaffen. Der aktuelle Diskurs zur *policy*-Ebene untersucht vornehmlich die Ausweitung partizipativer Verfahren im Standortauswahlverfahren (Brans, Ferraro et al. 2015; Di Nucci, Brunnengraeber et al. 2017; Drögemüller 2018). Insgesamt trifft die rechtliche Regulierung zur Endlagerung auf erhebliche gesellschaftliche Kritik und Misstrauen gegenüber den staatlichen Institutionen. In diesem Teil der Studie soll untersucht werden, inwieweit die gesellschaftlichen Konflikte Auswirkungen auf das policy-making haben (hier die Entwicklung eines regulativ verbindlichen Expositionsabschätzungsmodells) und welche fachlichen Herausforderungen die Arbeit im science-policy-interface (SPI) ¹² (van den Hove 2007) beeinflussen.

Aus den bisher skizzierten Problemstellungen leiten sich eine Reihe von Fragen ab:

- Wie verändern sich naturwissenschaftliche Modellierungs-Entwürfe im Prozess der Verrechtlichung?
- Welche Faktoren spielen bei diesen Veränderungen eine maßgebliche Rolle?
- Welche Problemlagen – gesellschaftlich oder naturwissenschaftlich-technisch – erschweren den Übergang des Abschätzungsmodells hin zu einem Regulierungsinstrument?
- Welche maßgeblichen Unterschiede bestehen zwischen den policy-making-Prozessen für Regulierungsinstrumente für oberirdische nukleare Anlagen und für Endlagersysteme?

¹² Science-policy-interfaces (SPI) werden nach van den Hove (2007) wie folgt definiert: „social processes which encompass relations between scientists and other actors in the policy process, and which allow for exchanges, co-evolution, and joint construction of knowledge with the aim of enriching decision-making. They are implemented to manage the intersection between science and policy.“

2.2 Methode

Als Untersuchungsmethode zur Evaluierung des Expertenwissens zu den Prozessen des Übergangs eines Abschätzungsmodells zum regulatorischen Instrument wurde die Durchführung und Auswertung von Experteninterviews gewählt. Auf diese Weise konnte das implizite Prozesswissen von beteiligten Akteuren recherchiert und verfügbar gemacht werden. Diese qualitative sozialwissenschaftliche Methode entspricht einem induktiven Vorgehen, bei dem Hypothesen aus dem untersuchten Material abgeleitet werden. Häufigkeiten von genannten Sachverhalten spielen hierbei eine untergeordnete Rolle, im Gegensatz zu quantitativen Methoden wie beispielsweise Umfragen mittels Fragebögen, die meist auf die Überprüfung vorab formulierter Hypothesen abzielen.

2.2.1 Qualitative leitfadengestützte Interviews

Da diese Untersuchung auf ein besseres Verständnis der Prozesse beim Übergang der naturwissenschaftlich entwickelten Modelle in ein Regulierungsinstrument zielt, erfolgte die Evaluierung des Kontextwissens der beteiligten Experten mittels qualitativer leitfadengestützter Interviews (Gläser und Laudel 2009) (Meuser und Nagel 2009). Die Leitfragen wurden durch gezieltes Nachfragen, beispielsweise Gegenüberstellung von Aussagen anderer Interviewpartner, im Gespräch vertieft. Der Leitfaden war in mehrere Themenblöcke untergliedert, zu den jeweiligen Hauptblöcken waren je nach Funktion und institutioneller Anbindung des Experten weitere Spezialfragen zugeordnet. Beispielfragen für die fünf Hauptthemenblöcke des Leitfadens lauteten folgendermaßen:

- 1) Welche Rolle spielte die ‚*jeweilige Institution*‘ bei der Entwicklung der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zum § 47 der Strahlenschutzverordnung?
- 2) Welche Rolle spielt die ‚*jeweilige Institution*‘ bei der Entwicklung des Langzeitsicherheitsnachweises für die Endlager für radioaktive Abfälle?
- 3) Was waren bisher Hürden in der Entwicklung der Dosisberechnungsmodelle und ihrer „Verrechtlichung“?
- 4) Wie schätzen Sie die Übertragbarkeit der AVV auf Endlagerungs-Szenarien ein?
- 5) Wie schätzen Sie die weitere Entwicklung des Langzeitsicherheitsnachweises/der Expositionsabschätzungsmodellierung in Bezug auf die Endlagerung ein?
Worin sehen Sie besondere Stolpersteine?

Nach dem ersten Entwurf des Leitfadens wurde ein Informations- bzw. Vorgespräch mit einem Experten geführt, um die Tauglichkeit des Leitfadens zu überprüfen. Parallel zu den Interviews wurden zusätzlich zwei Informationsgespräche mit Experten aus dem ENTRIA-Verbundprojekt während und nach der Erhebungsphase geführt, um zu

überprüfen, ob in den bisherigen Interviews bereits eine Sättigung der Problembeschreibung¹³ erreicht war. Es zeigte sich, dass die Experten in der Darstellung der Hauptproblemfelder größtenteils übereinstimmten.

2.2.2 Befragte Personen

Um einen weiten Betrachtungskreis der policy-making-Prozesse zu erfassen, wurden Interviews und Informationsgespräche mit Experten¹⁴ geführt, die vertiefte Erfahrungen in einem oder mehreren der folgenden Bereiche aufwiesen:

- Expositionsmodellierung im Allgemeinen
- Expositionsmodellierung speziell im Hinblick auf Endlagerungsfragestellungen
- Verrechtlichung radioökologischer Instrumente
- Politikberatung im Bereich Strahlenschutz.

Dazu wurden Personen entsprechend ihrer Expertise in den folgenden Institutionen angefragt:

- Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit
- Strahlenschutzkommission als beratendes Organ des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit
- Fachverband für Strahlenschutz e.V.
- Bundesamt für Strahlenschutz
- Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH
- Öko-Institut e.V..

Als Interviewpartner hatten sich zur Verfügung gestellt:

Dr. habil. Rainer Gellermann

Diplom-Physiker, Promotion und Habilitation. Seit 1990 in verschiedenen Unternehmen des Umweltconsultings tätig; seit 2012 Abteilungsleiter Radioökologie und Strahlenschutz bei der Nuclear Control & Consulting GmbH. Seit 2003 Mitarbeit in Ausschüssen und Arbeitsgruppen der SSK, von 2007 bis 2008 und von 2011 bis 2016 Mitglied der SSK, bis 2016 Vorsitzender des Ausschusses A3 Radioökologie.

¹³ Dies bedeutet, dass nur noch Antworten gegeben werden, die inhaltlich bereits in ähnlicher Form vorliegen.

¹⁴ Als Experte wird angesprochen, wer in irgendeiner Weise Verantwortung trägt für den Entwurf, die Ausarbeitung, die Implementierung und/oder die Kontrolle einer Problemlösung und damit über einen privilegierten Zugang zu Informationen über Personengruppen, Soziallagen, Entscheidungsprozesse, Politikfelder usw. verfügt (Meuser und Nagel, 2009).

Dr. Norbert Peinsipp

Juristisches Staatsexamen, Promotion 1975 an der Universität Heidelberg. Von 1986 bis 2007 als Ministerialrat im Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit als Leiter des Referats Strahlenschutzrecht tätig. Von 2008 bis 2013 Vorsitzender des Arbeitskreises Rechtsfragen des Fachverbandes Strahlenschutz e.V., Mitglied der International Nuclear Law Association (INLA) e.V., Autor grundlegender strahlenschutzrechtlicher Veröffentlichungen.

Prof. Dr. Rolf Michel

Diplom-Physiker, Promotion und Habilitation. Von 1984 bis 1994 Leiter der Zentraleinrichtung für Strahlenschutz der Universität Hannover, von 1994 bis 2010 Leitung des Zentrums für Strahlenschutz und Radioökologie der Universität Hannover. Von 1999 bis 2006 und seit 2008 Mitglied der SSK bzw. ihren Ausschüssen, von 2008 bis 2011 Vorsitzender der SSK, von 2012 bis 2018 Vorsitzender des SSK-Krisenstabes, Mitarbeit in zahlreichen Gremien. 2015 Bundesverdienstkreuz für die Verdienste im Strahlenschutz.

Prof. Dr. Gerald Kirchner

Diplom-Physiker, Promotion und Habilitation. Privatdozentur an der Universität Bremen, parallel Leitung der Landesmessstelle für Radioaktivität des Landes Bremen. Von 2002 bis 2012 Leitung des Fachbereiches „Strahlenschutz und Umwelt“ des Bundesamtes für Strahlenschutz, seit 2012 Leitung des Carl Friedrich von Weizsäcker-Zentrums für Naturwissenschaften und Frieden (ZNF) der Universität Hamburg. Von 1999 bis 2001 Mitglied der SSK und Vorsitzender des Ausschusses Radioökologie. Seit 2000 Mitglied der deutschen Delegation des United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR).

Dr. Ulrich Noseck

Diplom-Chemiker, Promotion. Seit 1995 bei der Gesellschaft für Reaktor- und Anlagensicherheit (GRS) gGmbH Braunschweig, Fachgebietsleiter Safety Case. Seit 2012 Lehrbeauftragter am Institut für Grundbau und Bodenmechanik, TU Braunschweig. Mitarbeit in internationalen Gremien zur Endlagerungssicherheit, wie der Integration Group Safety Case der Organisation for Economic Co-operation and Development - Nuclear Energy Agency (OECD/NEA).

Christian Küppers

Diplom-Physiker. Seit 1986 Mitarbeiter des Öko-Institutes, stellvertretender Bereichsleiter für den Bereich Nukleartechnik und Anlagensicherheit. Mitglied in verschiedenen Beratungsgremien, wie der SSK und ihren Ausschüssen, im Ausschuss „Stilllegung“ der Entsorgungskommission (ESK) sowie im Kerntechnischen Ausschuss (KTA) des BMU.

Die begleitenden Informationsgespräche fanden statt mit:

Prof. Dr. Klaus-Jürgen Röhlig

Diplom-Mathematiker, Promotion und Habilitation. Seit 2007 Professur für Endlagersysteme an der TU Clausthal. Ausgedehnte Gremientätigkeit unter anderem bei der ESK, des Radioactive Waste Management Committee (RWMC), der Integration Group for the Safety Case und der Performance Assessment Advisory Group innerhalb der OECD/NEA. Sprecher des Forschungsverbundprojektes ENTRIA.

Dr. Artur Meleshyn

Diplom-Physiker und Diplom-Radioökologe, Promotion. Seit 2010 wissenschaftliche Mitarbeit bei der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorbau (GRS) gGmbH, Braunschweig. Arbeitsschwerpunkte: Endlagerungsrelevante Eigenschaften von Bentoniten und Tonstein.

Wolfgang Neumann

Diplom-Physiker, Aufbaustudium in Medizinischer Physik und Nuklearmedizin. Seit 2008 Geschäftsführer und wissenschaftlicher Mitarbeiter der intac Beratung GmbH, Hannover. Ausgedehnte Mitarbeit in diversen Gremien, unter anderem in der „Arbeitsgruppe Optionen Rückholung (AGO)“ im Rahmen des Begleitprozesses zur Stilllegung des Bergwerkes Asse II, der „Atom- und Strahlenkommission“ des Bund für Umwelt und Naturschutz Deutschland e.V. (BUND), im Ausschuss „Abfallkonditionierung, Transporte und Zwischenlagerung“ der Entsorgungskommission des BMU sowie der Projektgruppe „Nationaler Entsorgungsplan“ im BMU.

2.2.3 Durchführung und Ablauf der Interviews

Die Kontaktaufnahme mit den Interviewpartnern erfolgte schriftlich per E-Mail, bzw. bei bereits vorhandener persönlicher Bekanntschaft auf telefonischem Wege. Die Interviewpartner wurden mittels einer schriftlichen Darstellung des Projektes und des Forschungsgegenstandes zu Inhalt und Ziel der Befragung informiert. Die Interviews fanden in den meisten Fällen an den Arbeitsplätzen der Experten statt, einmal in einem Seminarraum während einer Konferenz sowie einmal in einer Privatwohnung.

Der Verlauf der Interviews war in mehrere Phasen gegliedert: In der ersten Phase wurden die Interviewten gebeten, etwas über ihren beruflichen Hintergrund mitzuteilen, des Weiteren, seit wann sie mit dem relevanten Themenschwerpunkt bzw. den unterschiedlichen Schwerpunkten befasst sind. In der zweiten Phase wurden die Fragen des Leitfadens vorgestellt, um den Interviewpartnern einen Überblick über das Fragenspektrum zu geben. Je nach Expertise des Interviewpartners wurden unterschiedliche Fragen vertieft bzw. nicht weiter verfolgt. In dieser Phase kam der Leitfaden zum Einsatz, um gleichsam als roter Faden durch das Gespräch zu leiten.

Insgesamt zeichneten sich die Gespräche dadurch aus, dass die Befragten in ihrem Erzählfluss oft selbständig zum nächsten Leitfadenthema wechselten und wenige Sprechimpulse seitens der Interviewerin gegeben werden mussten. Zudem wurden von allen Experten Hinweise auf weitere Literatur zur Fragestellung gegeben, teilweise auch direkt bereitgestellt.

Die Interviews dauerten zwischen 45 Minuten und 100 Minuten, sie wurden per Diktaphon aufgezeichnet. Anschließend wurden sie für die Auswertung transkribiert¹⁵. Alle Teilnehmer wurden vorab über dieses Vorgehen informiert und erklärten schriftlich, mit der Aufzeichnung und Verarbeitung der Daten in anonymisierter Form für wissenschaftliche Zwecke einverstanden zu sein¹⁶. Die Interviews und Informationsgespräche wurden zwischen November 2013 und Dezember 2015 durchgeführt.

2.2.4 Auswertung der Interviews

Die Auswertung der Interviews basiert auf dem Verfahren der qualitativen Inhaltsanalyse von Gläser und Laudel (Gläser und Laudel 2009), die das Verfahren der von Mayring (Mayring und Gläser-Zikuda 2008) entwickelten Methode weiterentwickelt haben. Die Methode ermöglicht es, Texte mit Hilfe eines offenen Kategoriensystems systematisch und regelgeleitet auszuwerten (Abbildung 9).

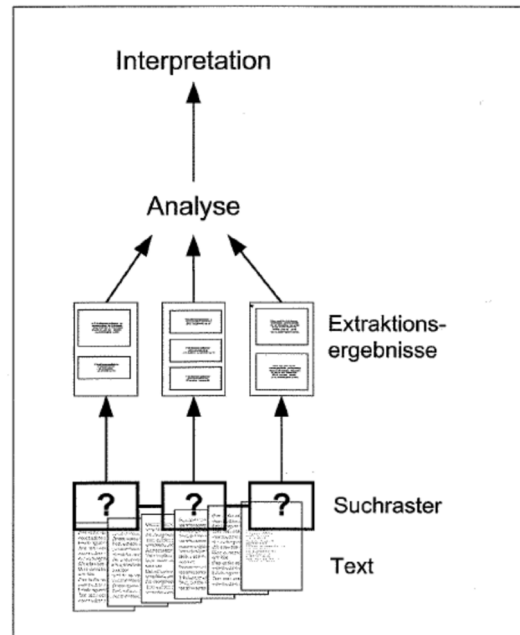


Abb. 9: Prinzip der Qualitativen Inhaltsanalyse (Gläser und Laudel 2009)

¹⁵ Die vollständigen Interview-Transkripte werden vertraulich behandelt und liegen bei der Autorin unter Verschluss.

¹⁶ Die Vorlage der Einverständniserklärung befindet sich im Anhang.

Die aufgenommenen Interviews wurden nach ihrer Transkription mit Hilfe eines Suchrasters analysiert, das unter Berücksichtigung der Zielstellung der Untersuchung entwickelt wurde (Gläser und Laudel 2009). Dieser Analyseschritt beinhaltete die Herausnahme einzelner Textpassagen – sogenannter Extraktionsergebnisse – aus dem Gesamttext, die bezüglich ihres Informationsgehaltes hinsichtlich der zentralen Fragestellung eine hohe Relevanz aufwiesen. Es bot sich an, das Suchraster mit einer gewissen Flexibilität und Offenheit zu benutzen, um den deduktiven hypothesengenerierenden Charakter der Untersuchung beizubehalten.

Das Suchraster der Inhaltsanalyse in Bezug auf die Interviews leitete sich aus folgenden Fragen ab:

- Auf welche besonderen Aspekte bei der Expositionsmodellierung wird hingewiesen?
- Auf welche besonderen Aspekte der zu regulierenden Situation wird hingewiesen?
- Welche Aspekte beschreiben die Experten als problematisch oder entwicklungsbedürftig?
- Welche Ursachen werden für die auftretenden Probleme genannt?
- Werden Lösungsmöglichkeiten für problematische Aspekte genannt, und wenn ja, welche?

2.3 Ergebnisse

Aus den Antworten und Erfahrungsberichten der Experten zu den Fragekomplexen haben sich folgende drei Spannungsfelder im Hinblick auf die Rolle der radioökologischen Expositionsmodellierung im Entsorgungsprozess als besonders relevant herauskristallisiert:

Als erstes Spannungsfeld fiel die Problematik der konservativen Modellierungsannahmen auf. Dieser Punkt wurde von allen Experten genannt, mit dem Hinweis darauf, dass dies im Zusammenhang mit den Ansprüchen zur Rechtssicherheit für behördliche Genehmigungen notwendig sei.

Als zweites Spannungsfeld zeichnete sich die Problematik der Risikokommunikation zur Expositionsmodellierung ab. Alle Experten wiesen auf die besonderen Anforderungen der Kommunikation zu den komplexen Inhalten der Expositionsabschätzung, insbesondere im Rahmen der Endlagerung, hin.

Als drittes Spannungsfeld wurde das Dilemma der Weiterentwicklung radioökologischer Expositionsabschätzungsverfahren während laufender behördlicher Genehmigungsverfahren erkannt. An dieser Stelle werden die Wechselwirkungen zwischen policy- und wissenschaftlichen Prozessen besonders deutlich.

Die Reihenfolge der Aufzählung entspricht keiner Wertung der jeweiligen Problemlagen. Vielmehr ist zu betonen, dass alle genannten Themen gleichzeitig und miteinander

verschränkt auftreten. Im Folgenden werden die drei Spannungsfelder näher aufgeführt. Sie werden in Kapitel 4 ausführlicher diskutiert.

2.3.1 Anforderungen an die Rechtssicherheit: Problematik der konservativen Annahmen gegenüber realistischen Annahmen bei der Expositionsabschätzung

Von allen Experten wurde das Problem der Rechtssicherheit der behördlichen Entscheidungen benannt, die auf den Ergebnissen der Expositionsergebnissen beruhen. Dazu werden für die Abschätzung, insbesondere bei der AVV, konservative Grundannahmen bei der Parameterwahl getroffen. Konservative Annahmen sind Annahmen, die für den jeweiligen Parameter besonders hoch oder besonders niedrig gewählt werden, um die jeweils ungünstigste Entwicklung eines Systems zu betrachten. Das sind in der Expositionsabschätzung beispielsweise besonders (unrealistisch) hohe Annahmen zur Nahrungsmittelaufnahme oder auch besonders ungünstige Transfergeschwindigkeiten von Schadstoffen in einem Umweltkompartiment, die dazu führen, dass der Schadstoff in besonders hohem Ausmaß in die Nahrungsmittelkette des Menschen gelangt und die ermittelte Exposition einen (unrealistischen) Maximalwert darstellt. Eine Beispielaussage eines Experten lautet folgendermaßen:

„Gerichtsfest bedeutet natürlich auch, dass das ganze Verfahren soweit konservativ sein soll, also zu einer systematischen Überschätzung führen sollte. Dass auch völlig klar war, dass völlig unabhängig vom Einzelfall, egal wie sich jemand individuell ernährt, wie er oder sie sich benimmt, diese [Werte] nicht überschritten werden können. Das heißt, dass für die Leute in der Umgebung klar war, egal wie du dich benimmst, und wenn du dich ein Jahr lang nackt an den Zaun kettest (was ja so eine Absurdität da drin ist), selbst dann wirst du die Dosis-Grenzwerte nicht überschreiten. Was dann auch zur Rechtssicherheit geführt hat für die Antragsteller, dass, wenn sie das nachweisen, dass sie dann noch auf der sicheren Seite sind.“

Die Experten verwiesen darauf, dass diese Parameterwahl, die die Rechtssicherheit der behördlichen Entscheidungen gewährleisten soll, Nachteile in der Betrachtung von potentiellen Endlagerungsstandorten hervorruft. So ist der Vergleich unterschiedlicher Standorte schwierig, wenn stark über- bzw. unterschätzende Annahmen für die beteiligten Transferprozesse gewählt werden. Eine Beispielaussage eines Experten lautet folgendermaßen:

„Weil ich auch beispielsweise gerade dann, wenn ich verschiedene Standorte habe, wenn ich keine realistische Konsequenzen-Analyse mehr mache, sondern es immer um Faktor 1000 überhöhe, habe ich natürlich keinerlei Möglichkeit mehr reale Unterschiede, die Vorteile des einen Standorts gegenüber dem anderen, überhaupt noch zu sehen [sic].“

2.3.2 Problematik der Risikokommunikation zur Expositionsmodellierung

Ein weiteres Spannungsfeld stellt die Kommunikation der Sicherheitsbetrachtungen dar. Einige der Experten weisen darauf hin, dass es in der Öffentlichkeit einen hohen Bedarf an Informationen hinsichtlich der Expositionsmodellierung gibt.

Es wurde darauf verwiesen, dass es einen großen Bedarf gibt, die ermittelten naturwissenschaftlichen und technischen Zahlenwerte in ihrem Kontext und ihrer Aussagekraft zu erläutern. Beispielaussagen lauten:

„Dass man dann auch in der Lage ist, das irgendwie mal so zu kommunizieren, sagen wir mal, das Verständnis der Techniker und Naturwissenschaftler zur Bedeutung dieser Rechnungen und der Nachweise dem anzunähern, was die Gesellschaft drüber denkt. Also dass man etwas mehr Verständnis in der Außenwelt dafür erzielt, was diese Zahlen, die wir da ausrechnen, eigentlich machen und was nicht und wie wichtig die sind oder wie weniger wichtig.“

„Ich meine, es ist auch gut, wenn die Techniker unter sich arbeiten können in manchen Projekten. Aber wenn es dann um solche Fragen geht wie Akzeptanz oder Kriterien zu gestalten, dass die jetzt nicht in tausend Varianten gelesen werden können, dass die mehr oder weniger eindeutig auch für die Laien sind, das ist schon wichtig, dass man da auch Soziologen fragt: ‚Wie denkt ihr?‘ Das man dann eben auch dahin forscht. Weil Techniker meinen auch ‚Wir verstehen das und das wird schon so sein‘, aber das stimmt nicht. Andere verstehen es anders, und da fängt das Problem an.“

Ein Experte beschrieb eine ‚Fixierung auf Zahlen‘, die eine besondere Problemlage bei der Kommunikation mit den Medien und der Öffentlichkeit darstellt. Eine Beispielaussage lautet:

„Und da ist natürlich noch das Wahrnehmungsproblem! [...] Wenn Sie die Fukushima-Debatte zum Beispiel verfolgen. Wieviel ist da mit Zahlen gearbeitet worden? Und weder der Journalist, der die Zahl aufgeschrieben hat, noch der Zeitungleser hat verstanden was hinter der Zahl steht. Man schreibt dann einfach Zahlen auf. [...] Es ist ein Unterschied, ob in der Asse zwölf Kubikmeter Wasser am Tag laufen oder eben doch zwölftausend Liter. Das ist ein anderer Eindruck. Also, es ist in der Berichterstattung eine gewisse Zahlenfixierung da. Und auf der anderen Seite glaubt man den Zahlen aber gar nicht.“

Die Experten gehen davon aus, dass eine sogenannte „vereinfachte radiologische Langzeitaussage“¹⁷, wie sie in den bisherigen Sicherheitsanforderungen des BMU (2010) formuliert wurde, von der Öffentlichkeit als nicht ausreichende Darstellung angenommen werden wird. Des Weiteren wird darauf hingewiesen, dass die Modellierung der Radionuklidmigration durch die Biosphäre (mittels Referenzbiosphären, siehe IAEA

¹⁷ Zur Problematik der Bezeichnung siehe DAEF 2017.

2003) zwar keinen großen Einfluss auf die Sicherheitsüberlegungen und -maßnahmen für ein Endlager hat, aber notwendig im Hinblick auf die Risikokommunikation ist. Die Art und Weise, wie die Prozesse an der Erdoberfläche berechnet werden – Prozesse, zu denen viele Menschen eine Vorstellung besitzen – würden stellvertretend für die Qualität des gesamten Abschätzungsverfahrens eintreten müssen; für ein Verfahren also, das Bereiche umfasst, für die keine Überprüfung am eigenen Wissen stattfinden kann.

Im Hinblick auf die Transparenz forderte ein Experte, dass die Berechnungen vom Quellterm bis zur Referenzperson offengelegt werden sollten, so dass gewisse Parameter-Entscheidungen nachvollzogen werden können. Weiterhin wurde auf die Notwendigkeit hingewiesen, auch die potentielle Exposition für Kinder dezidiert auszuweisen, da diese Personengruppe als besonders radiosensitiv wahrgenommen wird.

2.3.3 Dilemma der Weiterentwicklung radioökologischer Expositionsabschätzungsverfahren während laufender behördlicher Genehmigungsverfahren

Die Notwendigkeit der Rechtssicherheit für behördliche Entscheidungen, auf die die Experten verwiesen hatten, hat wiederum Implikationen auf die wissenschaftliche Weiterentwicklung radioökologischer Expositionsmodelle. Ein Experte wies darauf hin, dass während des Genehmigungsverfahrens für das Endlager für schwach- und mittelfallradioaktive Abfälle „Schacht Konrad“, das von 1982 bis 2002 stattfand und schließlich von 2002 bis 2007 noch einmal vor Gericht verhandelt wurde, die wissenschaftliche Diskussion zur Weiterentwicklung der radioökologischen Expositionsmodellierung zurückgehalten wurde:

„Aber das dokumentiert, dass bis dahin niemand in Deutschland ein Interesse daran hatte, diese internationale Entwicklung mit Eiszeiten und realistischen Modellen nachzuvollziehen. Ich bin ganz massiv davon überzeugt, dass ein wesentlicher, wenn nicht sogar der leitende Gesichtspunkt, der war, dass man das Genehmigungsverfahren für Schacht Konrad nicht in Frage stellen wollte. Das war ja abgeschlossen, da waren ja Klagen gelaufen, während dieses 20-jährigen Projektes, bis dann 2005, 2006 irgendwann dann vom Verfassungsgericht die letzte instanzliche Entscheidung getroffen war. Das man nicht durch die Änderung von Berechnungsvorschriften dieses Genehmigungsverfahren und die gerichtlichen Auseinandersetzungen beschweren wollte.“

Diese Beobachtung verweist auf eine Rückkopplung der gesellschaftlichen und besonders der policy-Prozesse auf die naturwissenschaftliche Entwicklung der Expositionsabschätzungsverfahren, die im regulativen Bereich eingesetzt werden.

3 Zweite Perspektive:

Radioökologische Parameter zu Transferprozessen von ^{129}I im Boden

3.1 Einführung

3.1.1 ^{127}I und ^{129}I in der Umwelt

Das Element Iod gehört chemisch zur Gruppe der Halogene. Außer dem stabilen Isotop ^{127}I existieren 36 instabile, das heißt radioaktive Iod-Isotope. Von besonderer ökologischer Relevanz sind dabei die Isotope ^{131}I und ^{129}I mit Halbwertszeiten von 8,02 Tagen bzw. 15,7 Millionen Jahren. Sie entstehen in größerem Umfang durch die kerntechnische Stromerzeugung als Spaltprodukte des ^{235}U und können durch Freisetzungen aus kerntechnischen und anderen industriellen Anlagen, Wiederaufbereitungsanlagen, historischen Deponien (siehe Hanford Site, Savannah River Site, USA (Gephart 2010; Zhang, Du et al. 2011)) und durch medizinische Anwendungen in die Umwelt gelangen¹⁸. In der Öffentlichkeit ist zumeist ^{131}I und die potentielle Iodblockade der Schilddrüse für den Fall eines Reaktorunfalls bekannt (siehe auch www.jodblockade.de des BMU). In dieser Arbeit liegt der Schwerpunkt der Betrachtung auf dem Verhalten von ^{129}I in der Umwelt. Kenndaten zu Radioiod wurden allerdings auch in hohem Maße aus Untersuchungen zum Verhalten von ^{131}I aus Fallout-Prozessen nach Reaktorunfällen ermittelt.

Die Forschungen zu Transferprozessen des Iod in der Umwelt finden aus zweierlei Motivationen statt: Zum einen, um Beeinträchtigungen, die durch einen Iodmangel hervorgerufen werden, vorzubeugen und zum anderen, um Gesundheitsschäden, die durch die Aufnahme freigesetzter radioaktiver Iodisotope entstehen, zu verhindern. Iod ist ein essentielles Spurenelement für die hormonelle Entwicklung vieler Lebewesen und in besonderem Maße für den Menschen. Iod wird in der Schilddrüse angereichert und dort als essentielles Spurenelement zur Synthese lebensnotwendiger Hormone (Triiodthyronin und Thyroxin) benötigt. Ein Iodmangel kann zu gesundheitlichen Problemen führen, wie der Kropfbildung oder autonomen Adenomen. Besonders problematisch ist eine Iod-Unterversorgung von Frauen während der Schwangerschaft, sie kann zu schweren geistigen Retardierungen des Kindes führen. Mittlerweile wird Iodmangel von der Weltgesundheitsorganisation (WHO) als die am meisten verbreitete vermeidbare Ursache für Hirnschäden eingestuft (WHO 2004). Da der Iodmangel zumeist infolge einer Iod-Unterversorgung mit der Nahrung entsteht, wurden und werden kontinuierlich Untersuchungen zu den Iodgehalten in Nahrungsmitteln durchgeführt. Da der Iodgehalt der Böden Einfluss auf den Iodgehalt der Pflanzen und der folgenden Glieder der Nahrungskette hat, wurde und werden auch die Iodgehalte in Böden intensiv untersucht (für Europa siehe (Fuge und Johnson 1986; Fuge 1996; Fuge und Johnson 2015)).

¹⁸ Auch bei den Kernwaffentests wurde ^{131}I und ^{129}I in die Umwelt freigesetzt, siehe Tabelle 4.

Der Eintrag des stabilen ^{127}I in den Boden erfolgt zumeist über die Atmosphäre aus den Ozeanen, die das größte Iod-Reservoir bilden. In der schematischen Darstellung des Iod-Kreislaufs auf der Erdoberfläche wird deutlich, dass die größten Umsätze der Iod-Stoffflüsse zwischen der Hydrosphäre, der Atmosphäre und der Biosphäre stattfinden, siehe Abbildung 10.

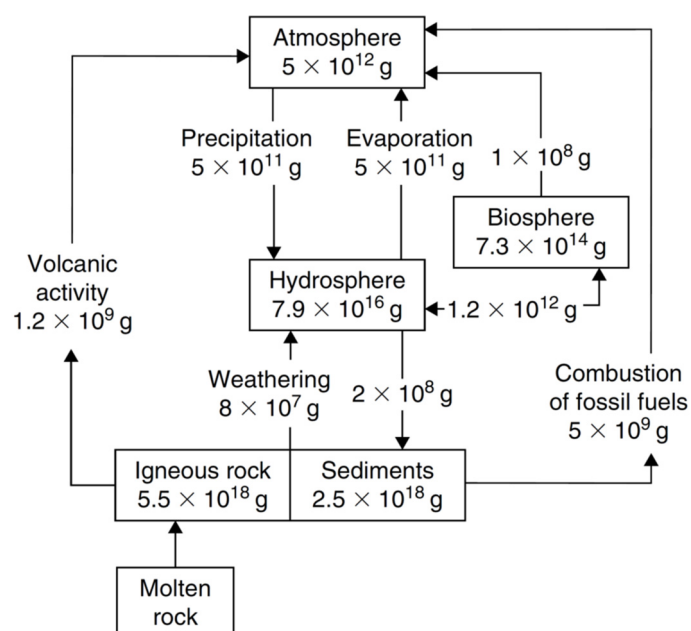


Abb. 10: Der Iod-Kreislauf der Erde (Angaben für Stoffflüsse pro Jahr) (Ito und Hirokawa 2009)

Die Iod-Konzentrationen in den anorganisch dominierten Umweltkompartimenten liegen zwischen 1 ng m^{-3} in der Atmosphäre und 40 mg kg^{-1} in Böden, siehe auch Tabelle 3. Besonders hohe Iod-Anreicherungen finden in marinen Organismen statt: So dienen Seefische und Meeresalgen mit ihren Gehalten von bis zu 6000 mg kg^{-1} (Müssig 2009; Hu und Moran 2010) als Iod-Quellen für die menschliche Nahrung.

Tab. 3: Zusammenstellung der ^{127}I -Gehalte in unterschiedlichen Umweltmedien und dem menschlichen Körper (aus Hu und Moran 2010).

System		Konzentration	Speziation
Atmosphäre		$1 - 100 \text{ ng m}^{-3}$	Partikuläres Iod, anorganisches gasförmiges Iod, (I_2 , HI, HOI); organisches Iod (CHI_3 , CH_2I_2 , $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{CH}_2\text{I}$)
Lithosphäre	Erdkruste	$0,45 \text{ mg kg}^{-1}$	
	Sedimentgesteine	$1 - 2000 \text{ mg kg}^{-1}$	

	Metamorphes und magmatisches Gestein	$< 0,1 \text{ mg kg}^{-1}$	
	Gesteinsbildende Minerale	$< 0,02 - 1,20 \text{ mg kg}^{-1}$	
	Böden	$0,5 - 40 \text{ mg kg}^{-1}$ ($1 - 3 \text{ mg kg}^{-1}$ üblicherweise)	Iodid, Iodat, und Organo-Iod
Hydrosphäre	Meereswasser	$45 - 60 \text{ } \mu\text{g l}^{-1}$	$< 1 - 25 \text{ } \mu\text{g l}^{-1}$ Iodid; $25 - 60 \text{ } \mu\text{g l}^{-1}$ Iodat
	Süßwasser	$1 - 3 \text{ } \mu\text{g l}^{-1}$	Iodid, Iodat und Organo-Iod
	Nicht-marines Oberflächenwasser	$0,01 - 73 \text{ } \mu\text{g l}^{-1}$ (Durchschnittlich $5 \text{ } \mu\text{g l}^{-1}$)	
	Niederschlag	$1 - 6 \text{ } \mu\text{g l}^{-1}$	
	Regen und Schnee	$0,5 - 20 \text{ } \mu\text{g l}^{-1}$	
	Quell- und Brunnenwasser	$3,5 - 1270 \text{ } \mu\text{g l}^{-1}$	
	Natursole und Formationswässer	$4 - 380 \text{ } \mu\text{g l}^{-1}$	
Biosphäre ^(a)	Meeresalgen	$10 - 6000 \text{ mg kg}^{-1}$	Zumeist Iodid; $< 5 \%$ Iodat; $5 - 40 \%$ Organo-Iod
	Braunalgen	$100 - 6000 \text{ mg kg}^{-1}$	
	Chlorophyteen	$21 - 130 \text{ mg kg}^{-1}$	
	Fische und Mollusken	$0,2 - 6,0 \text{ mg kg}^{-1}$	
	Terrestrische Pflanzen	$< 1 \text{ mg kg}^{-1}$; $0,22 - 6,9 \text{ mg kg}^{-1}$	
Menschen	Schilddrüse	$50 - 5000 \text{ mg kg}^{-1}$	
	Gewebe, außer Schilddrüse	$< 1 \text{ mg kg}^{-1}$	
	Muttermilch europäischer Frauen	$95 \pm 60 \text{ } \mu\text{g l}^{-1}$	
	Urin	Optimal bei $100 - 200 \text{ } \mu\text{g l}^{-1}$ für Iodversorgung	Zumeist Iodid; Organo-Iod

^(a) Alle Angaben für Iod in biologischen Proben sind als Masse pro Trockenmasse angeben.

Die Gehalte von ^{127}I in Böden liegen europaweit zwischen 2 und 71 mg kg^{-1} in Oberböden mit einem Median von 4 mg kg^{-1} . In Unterböden wurden Gehalte zwischen 2 und 92,5 mg kg^{-1} gemessen, mit einem Median von 3,4 mg kg^{-1} (bei einer Nachweisgrenze der ICP-MS bei 2 mg kg^{-1}) (Salminen 2005). Neuere Untersuchungen an Böden in Deutschland zeigen eine Spannweite von 1 - 13 mg kg^{-1} für Böden bei einer Tiefe von 0 - 30 cm und 0,4 - 14 mg kg^{-1} für Böden von 30 - 50 cm Tiefe (Schwinger 2014).

Die Mobilität des Iods in der Umwelt wird hauptsächlich durch die chemische Form bestimmt. Die Iod-Spezies in Böden sind vor allem Iodid (I^-), Iodat (IO_3^-) (siehe Abbildung 11) und Organo-Iod (OI)¹⁹.

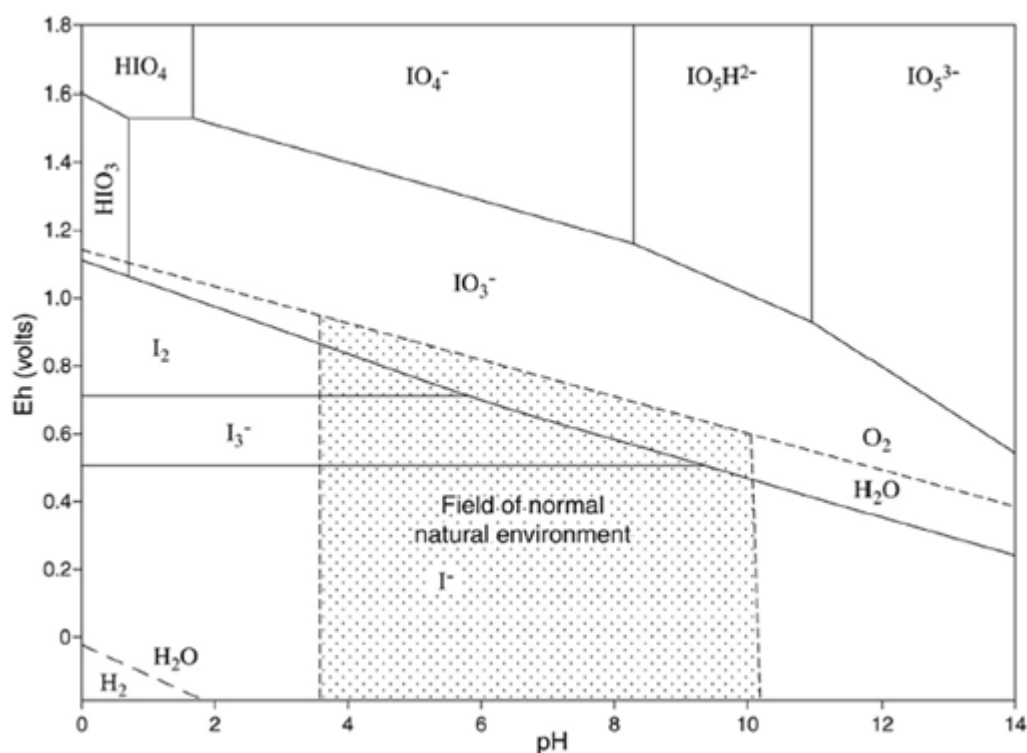


Abb. 11: Eh/pH-Diagramm für Iod (Fuge und Johnson 2015)

Die Umwandlungen der Spezies ineinander hängt von einer Vielzahl von Faktoren ab, wie dem Redoxpotential, dem pH-Wert, dem Vorhandensein organischen Materials und/oder Eisen- und Manganoxiden als auch mikrobieller Aktivität (Xu, Miller et al. 2011). Die anionischen Spezies I^- und IO_3^- zeigen eine hohe Mobilität im terrestrischen Untergrund. Daher ist bei Sanierungsfällen, in denen radioaktives Iod in die Umwelt gelangt ist, oder bei abzudichtenden Deponien das Verhalten dieser Spezies ausschlaggebend für die Wahl der Sanierungsmaßnahmen bzw. der Sicherheitsvorkehrungen. In der Literatur zur Endlagerung wird vornehmlich auf die

¹⁹ Der Begriff Organo-Iod beschreibt im Rahmen der vorliegenden Arbeit Iod, das an organische Bodensubstanz gebunden vorliegt. Der Begriff schließt atmosphärisch vorliegende Verbindungen wie Triiodmethan, Diiodmethan oder Iodopropan nicht mit ein, für die der Begriff 'organisches Iod' in der Literatur ebenfalls eingesetzt wird.

Spezies I^- und IO_3^- verwiesen (Poinssot und Geckeis 2012). Inwieweit organisch gebundenes Iod eine Senke darstellt, das heißt als Spezies, die zur Immobilisierung des Iod in der Umwelt führt, oder demgegenüber als Quelle zu betrachten, ist noch aktiver Gegenstand der Forschung (Xu, Zhang et al. 2011).

^{129}I wird in der Natur auf zwei Arten gebildet: Zum einen als kosmogenes Radionuklid über Wechselwirkungen der energiereichen Teilchen der kosmischen Strahlung mit Xenon in den oberen Schichten der Atmosphäre und zum zweiten als geogenes Radioisotop durch die Spontanspaltung von ^{238}U . Es zerfällt mit einer Halbwertszeit von 15,7 Millionen Jahren durch einen β^- -Zerfall über das metastabile ^{129m}Xe zu stabilem ^{129}Xe (siehe Zerfallsschema, Abbildung 12).

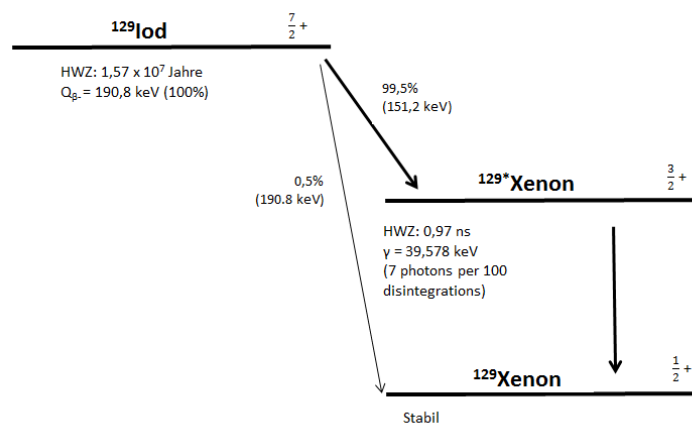


Abb. 12: Zerfallsschema von ^{129}I (Firestone and Shirley 1997)

Das Gesamtinventar an natürlichem ^{129}I auf der Erde wird auf rund 50.000 kg (326,8 TBq) geschätzt, wovon der größte Anteil in der Lithosphäre gebunden ist. Das sogenannte 'freie' Inventar beläuft sich auf etwa 262 kg (1,7 TBq) und wird wie das stabile ^{127}I zwischen Atmosphäre, Hydrosphäre, Pedosphäre und Biosphäre ausgetauscht (Whitehead 1984).

Das kerntechnisch erzeugte ^{129}I entsteht bei der Kernspaltung von ^{235}U und ^{239}Pu . Bereits durch die Atombombenabwürfe auf Hiroshima und Nagasaki im Jahre 1945 sowie die späteren oberirdischen Kernwaffentests wurde ^{129}I in der Umwelt verteilt. In der Folge wurde das natürliche freie Inventar je nach Schätzung um 43 kg (0,28 TBq) oder 150 kg (0,98 TBq) erhöht (Hu und Moran 2010). Bei der Kernkraftwerkshavarie von Tschernobyl wurden nach unterschiedlichen Schätzungen zwischen 1,7 kg (12 GBq) und 6 kg (40 GBq) ^{129}I freigesetzt. Für den Unfall von Fukushima wird die freigesetzte Gesamtmenge an ^{129}I auf 1,2 kg geschätzt (Hou, Povinec et al. 2013). Die größten Anteile an kerntechnisch produziertem ^{129}I in der Umwelt stammen jedoch aus der Wiederaufbereitung der abgebrannten Kernbrennstoffe. Insbesondere in Westeuropa wird die Umwelt maßgeblich durch die Wiederaufbereitungsanlagen (WAA) in Sellafield in Großbritannien nahe der Irischen See sowie in La Hague in Frankreich am Englischen Kanal beeinflusst (siehe Tabelle 4).

Maßgebliche Forschung zu den Transferprozessen von ^{129}Iod insbesondere in Grundwasserleitern und Böden finden seit mehreren Jahrzehnten an den ehemaligen Plutoniums-Produktionsstätten der USA statt, die Regionen der Hanford Site und der Savannah River Site gehören zu den am stärksten radioaktiv kontaminierten Orten der Welt²⁰. (beispielhaft: (Hu, Zhao et al. 2005; Zhang, Du et al. 2010; Xu, Zhang et al. 2011; Zhang, Du et al. 2011; Kaplan, Denham et al. 2014; Xu, Kaplan et al. 2015)).

Tab. 4: Die Hauptquellen für ^{129}Iod in der Umwelt (Hu und Moran 2010).

Quelle	^{129}Iod	
	(kg)	(TBq)
Natürliche Hydrosphäre	50	0,52
Natürliche Atmosphäre	0,0005	0,000003
Oberirdische Kernwaffentests	50 - 150	0,32 - 0,96
Tschernobyl	6	0,04
Savannah River Site	32	0,21
Hanford Reservation	260	1,7
Nevada Test Site	10	0,065
(Unterirdische Kernwaffentests)		
Wiederaufbereitung von Kernbrennstoffen in Europa	5640	37
Potentiell: Endlagerung in Yucca Mountain	14400	94

Die zu deponierenden Mengen ^{129}Iod in den wärmeerzeugenden hochradioaktiven Abfällen in Deutschland werden nach einer Prognose von 2008 bei ca. 4500 kg liegen.

Tab. 5: Zu deponierende Mengen ^{129}Iod in den Wärme erzeugenden hochradioaktiven Abfällen in Deutschland (Müller-Lyda, Sailer et al. 2008).

	^{129}Iod	
	(kg)	(TBq)
Prognostizierte zu deponierende Menge in Deutschland	4500	ca. 30

²⁰ Den größten Anteil zur Kontaminationen liefern die Radioisotope $^{137}\text{Cäsium}$, $^{90}\text{Strontium}$ sowie Plutonium. ^{129}Iod stellt einen vergleichsweise geringen Anteil, siehe auch Gephart (2010).

3.1.2 Sorptionsprozesse von Iod im Boden

Wie in der Einleitung beschrieben wurde, sind für den Eintritt von ^{129}I in die Nahrungskette, neben dem direkten Konsum kontaminierten Trinkwassers der Verzehr von Pflanzen, die Iod aus dem Boden bzw. der Bodenlösung aufgenommen haben, ein wichtiger Expositionspfad. Mit ^{129}I kontaminiertes Grundwasser kann über kapillaren Aufstieg oder Beregnung der Pflanzen mit Brunnenwasser in die Böden gelangen. Für die Aufnahme von Iod durch die Pflanzenwurzel spielt seine Verfügbarkeit in der Bodenlösung eine zentrale Rolle. Die Prozesse, die das Iod im Boden durchlaufen kann, sind in der Abbildung 13 dargestellt. Die Übergänge – durch Pfeile illustriert – zwischen der festen, flüssigen und gasförmigen Phase sind: (a) Verdunstung (volatilisation), (b) Lösung (dissolution), (c) Adsorption und (d) Desorption und Lösung (dissolution) (Ashworth 2009).

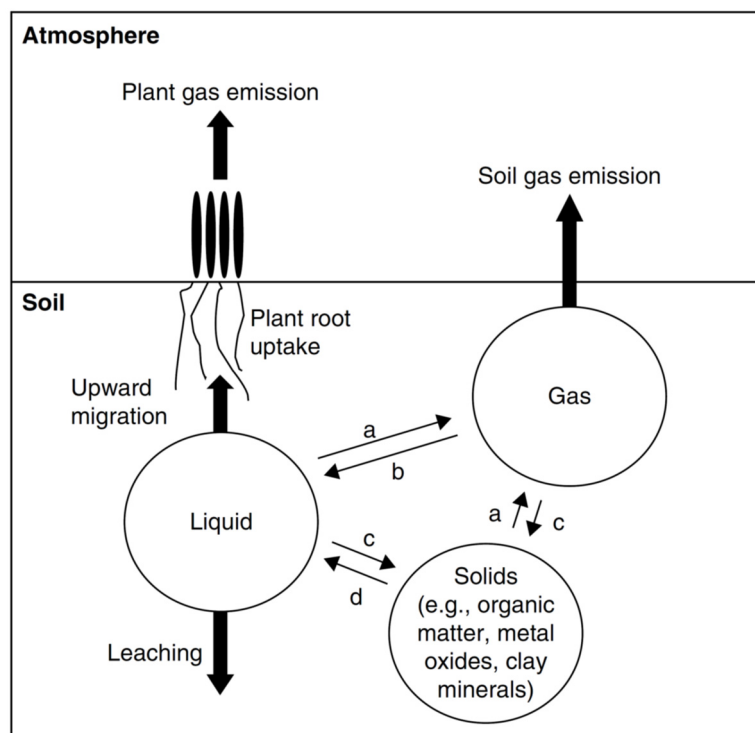


Abb. 13: Schematische Darstellung der potentiellen Übergänge von Iod im Boden-Pflanze-Luft-System: a) Verdunstung (volatilisation), b) Lösung (dissolution), c) Adsorption (adsorption), d) Desorption (desorption) (Ashworth 2009)

Wie bei vielen anderen Elementen, steuert eine Kombination aus physikalischen, chemischen und biologischen Prozessen das Verhalten des Iods im Boden. Die Sorption an die Festphase erfolgt sowohl an mineralische als auch organische Bodenbestandteile. Iod wird über einen weiten pH-Bereich an organische Substanz gebunden (Whitehead 1978; Fuge und Johnson 1986). Es kann dabei direkt an die Bodenmatrix gebunden sein

oder gelöst als iodorganische Verbindung vorliegen, wobei es in diesem Fall an Humin- und Fulvosäuren (HS, FS) fixiert ist (Reiller und Moulin 2003). Hansen et al. (2011) zeigten, dass zwischen 30 – 60 % des Iods in Sedimenten und Böden aus Nordeuropa an die organische Substanz gebunden waren, wobei bei pH-Werten $< 5,5$ das $^{127/129}\text{I}$ an HS gebunden war, während bei pH-Werten > 6 ^{129}I vorwiegend an FS gebunden vorlag. Untersuchungen mit verschiedenen spektroskopischen Methoden (XANES, EXAFS) an natürlicher organischer Substanz aus unterschiedlichen terrestrischen Milieus zeigten, dass das meiste Iod kovalent gebunden vorlag, wobei aromatisch gebundenes Iod vorherrschte (Xu, Zhong et al. 2012) (Schlegel, Reiller et al. 2006). Eine Vielzahl von Studien weist darauf hin, dass Boden-Organismen eine wesentliche Rolle bei der Iodfixierung an aromatischen Molekülen spielen (Muramatsu, Yoshida et al. 2004; Schlegel, Reiller et al. 2006; Lusa, Bomberg et al. 2015). Neben der organischen Substanz bieten Eisen- und Aluminiumoxide pH-abhängige Sorptionsplätze für I^- und IO_3^- . Whitehead (Whitehead 1974) berichtete, dass frisch ausgefallene hydratisierte Eisenoxide bei einem pH-Wert $< 5,5$ Iod substantiell sorbierten. Auch Dai (Dai, Zhang et al. 2004) fand in 20 chinesischen Böden eine positive Korrelation zwischen der Iod-Adsorption und dem Gehalt an Eisen- und Aluminiumoxiden. Darüber hinaus gibt es zahlreiche Hinweise, dass die Sorption von Iod zeitabhängig verläuft; Schmitz und Aumann (Schmitz und Aumann 1995) konnten durch die sequentielle Extraktion von ^{127}I und ^{129}I aus Böden nahe einer Wiederaufbereitungsanlage zeigen, dass nur geringe Anteile (2,5 – 4 %) des ^{127}I im Boden wasserlöslich vorlagen, wohingegen ^{129}I , das erst in den letzten Jahrzehnten atmosphärisch eingetragen wurde, in größeren Anteilen (38 – 49 %) wasserlöslich vorlag (siehe auch (Ashworth und Shaw 2006)). Auch die Beschreibung von $^{129/127}\text{I}$ -Verhältnissen in Bodenprofilen (Schwinger 2014) weisen darauf hin, dass ^{129}I sich nicht analog zu ^{127}I gleichmäßig über das Bodenprofil verteilt, sondern in den oberflächennahen Bereichen verbleibt. Das Phänomen, dass Sorptionsprozesse von Schadstoffen über längere Zeiträume stattfinden, und sich insbesondere der Charakter der Bindung ändern kann wird auch unter dem Begriff „Ageing“ gefasst.

3.1.3 Fragestellung

Für die Modellierung der Transportprozesse im Rahmen der radioökologischen Expositionsabschätzung wird der Anteil des Iods in der Bodenlösung mithilfe des Verteilungskoeffizienten (K_d -Wert) abgeleitet. Allerdings werden in der Literatur für den K_d -Wert von Iod in Böden Spannbreiten von bis zu 5 Größenordnungen angegeben (0,01 – 580 L kg^{-1} , siehe Tab. 2 in Kapitel 1). Selbst für spezifische Bodengruppen wie Böden, die reich an organischen Material sind, liegt die Variabilität der K_d -Werte immer noch im Bereich von 4 Größenordnungen (0,4 – 540 L kg^{-1} , siehe Tab. 2). Diese hohe Spannweite wird durch die Variabilität zum einen der Bodeneigenschaften, der Bodenlösungen und der Iod-Spezies, zum anderen der mikrobiellen Aktivität hervorgerufen. Allerdings beeinflusst auch die Wahl der Untersuchungsmethode die Ergebnisse zum Sorptionsverhalten. So wird von vielen Seiten darauf hingewiesen, dass die

Verteilungskoeffizienten, die durch Batchversuche ermittelt werden, die Sorption über- oder auch unterschätzen. Daher sind, wenn praktikabel, Säulenversuchen oder Freilandstudien vorzuziehen (Barthel und Geißmann 2006; Limousin, Gaudet et al. 2007). Die Rahmenbedingungen bei Batchversuchen sind weit entfernt von den Rahmenbedingungen in der Umwelt. Neben einem unrealistischen Boden/Lösungsverhältnis sowie dem unter natürlichen Bedingungen nicht vorhandenen perfektem Kontakt der Lösung zu allen Oberflächen der Bodenbestandteile, werden auch die Zeitkomponente und der Einfluss der Bodenstruktur vernachlässigt. Bei der Messung von K_d -Werten mittels Batchversuch kann zudem nicht zwischen reversiblen Prozessen der Adsorption und den irreversiblen Anteilen der Sorption durch Präzipitation oder auch Chemisorption unterschieden werden (Barthel und Geißmann 2006). Allerdings können Batchversuche schnell und kostengünstig durchgeführt werden, so dass sie oft das Mittel der Wahl für erste Abschätzungen zur Größenordnung der Sorption sind.

Aus diesen Beobachtungen und den Vorüberlegungen zur Expositionsabschätzung bei der Endlagerung hochradioaktiver Abfälle leiten sich folgende Forschungsfragen ab:

- Kann die weite Spannbreite der Angaben zu Verteilungskoeffizienten für Böden aus Datenbanken (IAEA) für mitteleuropäische Böden eingeeengt werden?
- Welche Unterschiede im Sorptionsverhalten können für unterschiedliche Böden beobachtet werden?
- Welchen Einfluss haben unterschiedliche Untersuchungsmethoden auf die Bestimmung des Verteilungskoeffizienten?

Um diese Fragen zu beantworten, wurden experimentelle Untersuchungen mit Referenzböden des Umweltbundesamtes (UBA) durchgeführt.

3.2 Experimentelles Vorgehen

Um die Sorptionsprozesse des ^{129}I an mitteleuropäischen Böden detaillierter nachzuzeichnen und den Einfluss der Untersuchungsmethode abschätzen zu können, wurden

- 1) Batchversuche (Untersuchung zur Sorption unter statischen Bedingungen (batch experiments)) sowie
- 2) Säulenversuche (Untersuchung unter dynamischen Bedingungen (column experiments)) durchgeführt.
- 3) Zusätzlich wurden sequentielle Extraktionen an mit Iod beaufschlagten Böden durchgeführt, um die beobachteten Sorptionsprozesse den unterschiedlichen Bodenbestandteilen präziser zuordnen zu können.

3.2.1 Untersuchte Böden

Die untersuchten Böden waren Referenzböden des UBA, die vom Fraunhofer-Institut für Molekularbiologie und angewandte Ökologie (IME) bereitgestellt werden, sogenannte RefeSol-Böden. Zusätzlich wurden selbstständig Oberboden- und Unterboden von einer RefeSol-Fläche in Niedersachsen und ein Boden mit sehr hohem C_{org} -Anteil (Gohre) beprobt. Die RefeSol-Böden des IME werden nach unterschiedlichen Kriterien definiert. So repräsentiert der RefeSol 1 einen Boden, der den zurzeit in der Praxis für Labortests herangezogenen Böden (z.B. LUFA 2.2, Lysimeterboden) möglichst ähnlich ist. Dieser Boden hat eine signifikante Flächenrepräsentanz für Deutschland und ist gleichzeitig für alle Untersuchungsverfahren nach der Bundesbodenschutzverordnung einsetzbar. Die RefeSol Böden 2-4 sind Böden, für die die ökologisch bedeutsamen Parameter C_{org} , pH und Textur unter Berücksichtigung labortechnischer Erfordernisse möglichst breit variieren (UBA und IME 2013). Von den RefeSol Böden 1 und 3 wurden auch sterilisierte Proben untersucht²¹. Die Böden 1, 2 und 4 stammen von Ackerflächen, der Boden 3 von einer Grünlandfläche. Der selbstbeprobte Boden aus Gohre weist mit 11,68 % einen sehr hohen C_{org} -Anteil auf, dessen Untersuchung es ermöglichen sollte, den Einfluss des organischen Materials auf die Iod-Sorption im Boden fokussiert zu betrachten. Die Böden, die von einer der Referenzflächen des IME genommen wurden, sind vornehmlich Unterboden-Proben des RefeSol 1. Sie wurden untersucht, um die unterschiedliche Sorption im Bodenprofil nachzeichnen zu können. Die Bodenparameter für die RefeSol-Böden 1 - 4 wurden vom IME bereitgestellt²², für den Boden aus Gohre

²¹ Die RefeSol Böden 1 und 3 wurden in autoklavierter und natürlicher Version 2013 geliefert, eine zweite Charge in natürlicher Version im Jahr 2015; RefeSol Böden 2 und 4 wurden ebenfalls im Jahr 2015 geliefert.

²² Angaben gemäß der jährlichen Kontrollanalyse des IME, siehe auch Weinfurter, K. et al. (2005).

sowie die Unterböden wurden die Bodenparameter im IRS bestimmt. Alle RefeSol-Böden sowie eigene Bodenproben waren homogenisiert und auf die Korngrößenfraktion < 2 mm gesiebt. In kollegialer Kooperation wurden für die RefeSol-Böden 1 - 4 die ¹²⁷Iod-Gehalte am Institut für Anorganische Chemie und der Mineralbestand per Röntgenpulverdiffraktometrie am Institut für Mineralogie ermittelt sowie die Feststoffdichte des RefeSol 1 am Institut für Bodenkunde der Leibniz Universität Hannover gemessen.

Die charakteristischen Parameter der verwendeten Böden werden in den folgenden Tabellen 6 und 7 dargestellt.

Tab. 6: Bodenparameter der RefeSol-Böden 1-4 und des anmoorigen Oberbodens aus Gohre

	RefeSol 1-A	RefeSol 2-A	RefeSol 3-G	RefeSol 4-A	Boden aus Gohre
Proben- nahmetiefe	0-20 cm	0-20 cm	0-20 cm	0-30 cm	10-20 cm
Bodentyp	Braunerde (district cambisol)	Pseudo- vergleyte Parabraun- erde (stagnic luvisol)	Braunerde (eutric cambisol)	Gley- Podsol (gleytic podsol)	An- mooriger Oberboden
Körnung (Nach DIN)					
Sand [%]	76,7	2,3	20,2	82,7	39,3
Schluff [%]	17,2	82,0	57,8	12,7	34,3
Ton [%]	6,1	15,7	22,0	4,6	26,4
qualitativer Mineral- bestand #	Quarz, Mikroclin, Albit	Quarz, Mikroclin, Albit, Muscovit	Quarz, Muscovit, Kaolinit, (minimal Feldspat)	Quarz, (minimal Feldspat)	
pH-Wert	5,41/ 4,72*	6,28	5,01	5,08	7,3
C _{org} -Anteil [%]	1,21 /0,8*	1,23	3,45	3,17	11,68
Al _{ox} [‡] [g/kg]	0,91	0,65	4,66	1,63	1,18 (Al _d ^{ae})
Fe _{ox} [‡] [g/kg]	2,32	4,84	15,95	0,59	2,38 (Fe _d ^{ae})
Mn _{ox} [‡] [g/kg]	0,26	0,35	0,68	0,12	0,15 (Mn _d ^{ae})

N [g/kg]	0,79	1,31	3,40	1,62	-
¹²⁷ Iod [ppm]	0,69	0,84	1,81	0,79	-
WHK [g/kg]	291	457	741	375	-
KAK _{eff} [mmol/kg]	7,6	45,10	126,9	29,30	-
Feststoff-dichte [g cm ⁻³]	2,60 +- 0,02	-	-	-	-

*veränderte Werte der zweiten Bodencharge von 2015; # detaillierte Ergebnisse der Röntgenpulverdiffraktometrie-Messungen (XRD) befinden sich im Anhang;
[‡] oxalatlöslich, [⌘] dithionitlöslich

Tab. 7: Bodenparameter des selbstbeprobten RefeSol-Oberbodens und der - Unterböden, Standort Neustadt am Rübenberge, 2015.

	RefeSol 1, Oberboden	RefeSol 1, Unterboden 30-80cm	RefeSol 1, Unterboden >80 cm
Körnung (Nach DIN)			
Sand [%]	72,84	75,57	95,18
Schluff [%]	22,19	20,85	3,6
Ton [%]	4,98	3,58	1,23
pH-Wert	-	4,73	4,83
C _{org} -Anteil [%]	1,01	0,60	0,02
Al _{ox} [g/kg]	0,915	1,385	0,465
Fe _{ox} [g/kg]	1,175	1,079	0,067
Mn _{ox} [g/kg]	0,241	0,055	0,006
Al _d [g/kg]	0,712	1,056	0,399
Fe _d [g/kg]	0,069	0,082	0,013
Mn _d [g/kg]	0,216	0,059	0,014
N [g/kg]	0,09	0,05	0,02
S [g/kg]	0,00	0,00	0,00
KAK _{eff} [mmol/kg]	8,6	15,9	9,7

3.2.2 Synthetisches Bodenwasser

In allen drei Versuchsdesigns wurde eine $0,01 \text{ mol L}^{-1} \text{ CaCl}_2 \times \text{H}_2\text{O}$ Lösung als synthetisches Bodenwasser eingesetzt. Für die Untersuchungen der Iodsorption wurde es mit Kaliumiodid in Konzentrationen von 10^{-8} bis $10^{-4} \text{ mol L}^{-1}$ versetzt. Die maximale Ionenstärke der Lösung betrug $0,04 \text{ mol L}^{-1}$, die minimale lag bei $0,03 \text{ mol L}^{-1}$. Als Tracer wurde ^{125}I in Form von Natriumiodid (Hersteller Hartmann Analytic) zugegeben. Für jede Versuchsreihe wurde eine Bodenlösung-Referenz als Bezugsgröße für die Aktivitätsmessungen mitpräpariert und gemessen. ^{125}I hat eine Halbwertszeit von 59,4 Tagen und zerfällt unter Elektroneneinfang über das metastabile $^{125\text{m}}\text{Te}$ zu stabilem ^{125}Te . Es hat eine detektierbare Gammalinie bei 35,5 keV. In Abbildung 14 ist das Zerfallsschema des ^{125}I dargestellt.

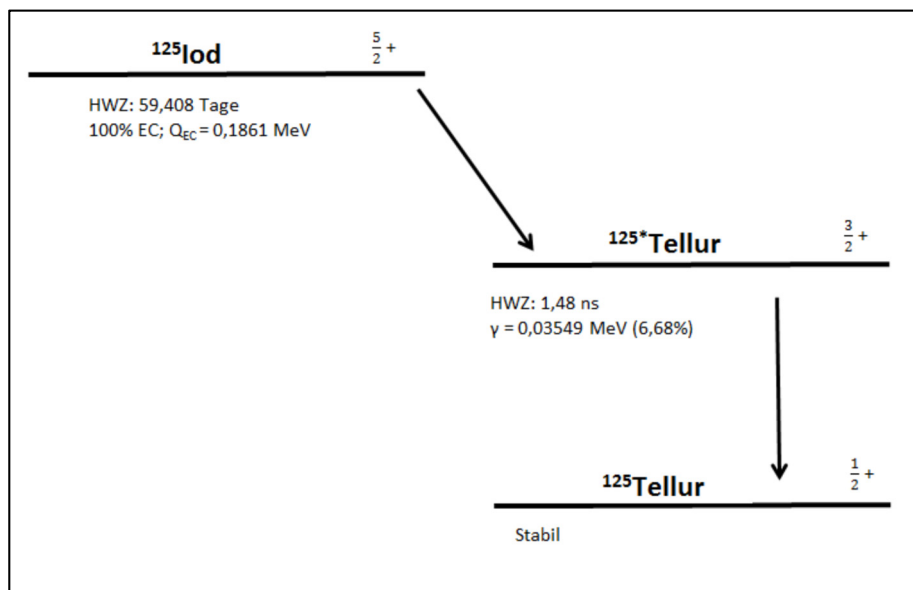


Abb. 14: Zerfallsschema von ^{125}I (Firestone and Shirley 1997)

Für die Säulenversuche wurde Tritium (^3H) als inerte Tracer eingesetzt. Tritium ist ein β^- -Strahler und zerfällt mit einer Halbwertszeit von 12,32 Jahren. Der synthetischen Bodenlösung wurde titriertes Wasser (Hersteller Perkin Elmer) zugegeben, so dass sie eine Aktivität von 10 kBq L^{-1} aufwies. Das Zerfallsschema ist in Abbildung 15 dargestellt.

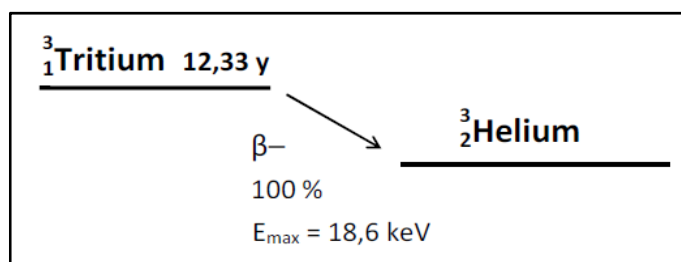


Abb. 15: Zerfallsschema von Tritium

3.2.3 Batchversuche

Batchversuche, teilweise auch Schüttelversuche genannt, sind ein häufig eingesetztes Verfahren, um die Sorption von gelösten Stoffen an einer Feststoffmatrix zu untersuchen. Da es während des Versuches keinen Austausch der Bodenlösung gibt, bzw. keinen Transport der Flüssigkeit durch ein Medium, wird auch von Sorptionsuntersuchungen unter statischen Bedingungen gesprochen. Sie werden auch bei der Ermittlung von Sorptions-Isothermen eingesetzt. Bei Batchversuchen wird eine definierte Menge eines charakterisierten Bodens mit einer definierten Menge Flüssigkeit, die die Substanz von Interesse enthält, in ein Gefäß gegeben und geschüttelt, so dass sich die beiden Phasen gut mischen. Die Versuchszeit, die zum Erreichen eines Sorptions-Gleichgewichtszustandes angesetzt wird, ist stoffspezifisch und liegt üblicherweise im Bereich von einem Tag bis zu einer Woche. Anschließend wird die flüssige Phase durch Zentrifugieren oder Filtration vom Feststoff getrennt und analysiert. Für den Verteilungskoeffizienten, der das Verhältnis der Stoffkonzentration in der Festphase gegenüber der Stoffkonzentration in der Flüssigphase darstellt, ergibt sich daraus:

$$(2) \quad K_d (\text{L} \cdot \text{kg}^{-1}) = \frac{\text{Konzentration in der festen Phase (Bq} \cdot \text{kg}^{-1})}{\text{Konzentration in der flüssigen Phase (Bq} \cdot \text{L}^{-1})}$$

In der vorliegenden Untersuchung wurden mit Batchversuchen:

1) die K_d -Werte der RefeSol-Böden 1 und 3 in natürlichem und sterilisiertem Zustand für 3 unterschiedliche Iodidkonzentrationen ermittelt, dabei wurde ein Konzentrations-spektrum von $10^{-4} \text{ mol L}^{-1}$ bis $10^{-8} \text{ mol L}^{-1}$ gewählt. Die Iodkonzentration $10^{-4} \text{ mol L}^{-1}$ wird klassischerweise in Laborversuchen eingesetzt, die Konzentration, die in der Umwelt vorliegt, liegt bei 10^{-7} bis $10^{-8} \text{ mol L}^{-1}$ (Santschi, Xu et al. 2017):

	RefeSol 1 natur	RefeSol 3 natur	RefeSol 1 steril	RefeSol 3 steril
Iodidkonz. [mol L ⁻¹]	$10^{-4}, 10^{-6}, 10^{-8}$	$10^{-4}, 10^{-6}, 10^{-8}$	$10^{-4}, 10^{-6}, 10^{-8}$	$10^{-4}, 10^{-6}, 10^{-8}$

2) die K_d -Werte der RefeSol-Böden 1, 2, 4 und dem C_{org} -reichen Boden aus Gohre die Iodidkonzentrationen von 10^{-8} bis 10^{-4} mol L⁻¹ in neun Schritten ermittelt:

	RefeSol 1	RefeSol 2	Gohre	RefeSol 4
Iodidkonz. [mol L ⁻¹]	10^{-4} , $5 \cdot 10^{-5}$, 10^{-5} , $5 \cdot 10^{-6}$, 10^{-6} , $5 \cdot 10^{-7}$, 10^{-7} , $5 \cdot 10^{-8}$, 10^{-8}	10^{-4} , $5 \cdot 10^{-5}$, 10^{-5} , $5 \cdot 10^{-6}$, 10^{-6} , $5 \cdot 10^{-7}$, 10^{-7} , $5 \cdot 10^{-8}$, 10^{-8}	10^{-4} , $5 \cdot 10^{-5}$, 10^{-5} , $5 \cdot 10^{-6}$, 10^{-6} , $5 \cdot 10^{-7}$, 10^{-7} , $5 \cdot 10^{-8}$, 10^{-8}	10^{-4} , $5 \cdot 10^{-5}$, 10^{-5} , $5 \cdot 10^{-6}$, 10^{-6} , $5 \cdot 10^{-7}$, 10^{-7} , $5 \cdot 10^{-8}$, 10^{-8}

3) die K_d -Werte der selbstbeprobten Unterböden des RefeSol 1 für die Iodidkonzentration 10^{-8} mol L⁻¹ ermittelt:

	RefeSol 1 Unterboden 30 - 47 cm	RefeSol 1 Unterboden 47- 60 cm	RefeSol 1 Unterboden 60 – 80 cm	RefeSol 1 Unterboden 80 – 100 cm
Iodidkonz. [mol L ⁻¹]	10^{-8}	10^{-8}	10^{-8}	10^{-8}

Von den jeweiligen Böden wurden jeweils 1 g in 30 ml Zentrifugenröhrchen (Polypropylen-Polymer, Fa. Nalgene) eingewogen (Waage: Sartorius LA 220 S). Pro Boden und Konzentrationsniveau wurden 3 Parallelen angefertigt (Triplets), um Messunsicherheiten zu verringern und Fehler besser erkennen zu können. Den Böden wurde 10 ml synthetisches Bodenwasser mit der entsprechenden ¹²⁷Iodidkonzentration (siehe Tabellen) und 100 µl ¹²⁵Iodid als Tracer zugegeben. Anschließend wurden die verschlossenen Zentrifugenröhrchen zwischen 16 und 24 h auf einem Schüttler bewegt. Nach dem Schüttelprozess wurden die Proben für 30 min bei 3500 rpm (revolutions per minute) bei einer Temperatur von 20 °C zentrifugiert (Hersteller Hettich; Modell Rotixa 120 R). Vom Überstand wurde 1 ml abpipettiert und auf zwei Aktivkohlefilter gegeben. Diese wurden in eine Plastikpetrischale gegeben, welche anschließend luftdicht verschlossen wurde. Die Konzentration des Iodids im Überstand wurde über die Aktivität des Tracers ¹²⁵Iod bestimmt.

Der K_d -Wert ergab sich dann gemäß der Formel

$$(3) \quad K_d = \frac{C_I - C_F}{C_F \cdot S}$$

wobei C_I die Konzentration des Iodids in der Anfangslösung (mol L⁻¹), C_F die Konzentration des Iodids im Überstand (mol L⁻¹) und S das Boden-Flüssigkeitsverhältnis (g mL⁻¹) darstellt.

3.2.4 Säulenversuche

Säulenversuche werden in der Hydrogeologie und in der Bodenkunde eingesetzt, um den Transport von Nährstoffen oder Schadstoffen durch den Boden bzw. den geologischen Untergrund zu untersuchen. Da der Transport von Substanzen auch in hohem Maße von der Sorption an der Feststoffmatrix beeinflusst wird, werden Säulenversuche auch als Untersuchungsmethode eingesetzt, um die Sorption unter dynamischen Bedingungen – dem vertikalen Durchströmen einer nicht beweglichen Festphase – zu ermitteln. Das Ziel der meisten Säulenversuche ist, die natürlichen Prozesse in der Umwelt so weit nachzubilden, wie es im Labormaßstab möglich ist. Mit Hilfe eines Säulenversuches kann die Mobilitätsabschätzung einer reaktiven Substanz direkt erfolgen, und es lässt sich darüber hinaus prüfen, ob bisherige Modellierungsannahmen gerechtfertigt sind, bzw. ob der beobachtete Transport mit dem durch ein Stofftransportmodell vorhergesagten Migrationsgeschehen übereinstimmt (Iden und Durner 2014). Grundsätzlich kann zwischen gepackten und monolithischen Säulen als auch zwischen gesättigten und ungesättigten Säulen unterschieden werden. Die Vorteile und Nachteile der jeweiligen Methode werden von Lewis (Lewis und Sjostrom 2010) ausführlich dargelegt. Beim Säulenversuch wird der Retardationsfaktor R [-] bestimmt (Van Genuchten und Wierenga, 1986), woraus gemäß Gleichung (4) bei Kenntnis der Trockenrohdichte ρ [kg L⁻¹] des Bodens und des volumetrischen Wassergehaltes θ [-] (mit θ = der Porosität n [-] bei gesättigten Verhältnissen) ein K_d -Wert [L kg⁻¹] bestimmt werden kann. Auch diese Gleichung basiert auf der Grundannahme eines linear (konzentrationsunabhängig) sorbierenden Stoffes.

$$(4) \quad R = 1 + \frac{\rho}{\theta} K_d$$

Für einen nicht-sorbierenden Stoff gilt: $R = 1$.

Es ist sowohl eine pulsförmige als auch eine kontinuierliche Aufgabe der Tracer und reaktiven Stoffe möglich. Im Rahmen der durchgeführten Experimente wurden an gepackten Bodensäulen unter Sättigung Durchbruchkurven mit kontinuierlicher Iodid-Zugabe ermittelt.

Die zu erwartenden Durchbruchkurven zeigen bei permanentem Auftrag im Grundsatz die in Abbildung 16 gezeigten Verläufe (Iden und Durner 2014). Der reaktive Stoff zeigt in der Beispielsgrafik beim Durchfluss von 5 Porenwasservolumina die gleiche Konzentration wie der inerte Tracer nach dem Durchfluss eines Porenwasservolumens. Der dimensionslose Retardationskoeffizient liegt folglich bei 5.

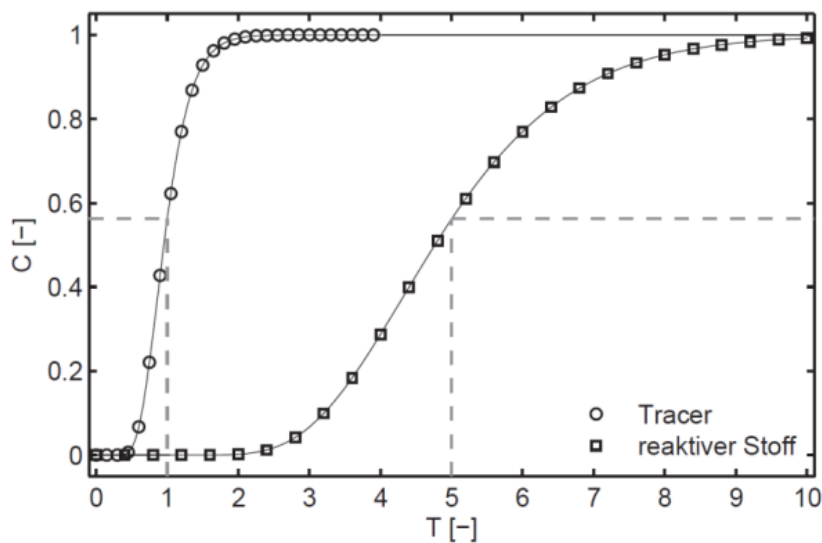


Abb. 16: Beispiel einer Durchbruchkurve bei permanenter Tracer- bzw. Schadstoffzugabe (Iden und Durner 2014)

Der Aufbau des Experiments ist in Abbildung 17a schematisch dargestellt. Die Säulen aus Plexiglas hatten einen Durchmesser von 5 cm und waren 20 cm lang. Sie wurden bis zu einer Höhe von 18 cm gefüllt. Um das Ausfließen von Bodenmaterial zu verhindern, wurde zuerst eine dünne Schicht Quarzwolle eingegeben, darauf eine Schicht Quarzsand. Auf diese Filterschicht wurde der gestörte und aufgeschlammte Boden gegeben. Den Abschluss bildete wieder eine Quarzsandschicht, die die Bildung von „preferential flow“, also die Bildung von bevorzugten Fließwegen durch das direkte Eintropfen der Flüssigkeit auf den Boden, verhindern sollte. Die Masse des Bodens in den unterschiedlichen Säulen lag zwischen 600 und 700 g, die Porosität lag bei 0,4 oder 0,3. Das synthetische Bodenwasser wurde im Überstand aufgegeben, der Flüssigkeitszulauf wurde entlang des Auslaufes gesteuert, er lag zwischen 0,9 und 0,3 ml/min. Die Bodensäulen wurden mit Alufolie lichtdicht verpackt, um eine Steigerung der mikrobiellen Aktivität zu verhindern.

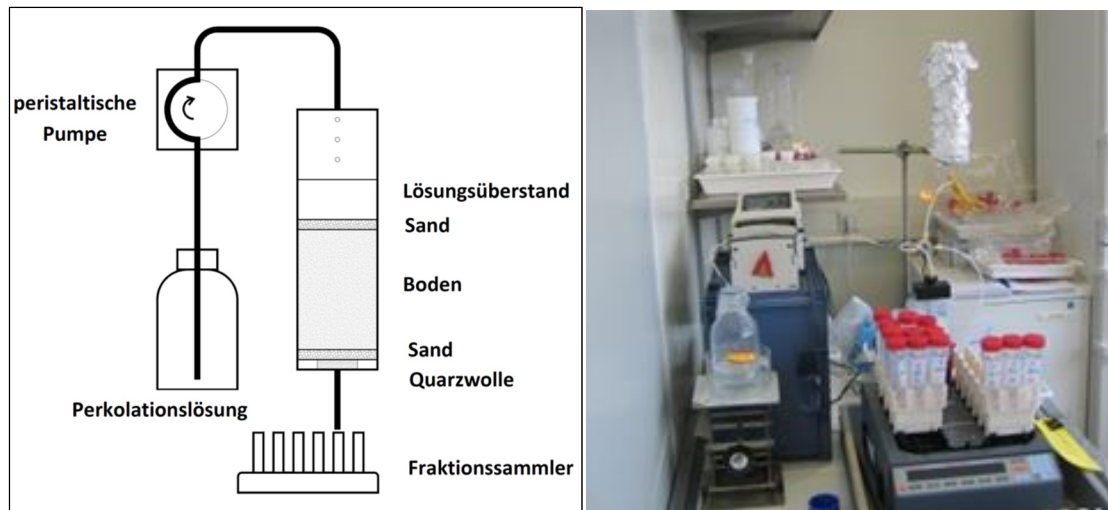


Abb. 17: a) Schema des Säulenaufbaus, b) Versuchsaufbau im Labor

Zunächst wurde der Durchbruch des inerten Tracers, d.h. der mit Tritium versetzten Bodenlösung ermittelt. Anschließend wurde die Perkolation mit der iodidhaltigen Bodenlösung durchgeführt, um die Retardation durch die Sorptionsprozesse unter Transportbedingungen zu erfassen.

Es wurden Säulenversuche mit dem RefeSol 1 des UBA mit vier unterschiedlichen Iodidkonzentrationen durchgeführt:

	RefeSol 1
Iodidkonz. [mol L ⁻¹]	10 ⁻⁴ , 10 ⁻⁶ , 10 ⁻⁷ , 10 ⁻⁸

3.2.5 Sequentielle Extraktion

Die sequentielle Extraktion dient als analytisches Verfahren der Differenzierung verschiedener Substanzen, hier im Besonderen der Differenzierung der Sorption an unterschiedlichen Phasen eines Bodens oder Sediments. Innerhalb der Radioökologie wird diese Methode zur Charakterisierung der Mobilität und Bioverfügbarkeit von Radioisotopen verwendet (Hou, Fogh et al. 2003; Hansen, Roos et al. 2011; Skipperud und Salbu 2015). Das Wissen darüber, in welchen Boden- oder Sedimentphasen die Radioisotope von Interesse auftreten, gibt Hinweise auf die im Boden stattfindenden Reaktionsmechanismen und die möglichen Bindungsformen. Mittels der sequentiellen Extraktion alleine ist es jedoch meist nicht möglich, eindeutige Speziation zu betreiben. Dafür werden weitere gekoppelte Analysemethoden, beispielsweise Trennungungsverfahren mit entsprechender Detektion oder spektroskopische Verfahren benötigt.

Die Wahl der Extraktionsmittel richtet sich nach den zu extrahierenden Fraktionen, welche sich nach den zu lösenden Bindungsformen richten. Unterschieden wird dabei zwischen elektrostatischen (ionischen) Bindungen, welche mit weichen Extraktionsmitteln zu lösen sind, und stärkeren Bindungen, beispielsweise kovalente Bindungen oder chemischen Komplexen, wobei härtere Extraktionsmittel eingesetzt werden. Im Rahmen der Untersuchungen zum Verhalten von Iod in den RefeSol-Böden wurden vier Extraktionsschritte vorgenommen, durch die die Bindung des Iod an vier Bodenphasen unterschieden werden konnte. Mit den Extraktionsschritten wurde zwischen dem Iod in der leicht löslichen Fraktion, der ionisch-austauschbaren Fraktion, der an organische Substanz gebundenen Fraktion und der an Metalloxide gebundenen Fraktion differenziert. Bindungen an Carbonaten wurden nicht untersucht, da die pH-Werte (< 7) der Böden auf die Abwesenheit von Carbonaten hinwiesen. Die Tabelle 8 listet die durchgeführten Schritte und die verwendeten Chemikalien und Parameter auf.

Tab. 8: Extraktionsschritte der sequentiellen Extraktion von Iod im Boden

Extraktionsschritte	Extraktionsmittel und Parameter	Gelöste Fraktion
Schritt 1	H ₂ O (dest.) Raumtemperatur 2 h	wasserlöslich
Schritt 2	1 M NH ₄ Ac Raumtemperatur 2h, pH=7	austauschbar
Schritt 3	0,3 M NaOH 80 °C 6 h	gebunden an organisches Material
Schritt 4	0,04 M NH ₂ OH·HCl 80°C 6 h, pH=3	gebunden an Metalloxide

Die Bodenproben wurden ähnlich wie in den Batchexperimenten vorbereitet: 4 g Boden wurden in Zentrifugenröhrchen mit 35,6 ml synthetischem Porenwasser (0,01 M CaCl₂-Lösung), 4 ml der 10⁻⁷ mol/L ¹²⁷Iodidlösung und 0,4 ml ¹²⁵Iodid-Tracer vermischt. Pro Boden wurden 3 Replikate angefertigt. Die Proben wurden auf einem Schütteltisch kontinuierlich bewegt, so dass das Iodid homogen verteilt im Boden vorlag. Die Kontaminationszeiten waren für die erste Versuchsreihe 1 Tag (>18 h > 24 h) und für die zweite Versuchsreihe 30 Tage. Die Proben wurden nach einem, bzw. 30 Tagen für 30 min bei 3500 rpm (revolutions per minute) bei einer Temperatur von 20 °C zentrifugiert. Der Überstand wurde dekantiert und analog zu den Batchversuchen gemessen. Durch die Subtraktion der Aktivität im Überstand von der Aktivität der Referenzprobe (ohne Boden) konnte die verbliebene Aktivität in den kontaminierten Bodenproben bestimmt werden.

Die nachfolgende Extraktion fand für die wasserlösliche und austauschbare Fraktion (Schritt 1 und 2) auf dem Schütteltisch, für die organische und metalloxidische Fraktion (Schritt 3 und 4) im Wasserbad statt. Die im Wasserbad befindlichen Proben wurden manuell geschüttelt, um eine gute Durchmischung des Extraktionsmediums mit der Festphase zu gewährleisten. Auch hier wurde entsprechend dem Verfahren der Batchversuche nach dem jeweiligen Extraktionsschritt 1 ml der Extraktionslösung auf zwei Kohlefilter in einer Petrischale gegeben, diese verschlossen und der Iodid-Gehalt über die Aktivität des Tracers ¹²⁵Iod bestimmt.

Die sequentielle Extraktion wurde an den RefeSol-Böden 1 - 4 des IME, am selbstbeprobten RefeSol 1 Unterboden und an einer Probe eines RefeSol Boden 1, der durch einen Säulenversuch kontaminiert wurde, durchgeführt (siehe Tabelle 9).

Tab. 9: Auflistung der Böden und Kontaminationsdauer

Boden	Art/ Dauer der Kontamination		
	Batch, 18 h	Batch, 30 Tage	Säulen- perkolation
Refesol 1, natur	x	x	x
Refesol 1, steril	x	x	-
Refesol 1, Unterboden 30 – 80 cm	x	x	-
Refesol 2, natur	x	x	-
Refesol 3, natur	x	x	-
Refesol 3, steril	x	x	-
Refesol 4, natur	x	x	-

3.2.6 Probenaufbereitung und Messtechnik

Die Konzentrationen des Iods in der Bodenlösung wurden über die Aktivitätsmessung des den Lösungen beigegebenen Tracers ^{125}I ermittelt. Die Gamma-Strahlung des ^{125}I in der Bodenlösung wurde mittels eines Natriumiodid (NaI)-Szintillations-Detektors (Eigenbau IRS) gemessen. Zur Aktivitätsbestimmung wurde den Proben der Batchversuche, den Eluaten der Säulenversuche und den Extraktionslösungen der sequentiellen Extraktionen jeweils 1 ml Lösung entnommen und auf zwei KohlfILTER in einer Petrischale verteilt, welche anschließend verschlossen wurde. Die Aktivität der so vorbereiteten Proben wurde im NaI- Szintillations-Detektor bestimmt. Zu jeder Batch-Versuchsreihe wurden Blanks der verschiedenen Konzentrationsniveaus hergestellt – d.h. eine Probe der synthetischen Bodenlösung mit ^{127}I iodid und ^{125}I iodid-Tracer ohne Bodenzugabe. Sie dienten als Referenz für die Aktivität der Ursprungslösung. Durch die Subtraktion der Aktivität des Überstandes von der Aktivität der Ursprungslösung konnte die Aktivität in der Festphase ermittelt werden. Die Messzeit betrug 100 Sekunden. Bei den Säulenversuchen diente eine Probe der Ursprungsp Perkulationslösung als Aktivitätsreferenz. Für die sequentiellen Extraktionen wurde die Aktivität der Extraktionslösung auf die zuvor ermittelte Aktivität der Festphase bezogen.

Die Konzentration des Tritiums, das in den Säulenversuchen als inerter Tracer eingesetzt wurde, wurde ebenfalls über die Messung der Aktivität ermittelt. Sie wurde mittels eines Flüssigkeits-Szintillations-Detektors (Liquid Scintillation Counter (LSC)) (Modell Quantulus von Perkin Elmer) gemessen. Dazu wurde 1 ml des Eluats mit 1 ml H_2O bidest und 10 ml der Szintillationsflüssigkeit (Ultima Gold AB von Sigma-Aldrich) versetzt und für mindestens 2 Minuten intensiv geschüttelt, um eine homogene Durchmischung der beiden flüssigen Phasen zu erreichen. Vor der Messung im Detektor wurden die Proben ins Dunkle verbracht, um Szintillationseffekte durch Tageslicht zu verhindern. Zusammen mit jeder Messreihe der Säuleneluats wurden zwei Blanks und die Ursprungsp Perkulationslösung als Referenz gemessen. Die Messzeit betrug 30 Minuten.

3.3 Ergebnisse

Die Ergebnisse der Untersuchungen werden in drei Abschnitten zu den jeweiligen Untersuchungsmethoden vorgestellt:

- Batchversuche
- Säulenversuche
- Sequentieller Extraktion:

3.3.1 Batchversuche

Die Ergebnisse der Batch-Experimente mit den RefeSol-Böden 1 und 3 in natürlichem und sterilisiertem Zustand für 3 unterschiedliche Iodidkonzentrationen zeigten eine Abhängigkeit des K_d -Wertes sowohl von der Iodidkonzentration in der Bodenlösung als auch von den Bodeneigenschaften²³, siehe Tabelle 10.

Tab. 10: K_d -Werte für RefeSol 1 und 3, natürlich und sterilisiert

Iodidkonz. [mol L ⁻¹]	K_d -Wert [L kg ⁻¹]			
	RefeSol 1 natur	RefeSol 3 natur	RefeSol 1 steril	RefeSol 3 steril
10 ⁻⁸	12,3 ± 0,85	36,72 ± 4,79	1,71 ± 0,46	3,2 ± 0,02
10 ⁻⁶	4,02 ± 0,07	17,01 ± 0,67	1,87 ± 0,69	2,56 ± 0,44
10 ⁻⁴	1,01 ± 0,38	2,93 ± 0,47	1,39 ± 0,58	1,35 ± 0,56

Bei nahezu allen Böden sank der K_d -Wert mit steigender Iodidkonzentration in der Lösung. Besonders bei den naturbelassenen Böden sank der K_d -Wert um einen Faktor 12 beim Anstieg der Iodidkonzentration von 10⁻⁸ mol L⁻¹ auf 10⁻⁴ mol L⁻¹. Nur für den sterilisierten Referenzboden 1 blieb der Verteilungskoeffizient über das gesamte Konzentrationsspektrum vergleichsweise einheitlich.

Außerdem konnten deutliche Unterschiede für alle Konzentrationsbereiche zwischen den sterilisierten und den naturbelassenen Böden beobachtet werden. Den größten Anstieg von einem Faktor 10 zeigte der Referenzboden 3. Auch zwischen den beiden Bodenarten waren Unterschiede erkennbar, für die Iodidkonzentrationen 10⁻⁶ mol L⁻¹ und 10⁻⁸ mol L⁻¹ wies RefeSol 3 höhere K_d -Werte als RefeSol 1 auf, siehe auch Abbildung 18.

²³ Die dargestellten Unsicherheiten beziehen sich auf die aus den Triplet-Messungen ermittelten Abweichungen vom Mittelwert.

K_d-Werte für RefeSol 1 und 3, natur und steril, bei ansteigender Iodidkonzentration

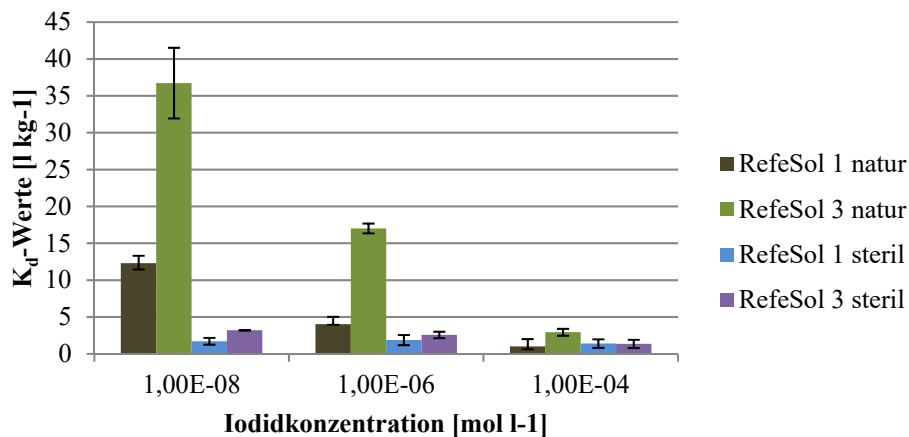


Abb. 18: K_d-Werte für RefeSol 1 und 3, natürlich und sterilisiert

Um den Einfluss der Iodidkonzentration der Bodenlösung auf die Böden präziser nachzeichnen zu können, wurden für 4 Böden mit unterschiedlicher Korngrößenverteilung und unterschiedlichen Gehalten an organischem Material in kleineren Konzentrationsintervallen Batchversuche durchgeführt. Die Ergebnisse bestätigen die vorangegangenen Beobachtungen und geben Hinweise auf die Abhängigkeit des Verteilungskoeffizienten von den Bodeneigenschaften, siehe Tabelle 11.

Tab. 11: K_d-Werte für 4 unterschiedliche Böden

Iodidkonz. [mol L ⁻¹]	K _d -Wert [L kg ⁻¹]			
	RefeSol 1	RefeSol 2	Gohre	RefeSol 4
10 ⁻⁸	16,41 ± 5,40	91,30 ± 26,12	64,59 ± 0,87	72,49 ± 22,29
5*10 ⁻⁸	7,98 ± 1,44	25,16 ± 4,82	69,33 ± 2,20	21,12 ± 2,88
10 ⁻⁷	4,88 ± 0,51	8,52 ± 4,62	60,22 ± 4,49	9,63 ± 1,92
5*10 ⁻⁷	2,31 ± 0,32	4,25 ± 0,66	49,96 ± 2,39	4,24 ± 0,14
10 ⁻⁶	1,29 ± 0,18	2,70 ± 0,24	47,52 ± 0,42	2,75 ± 0,43
5*10 ⁻⁶	1,06 ± 0,10	1,67 ± 0,13	6,95 ± 0,47	1,89 ± 0,20
10 ⁻⁵	0,54 ± 0,09	1,44 ± 0,10	3,07 ± 0,49	1,50 ± 0,19

$5 \cdot 10^{-5}$	$0,30 \pm 0,30$	$0,60 \pm 0,11$	$0,80 \pm 0,23$	$0,87 \pm 0,18$
10^{-4}	$0,23 \pm 0,33$	$0,57 \pm 0,29$	$0,41 \pm 0,06$	$0,62 \pm 0,19$

Die Ergebnisse der zweiten Batch-Experiment-Folge zeigten, dass die Böden mit hohem Gehalt an organischer Substanz und/oder Schluff, d.h. der Boden aus Gohre und die RefeSol-Böden 2 und 4, im Konzentrationsbereich 10^{-8} mol L⁻¹ die höchsten Verteilungskoeffizienten aufwiesen. Sie überschritten die Verteilungskoeffizienten aus dem Konzentrationsbereich 10^{-4} mol L⁻¹ um mindestens das Hundertfache.

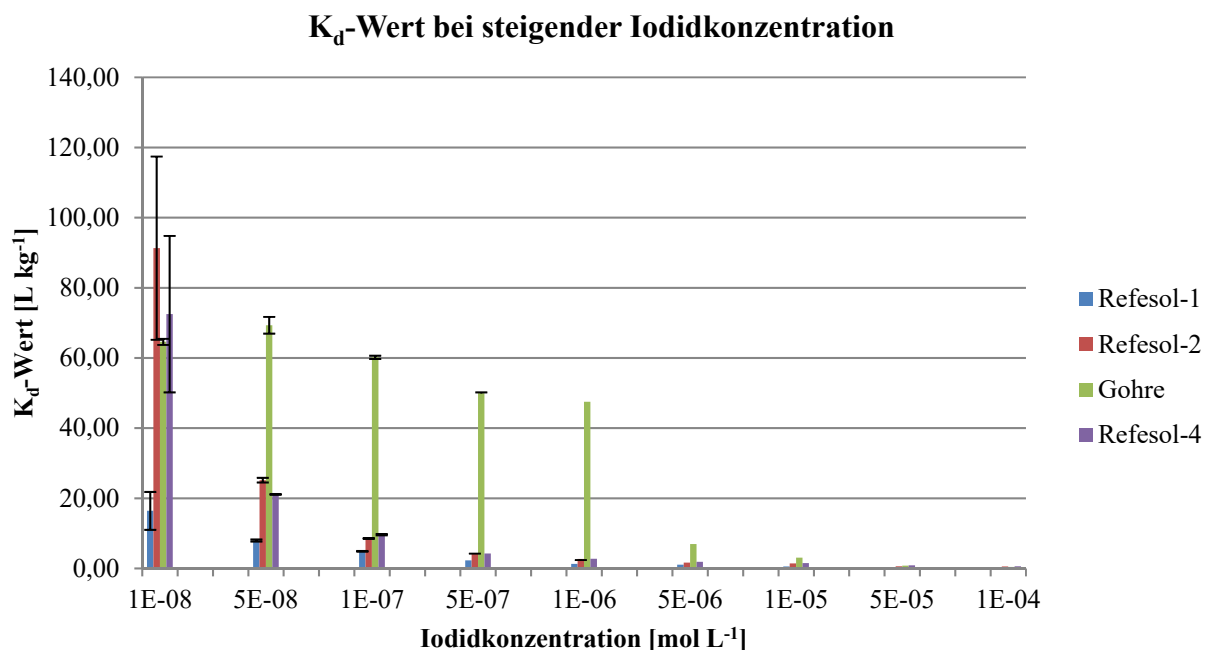


Abb. 19: K_d-Werte bei steigender Iodidkonzentration für 4 unterschiedliche Böden

Auch wenn alle Böden eine sinkende Sorptionsfähigkeit mit dem Anstieg der Iodkonzentration aufwiesen, ließen sich doch unterschiedliche Verläufe der Sorptionsabnahme beobachten, siehe Abbildung 19. Zeigte RefeSol 2, der einen hohen Gehalt an Schluff (82 %), aber einen geringen Gehalt an organischer Substanz aufwies (1,23 % C_{org}), bei der Iodidkonzentration von 10^{-8} mol L⁻¹ noch den höchsten K_d-Wert, so sank dieser ab einer Konzentration von 10^{-7} mol L⁻¹ merklich ab und wurde von der Sorptionsfähigkeit des Bodens aus Gohre, der den höchsten Gehalt an organischer Substanz aufwies (11,68 % C_{org}), übertroffen. RefeSol 1 mit seinem hohen Gehalt an Sand (76,7 %) und geringem Gehalt an organischer Substanz (1,21/0,8 %) zeigte erwartungsgemäß im gesamten Konzentrationsspektrum vergleichsweise die niedrigsten K_d-Werte. Das Sorptionsverhalten von RefeSol 4, der sowohl hohe Gehalte an Sand (82,7 %) als auch an organischer Substanz enthielt (3,17 % C_{org}), ähnelte im Sorptionsverhalten RefeSol 2, der hohe Gehalte an Schluff (82 %) und geringe Gehalte an organischer

Substanz (1,23 % C_{org}) aufwies. Dies legt die Vermutung nahe, dass höhere Anteile von Schluff die Iod-Sorption verstärken.

Um einen Eindruck des Sorptionsverhaltens über ein Bodenprofil zu gewinnen, wurden Batchexperimente mit selbst entnommenen Proben des Unterbodens von RefeSol 1 für die Iodid-konzentration $10^{-8} \text{ mol L}^{-1}$ durchgeführt.

Der K_d -Wert für den Oberboden lag für diese Konzentration bei 12,3 bzw. 16,41 L kg^{-1} . Es zeigte sich, dass der K_d -Wert über das Tiefenprofil gegen 0 sank, siehe Tabelle 12 und Abbildung 20. Insbesondere die Werte für die Schichten unterhalb 60 cm, die sehr sandig (95 %) und arm an organischem Material waren (0,6 bis 0,02 % C_{org}), zeigten, dass bei einem solchen Material auch bei sehr niedrigen Iodidkonzentrationen keine Iodsorption stattfindet. Der ermittelte negative K_d -Wert für die Schicht von 80 – 100 cm ist im Rahmen der Messunsicherheiten zu betrachten, es ist nicht davon auszugehen, dass aus derartigen Schichten Iodid freigesetzt wurde.

Tab. 12: K_d -Werte für Unterbodenmaterial des RefeSol 1 bei $10^{-8} \text{ mol L}^{-1}$ Iodidkonzentration

	K_d -Wert [L kg^{-1}]
RefeSol 1 30 - 47 cm	$3,54 \pm 0,65$
RefeSol 1 47 - 60 cm	$0,52 \pm 0,07$
RefeSol 1 60 - 80 cm	$0,45 \pm 0,69$
RefeSol 1 80 - 100 cm	$-0,11 \pm 0,31$

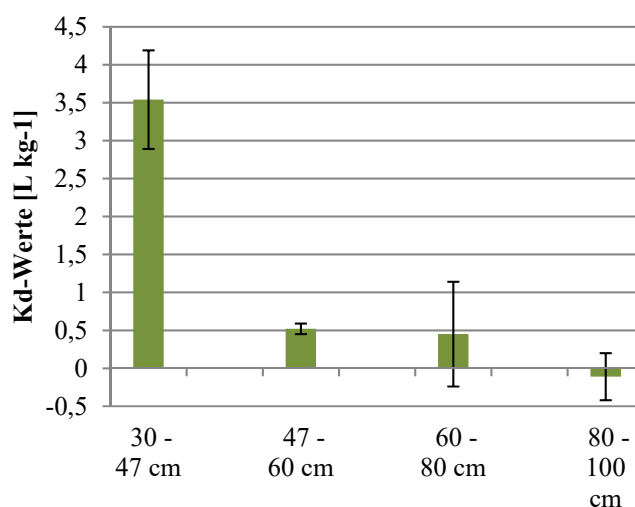


Abb. 20: K_d -Werte für Unterboden des RefeSol 1 bei $10^{-8} \text{ mol L}^{-1}$ Iodidkonzentration

3.3.2 Säulenversuche

Mithilfe der Säulenversuche wurde eine Bestimmung des Sorptionsverhaltens von Iod im Boden unter realitätsnäheren (dynamischen) Bedingungen angestrebt. Diese sollten mit den K_d -Werten der Batchversuche verglichen werden, um den Einfluss der Untersuchungsmethode auf den Verteilungskoeffizienten zu erkennen. Die Versuche wurden mit dem für Säulenversuche empfohlenen RefeSol 1 des IME durchgeführt. Mit den K_d -Werten der Batch-Experimente und den Säulencharakteristika wurden die zu erwartenden Retardationsfaktoren entlang der Formel

$$(4) \quad R = 1 + \frac{\rho}{\theta} K_d$$

ermittelt (siehe Kapitel 3.2.4).

In den beiden vorangegangenen Batch-Versuchsreihen mit den RefeSol-Böden wurden leicht unterschiedliche K_d -Werte ermittelt. Es wurde darauf verzichtet, einen Mittelwert zu bilden, sondern beide Werte zur Retardationsprognose herangezogen, um die Heterogenität der Böden und der Sorptionsprozesse weiter verfolgen zu können, siehe Tabelle 13.

Tab. 13: Retardationskoeffizienten, berechnet aus K_d -Werten

RefeSol 1				
Iodidkonz. [mol L ⁻¹]	K_d -Wert [L kg ⁻¹]	Trocken- rohdichte [kg L ⁻¹]	Porosität [-]	berechnete Retardations- koeffizient [-]
10 ⁻⁴	0,23	1,8	0,4	2,04
	1,01	1,8	0,4	5,55
10 ⁻⁶	1,29	1,8	0,4	6,81
	4,02	1,8	0,4	19,09
10 ⁻⁷	4,88	1,8	0,3	30,28
10 ⁻⁸	12,3	1,8	0,4	56,35
	16,41	1,8	0,4	74,85

Für die Durchbruchkurven werden jeweils die Kurve des inerten Tracers Tritium und die Kurve des Iodids separat dargestellt. Die Vorstellung der Ergebnisse erfolgt in der Reihenfolge der Iodidkonzentrationen 10⁻⁴ mol L⁻¹, 10⁻⁶ mol L⁻¹, 10⁻⁷ mol L⁻¹ und 10⁻⁸ mol L⁻¹.

Durchbruchskurve für $10^{-4} \text{ mol L}^{-1}$ Iodid-Perkolation

Der Verlauf des Iodid-Durchbruchs zeigte bei einer Konzentration von $10^{-4} \text{ mol L}^{-1}$ (Abbildung 22) einen nahezu identischen Verlauf zur Durchbruchskurve des inerten Tracers Tritium (Abbildung 21). Der Anstieg der Konzentration²⁴ begann nach dem Durchfluss eines Porenvolumens, erreichte beim Durchfluss von 1,5 Porenvolumen einen Anteil von 0,7 bis 0,8. Die prognostizierte Retardation von 2 bis 5 wurde im Säulenversuch unterschritten.

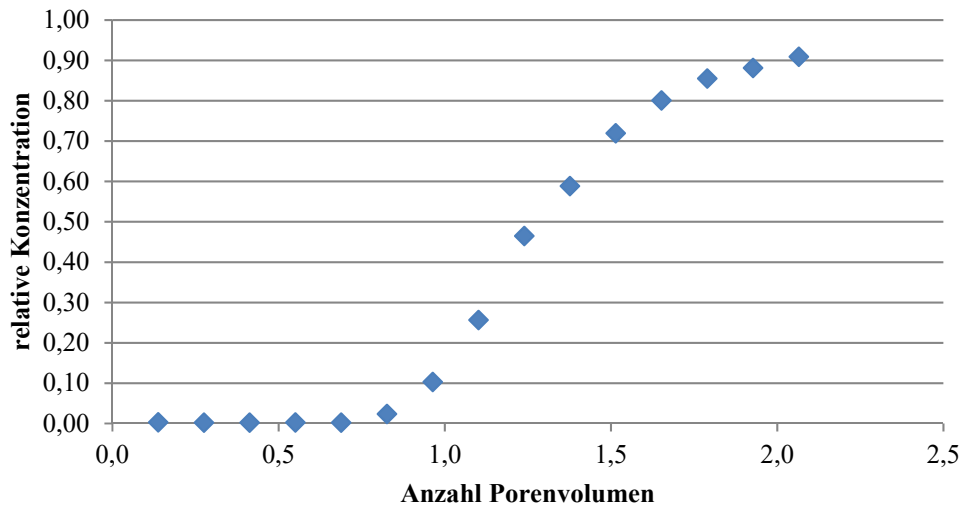


Abb. 21: Durchbruchskurve des inerten Tracers für Iodidkonz. $10^{-4} \text{ mol L}^{-1}$

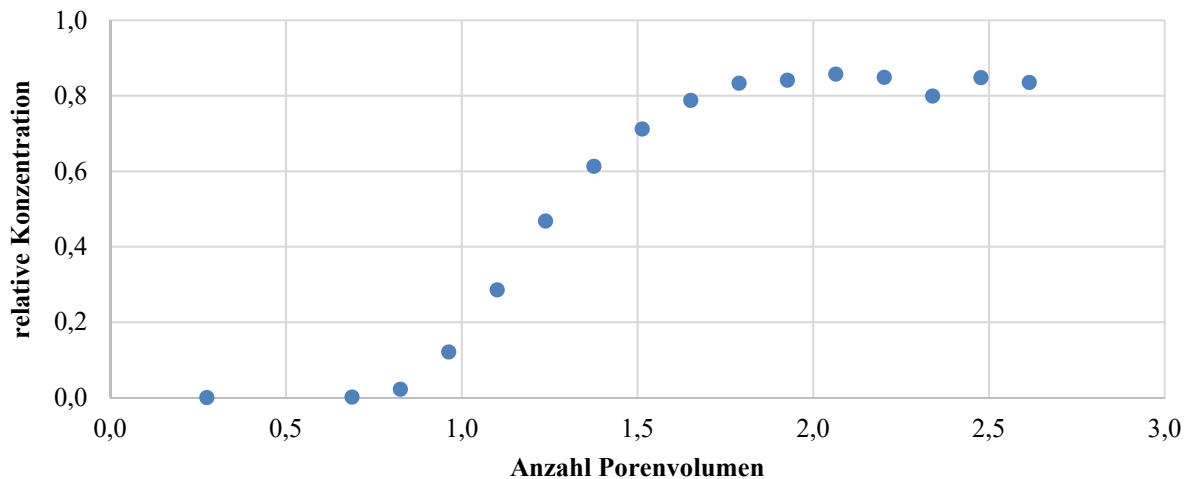


Abb. 22: Durchbruchskurve des Iodid $10^{-4} \text{ mol L}^{-1}$

²⁴ Angaben der Konzentration werden relativ zur Konzentration der Ursprungsperkolutionslösung angegeben.

Durchbruchskurve für $10^{-6} \text{ mol L}^{-1}$ Iodid-Perkolation

Die Durchbruchskurve des inerten Tracers (Abbildung 23) verwies auf eine ähnliche Säulen- und damit Durchflusscharakteristik wie die vorherige Säule. Die Durchbruchskurve von Iodid bei einer Konzentration von $10^{-6} \text{ mol L}^{-1}$ wich allerdings vom erwarteten Verlauf ab, siehe Abbildung 24. So zeigte die Iodkonzentration nach einem anfänglich starken Anstieg bis zu einem Anteil von 0,5 relativ zur Ursprungskonzentration nach dem Durchfluss von 1,5 Porenvolumen ein Absinken. Mit der Grundannahme, dass sich die Durchflusseigenschaften in der Säule vom Durchfluss des Tracers zum Durchfluss der iodhaltigen Lösung nicht ändern, konnte hier die Aktivierung eines Sorptionprozesses vermutet werden, dessen Einsatz entweder zeitabhängig stattfindet oder durch noch nicht bekannte Faktoren ausgelöst wird.

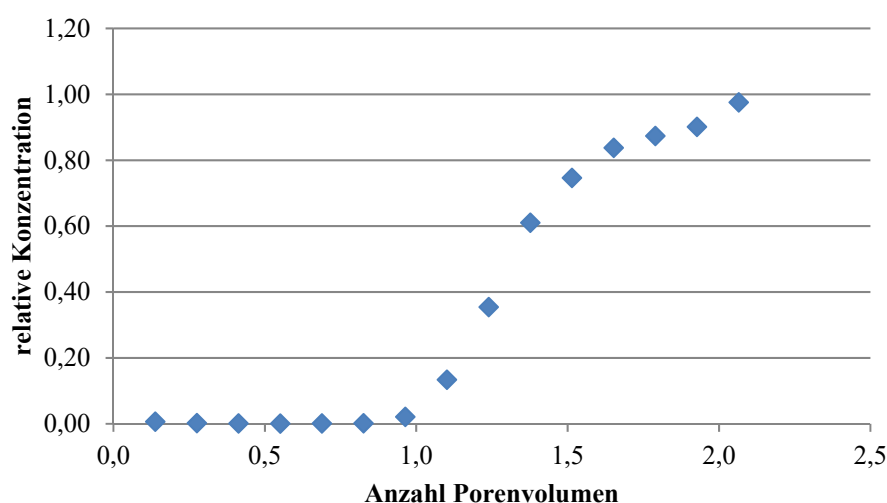


Abb. 23: Durchbruchskurve des inerten Tracers für Iodidkonz. $10^{-6} \text{ mol L}^{-1}$

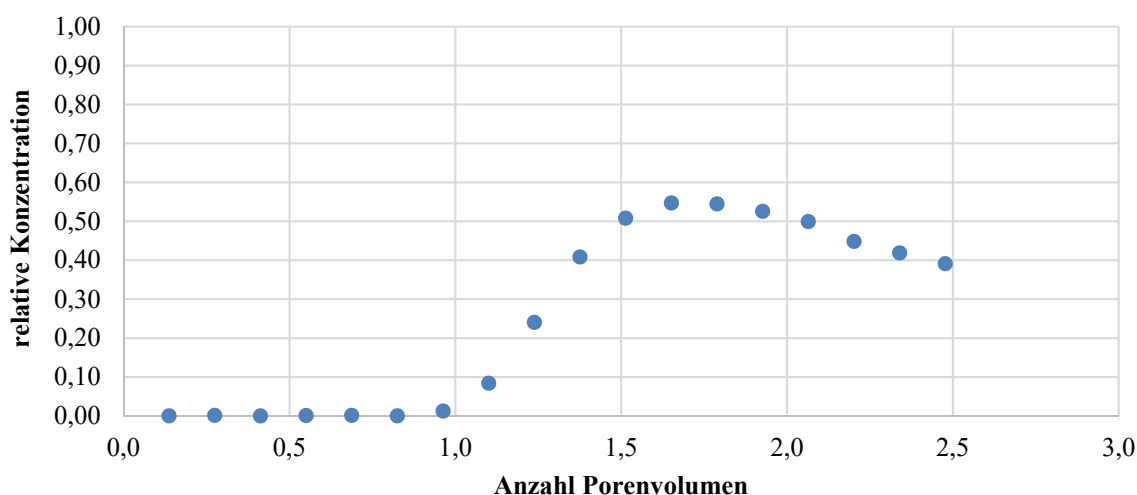


Abb. 24: Durchbruchskurve des Iodids, $10^{-6} \text{ mol L}^{-1}$

Durchbruchskurve für $10^{-7} \text{ mol L}^{-1}$ Iodid-Perkolation

Der Durchfluss von Iodid bei einer Konzentration von $10^{-7} \text{ mol L}^{-1}$ konnte aufgrund von technischen Einschränkungen nur über 8,5 Porenvolumen verfolgt werden (Abbildung 26). Dennoch zeigte sich auch hier, dass auf einen ersten Anstieg der Iodkonzentration, diesmal auf 0,38 relativ zur Ursprungskonzentration, wieder ein Absinken erfolgt. Die Iodidkonzentration des Eluats bleibt anschließend über mehrere Porenvolumina konstant bei einer relativen Konzentration von 0,2. Die Durchbruchskurve des inerten Tracers wies auch hier auf eine Säulen- und Durchflusscharakteristik hin, die mit den vorherigen Säulen vergleichbar war (Abbildung 25).

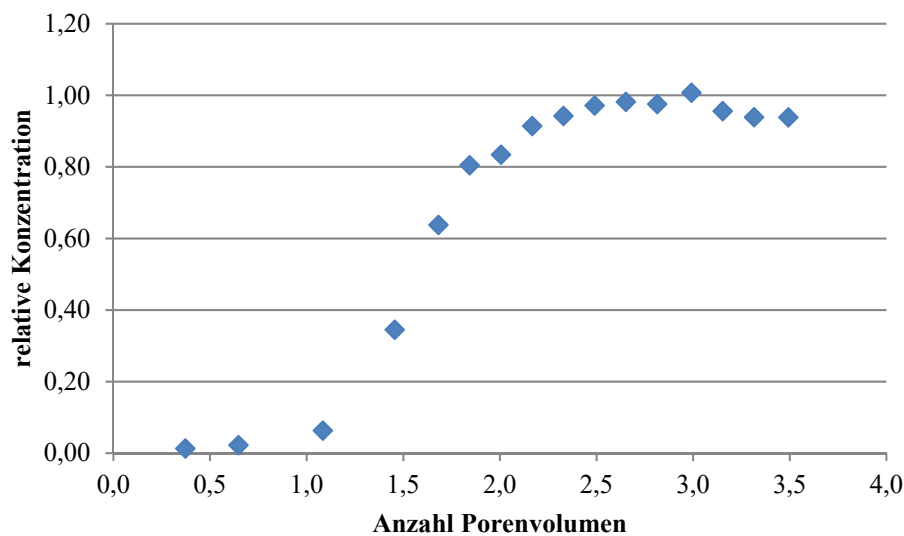


Abb. 25: Durchbruchskurve des inerten Tracers für Iodidkonz. $10^{-7} \text{ mol L}^{-1}$

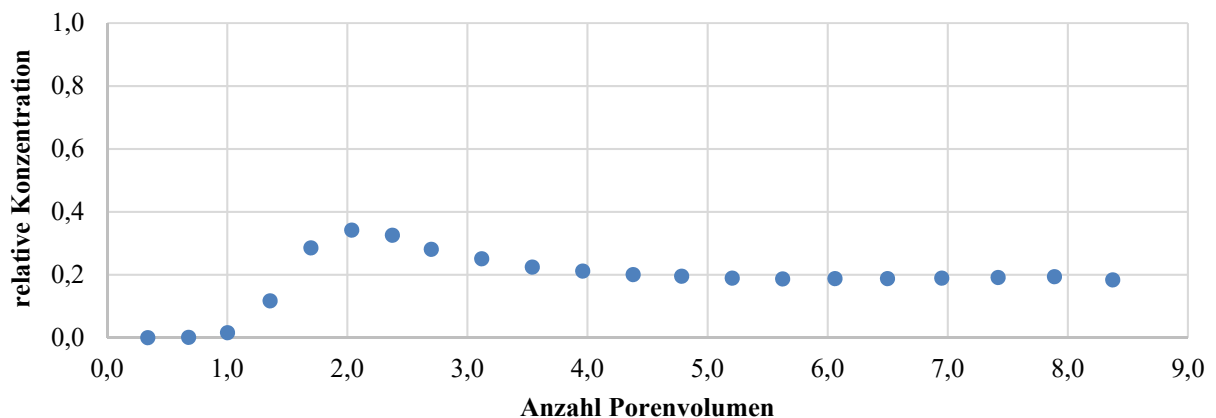


Abb. 26: Durchbruchskurve des Iodids, $10^{-7} \text{ mol L}^{-1}$

Durchbruchskurve für $10^{-8} \text{ mol L}^{-1}$ Iodid-Perkolation

Für das Säulenexperiment bei einer Iodidkonzentration von $10^{-8} \text{ mol L}^{-1}$ wurde mit der schrittweisen Sammlung des Eluats erst ab einem Durchfluss von 27 Porenvolumen begonnen, da der prognostizierte Retardationskoeffizient zwischen 56,35 und 74,85 lag (Abbildung 28). Die Durchbruchskurve des Tracers entsprach den Verläufen der vorherigen Säulen (Abbildung 27). Ein Konzentrations-Peak bei 30 - 35 Porenvolumen deutete auf die kurzzeitige Öffnung und Schließung eines „preferential flow“²⁵ hin. Die Konzentration von Iodid erreichte im Bereich des Peaks eine relative Konzentration bis zu 0,5, sank danach aber wieder auf Werte unter 0,1 ab. Nach ca. 75 Porenvolumen stieg die Iodidkonzentration langsam auf einen kontinuierlichen Wert von 0,1.

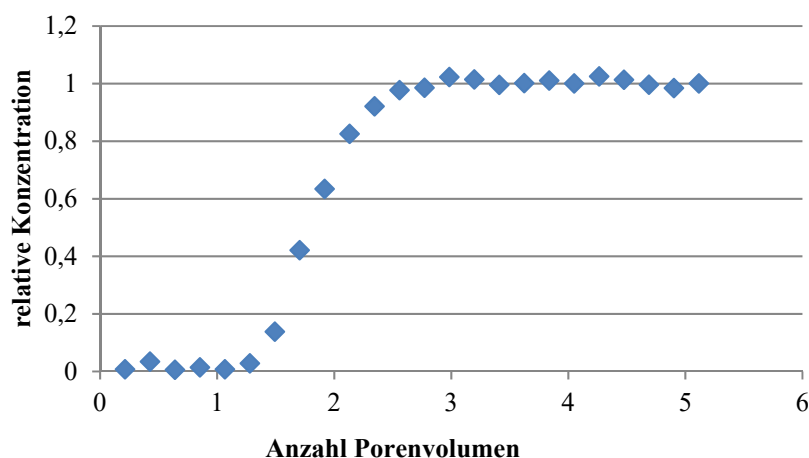


Abb. 27: Durchbruchskurve des inerten Tracers für Iodidkonz. $10^{-8} \text{ mol L}^{-1}$

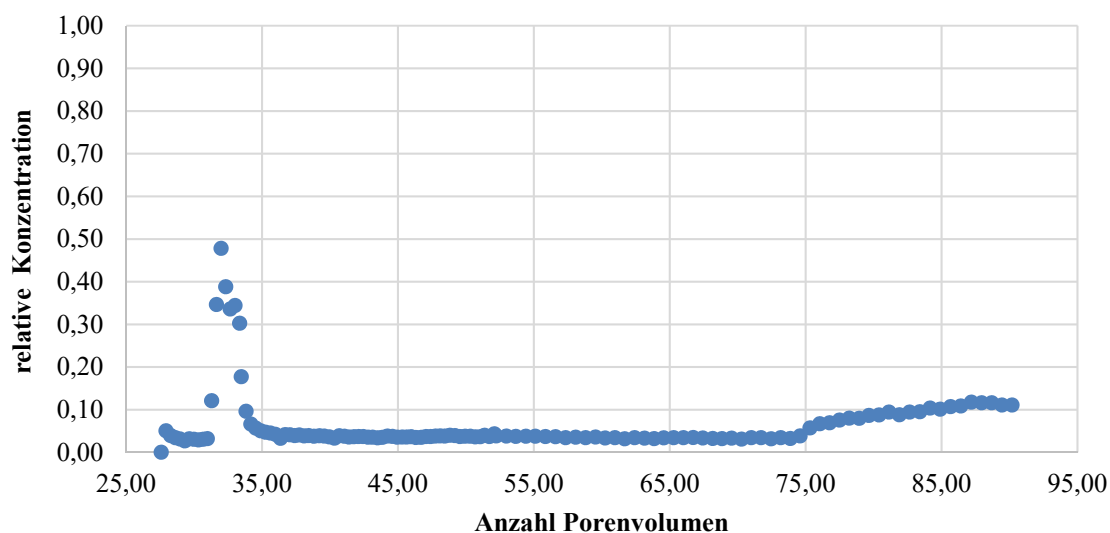


Abb. 28: Durchbruchskurve des Iodids, $10^{-8} \text{ mol L}^{-1}$

²⁵ Präferentielle Fließwege in dynamischen Porensystemen.

3.3. 3 Sequentielle Extraktion

Die sequentielle Extraktion wurde zunächst an den vier Referenzböden durchgeführt. Dabei wurden die Böden einmal für 18 h und ein weiteres Mal für 30 Tage mit ^{125}I Iodid beaufschlagt, um den Einfluss der Kontaktzeit auf die Verteilung des Iodids auf die unterschiedlichen Bodenfraktionen zu untersuchen. Außerdem wurden die sterilisierten Referenzböden 1 und 3 untersucht, um Hinweise auf weitere relevante Sorptionsparameter zu erhalten.

In Tabelle 14 sind die Messergebnisse der sequentiellen Extraktion der RefeSol-Böden 1 - 4 bei einem Kontaminationszeitraum von 18 h in prozentualer Darstellung aufgeführt. Abgesehen von einer stärkeren Abweichung bei der Messung von RefeSol 2 lagen die Unsicherheiten der Triplet-Messungen bei allen gemessenen Proben unter 2 %.

Tab. 14: Prozentuale Anteile des Iods in den Fraktionen bei 18 h Kontaktzeit

	H ₂ O (wasserlöslich)	NH ₄ Ac (austauschbar)	NaOH (organisch)	NH ₂ OH*HCl (metalloxidisch)	Nicht sorbiert
RefeSol 1	3,16 %	8,49 %	60,80 %	0,75 %	26,9 %
RefeSol 2	3,41 %	6,15 %	84,06 %	1,75 %	4,33 %
RefeSol 3	1,73 %	4,58 %	82,84 %	1,87 %	6,12 %
RefeSol 4	2,07 %	6,41 %	80,36 %	0,67 %	8,12 %

Die prozentualen Gehalte des Iodids in den Fraktionen wurden auf die zugegebene Aktivität bezogen. Der Anteil des Iodids, das nicht am Boden sorbiert wurde, wurde wie bei den K_d -Wert-Bestimmungen ermittelt. Die Abbildung 29 veranschaulicht die Verteilung des Iods in den unterschiedlichen Böden.

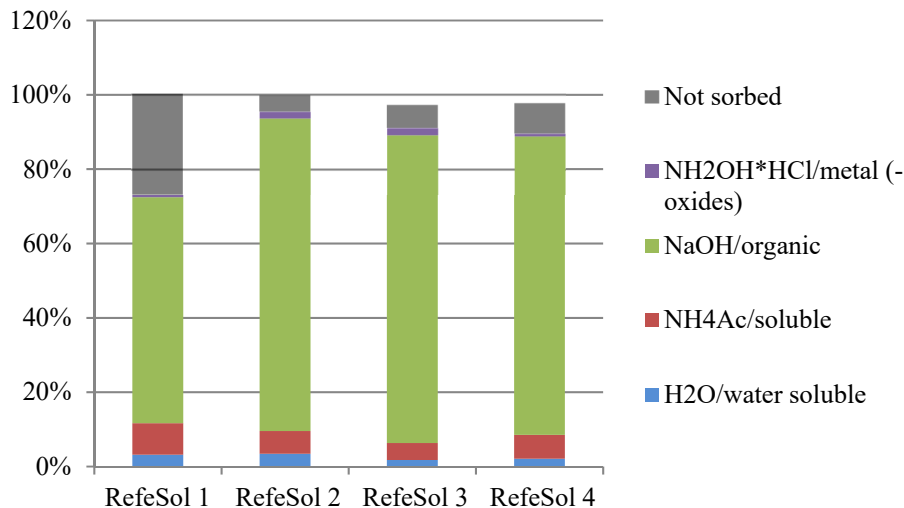


Abb. 29: Prozentuale Anteile des Iodids in den Fraktionen, 18 h Kontaktzeit

Jeder Boden wies den größten Anteil an Iod in der organischen Fraktion, den zweitgrößten Anteil in der ionisch-austauschbaren Fraktion auf. In der metalloxidischen Fraktion fanden sich Anteile unter 2 % und in der wasserlöslichen Fraktion Anteile unter 5 %. Auch die sandigen Böden RefeSol 1 und 4, sowie die Böden mit geringem Anteil an organischer Substanz, RefeSol 1 und 2, zeigten dieses Verteilungsmuster. Interessanterweise ließ sich auch hier erkennen, dass nicht nur ein hoher Anteil an organischer Substanz des Bodens zu verstärkter Iodadsorption führte, sondern auch andere Charakteristika: RefeSol 2, der über einen ähnlichen Anteil an organischer Substanz wie der am geringsten sorbierende RefeSol 1 verfügte, zeigte die stärkste Sorption und den höchsten Anteil des Iods in der organischen Fraktion. Der Al- und Fe-Gehalt des Bodens lag zwar höher als der des RefeSol 1, dennoch niedriger als der des RefeSol 3. Alleine im Gehalt an Schluff (82 %) und dem pH-Wert (6,28) zeigte der RefeSol 2 alle anderen Böden überragende Werte.

Die Ergebnisse der sequentiellen Extraktion nach einer Kontaktzeit von 30 Tagen sind in Tabelle 15 und Abbildung 30 dargestellt. Die Extraktionsergebnisse zeigten, dass durch eine längere Kontaktzeit der Anteil des an die organische Phase gebundenen Iods in allen untersuchten Böden anstieg. Gleichzeitig sanken die Anteile in der wasserlöslichen, der ionisch-austauschbaren und der nicht sorbierten Fraktion. Die Ausbildung von Bindungen innerhalb der metalloxidischen Fraktion wurde durch eine Kontaktzeit von 30 Tagen nicht maßgeblich verändert.

Tab. 15: Prozentuale Anteile des Iods in den Fraktionen bei 30 Tagen Kontaktzeit

	H ₂ O (wasserlöslich)	NH ₄ Ac (austauschbar)	NaOH (organisch)	NH ₂ OH*HCl (metalloxidisch)	Nicht sorbiert
RefeSol 1	2,10 %	5,13 %	80,72 %	1,22 %	10,00 %
RefeSol 2	1,89 %	2,41 %	90,55 %	2,11 %	2,59 %
RefeSol 3	0,93 %	1,98 %	87,19 %	2,37 %	4,20 %
RefeSol 4	1,24 %	3,28 %	88,86 %	0,77 %	3,89 %

Die Ergebnisse wiesen darauf hin, dass die Sorption von Iod im Boden eine Kinetik aufweist, die in Kurzzeit-Laborexperimenten nicht vollständig erschlossen werden kann. Die Sorptionskapazität der Böden war nach 18 Stunden Kontaminationszeit nicht erschöpft. Während für RefeSol 2, 3 und 4 aufgrund der bereits recht hohen Sorption die Anteile nur mäßig erhöht wurden, steigerte sich der Anteil des sorbierten Iods bei RefeSol 1 von 73,1 % auf 90 %. Dies gab Hinweis darauf, dass selbst bei ursprünglich gering sorbierenden Böden durch eine Verlängerung der Kontaminationszeit die Sorption erhöht wird.

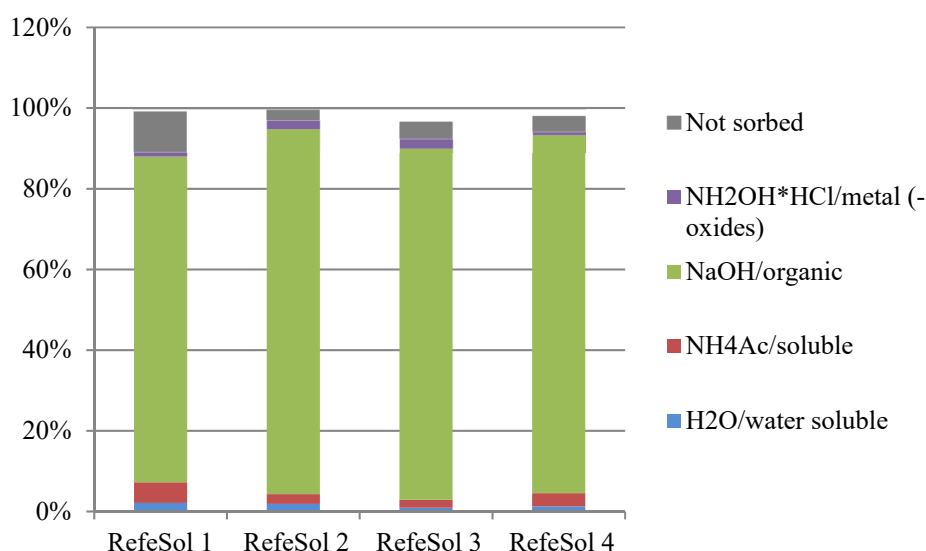


Abb. 30: Prozentuale Anteile des Iods in den Fraktionen bei 30 Tagen Kontaktzeit

Neben den naturbelassenen Varianten der Referenzböden wurden sterilisierte Varianten des RefeSol 1 und 3 untersucht, um der Frage nach dem Einfluss von Mikroorganismen auf die Bindungsplätze weiter nachzugehen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 16 aufgeführt.

Tab. 16: Prozentuale Anteile des Iods in den Fraktionen für sterilisierte Böden

	H ₂ O (wasserlöslich)	NH ₄ Ac (austauschbar)	NaOH (organisch)	NH ₂ OH*HCl (metalloxidisch)	Nicht sorbiert
R1 - steril	4,30 %	8,62 %	57,39 %	0,72 %	28,22 %
R3 - steril	5,47 %	3,43 %	18,13 %	0,26 %	74,25 %

Die sterilen Böden wiesen ähnliche Verteilungsmuster wie die zuvor analysierten naturbelassenen Böden auf, allerdings sind die nicht-sorbierten Anteile erwartungsgemäß sehr hoch. Die wasserlösliche und austauschbare Fraktion nimmt bei den sterilen Böden einen größeren Anteil des Iods an. Die organische Fraktion, die bei den naturbelassenen Böden einen Großteil des Iods sorbierte, wies bei den sterilen Bodentypen zwar verringerte Anteile auf, jedoch stellten diese auch hier den größten Anteil innerhalb der sorbierten Fraktionen. In Abbildung 31 sind die sterilisierten Referenzböden 1 und 3 mit den naturbelassenen Varianten vergleichend dargestellt.

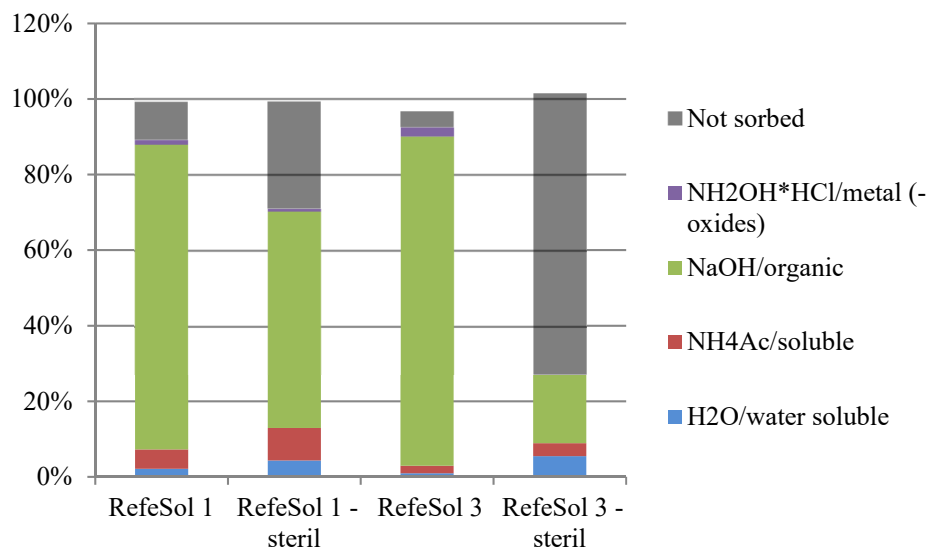


Abb. 31: Vergleich der Extraktionsergebnisse der natürlichen und sterilisierten Varianten der RefeSol-Böden 1 und 3.

Wie bereits bei den Batch-Experimenten ersichtlich, zeigte sich der starke Einfluss der Sterilisation der Böden auf das Sorptionsverhalten des Iods. Die Verringerung der Iodsorption konnte mit der Verringerung der Bindung des Iods an die organische Fraktion des Bodens in Zusammenhang gebracht werden. Der Effekt war für den RefeSol 3, der hohe Gehalte an organischem Material und Schluff aufwies, besonders markant.

3.4 Zusammenfassung der Ergebnisse

Die experimentellen Untersuchungen zeigten, dass mittels der Batchversuche für vier zentraleuropäische Referenzböden die Spannbreite der Verteilungskoeffizienten auf Werte zwischen $0,23 \pm 0,33$ bis $91 \pm 26,12 \text{ L kg}^{-1}$, also einen Bereich von 3 Größenordnungen, eingeengt werden konnte. Dieser Aussage muss hinzugefügt werden, dass die K_d -Werte für die Konzentrationsbereiche zwischen 10^{-8} bis $10^{-4} \text{ mol L}^{-1}$ eine deutliche Konzentrationsabhängigkeit aufwiesen. Die Ergebnisse der Säulenversuche zeigten, dass sich die Konzentrationsabhängigkeit des K_d -Wertes unter dynamischen Transportbedingungen noch deutlicher manifestierte. Durch die sequentiellen Extraktionen konnte gezeigt werden, dass die Verlängerung der Kontaktzeit des Iods mit dem Boden zu einer Erhöhung der Sorption führte, insbesondere in Bezug auf die organische Phase des Bodens. Die Untersuchungen an sterilisierten Böden zeigten, dass das Vorhandensein von Mikroorganismen die Sorption des Iods im Boden erheblich verstärkt.

4 Diskussion der beiden Untersuchungsperspektiven und Schlussfolgerungen

Die Diskussion der Ergebnisse erfolgt in zwei Teilen. Im ersten Teil werden die Ergebnisse der Untersuchungen zum Übergang des naturwissenschaftlichen Abschätzungsmodells zum regulatorischen Instrument diskutiert, im zweiten Teil die Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen zu den radioökologischen Parametern zu Transferprozessen von ^{129}I im Boden.

Im Anschluss werden in einer gemeinsamen Betrachtung der Ergebnisse und nach Diskussion der beiden Untersuchungsperspektiven mögliche Schlussfolgerungen beschrieben. Ein Fazit und ein Ausblick auf zukünftige wissenschaftliche Forschungsfelder schließen die Arbeit ab.

4.1 Diskussion zu den Problemfeldern der radioökologischen Expositionsabschätzung beim Übergang zu einem regulatorischen Instrument

Die Ergebnisse der Untersuchungen zur ersten Forschungsperspektive deuten auf folgende drei Spannungsfelder hin:

- das Spannungsfeld der Anforderungen an die Rechtssicherheit der berechneten Expositionswerte, die zur Wahl konservativer Modellierungsannahmen leitet,
- das Spannungsfeld der Risikokommunikation zu Ergebnissen der Expositionsabschätzungen,
- und das Spannungsfeld der Weiterentwicklung radioökologischer Expositionsabschätzungsverfahren während laufender behördlicher Genehmigungsverfahren.

Die drei Spannungsfelder werden sukzessive diskutiert.

4.1.1 Anforderungen an die Rechtssicherheit: Problematik der konservativen Annahmen gegenüber realistischen Annahmen bei der Expositionsabschätzung

Konservative Annahmen werden vor allem in Expositionsabschätzungsverfahren gewählt, die als Entscheidungsgrundlage für die behördliche Genehmigung herangezogen werden, wie beispielsweise der AVV. Die Rechtssicherheit der administrativen Entscheidung soll durch eine Betrachtung, in der maximal ungünstige Expositionsszenarien abgebildet sind, hergestellt werden. Durch die Wahl der ungünstigsten Rahmenbedingungen kann der Vorwurf, die berechnete Strahlendosis würde die reale Dosis unterschätzen, abgewehrt werden. Allerdings gelten Genehmigungen für oberirdische kerntechnische Anlagen nur für (im Endlagerungskontext) kurze Zeiträume, also für Jahrzehnte, wobei die

prognostizierte modellierte Exposition während des Betriebes einer Anlage begleitend überwacht wird. Die Spanne zwischen der „gegenwärtigen Zukunft“²⁶, die prognostiziert wird, und der „zukünftigen Gegenwart“²⁷ in der die Prognose überprüft werden kann, liegt innerhalb des menschlichen Zeithorizontes. Dies gilt nicht mehr für die Prognosen zu Endlagerungsszenarien und macht sie somit nicht validierbar. Es ist allen Beteiligten bewusst, dass „eine grundsätzliche und systemimmanente Schwierigkeit der Risikoabschätzung eines Endlagers für hochradioaktive Abfälle in den langen Zeiträumen [liegt], die in Betracht gezogen werden müssen“, (Pröhl, Olyslaegers et al. 2005).

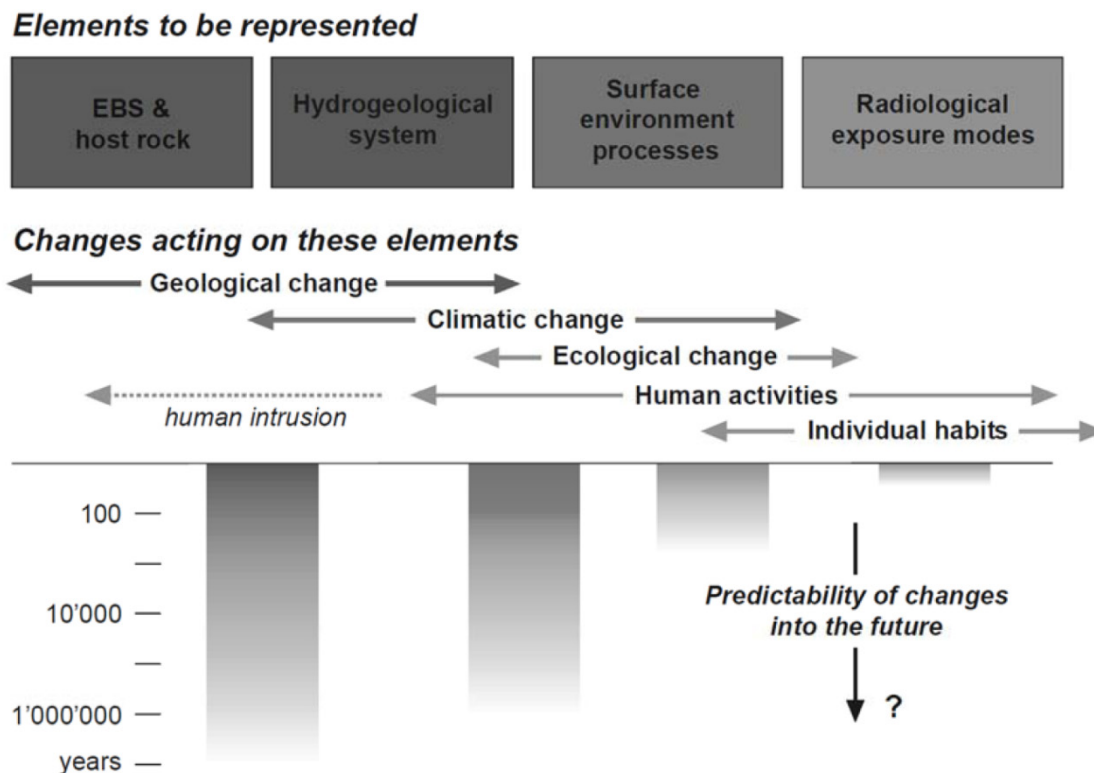


Abb. 32: Variations in the predictability of the main repository components, against assessment time (OECD/NEA 1999)

Eine Grafik der OECD/NEA (1999) (Abb. 32) veranschaulicht die Problematik sehr deutlich: Während Voraussagen für geologische Systeme von Experten für ‚geologische‘ Zeiträume gegeben werden können, sinkt Vorhersagbarkeit für den Zustand des Systems und die jeweils relevanten Prozesse hin zur Biosphäre und dem menschlichen Verhalten massiv mit Zunahme der betrachteten Zeitspanne ab. Letzten Endes ist diese Problematik

²⁶ siehe Esposito (2007).

²⁷ Ebd.

eines der Argumente für die Lagerung hochradioaktiver Abfälle in tiefen geologischen Formationen²⁸.

Somit stellt sich die Frage, inwieweit sich die Ungewissheiten, die für die Grundannahmen der ökologischen Rahmenbedingungen und des menschlichen Verhaltens innerhalb geologischer Zeiträume auftreten, durch konservative Annahmen umschiffen lassen. Es ist fraglich, ob die erwünschte Rechtssicherheit der behördlichen Entscheidung auf diesem Wege erreicht wird. Schwieriger noch: die konservativen Annahmen suggerieren schlimmstenfalls eine Kenntnis der Zukunft, die fragwürdig erscheinen muss. Es ist offensichtlich, dass das bewährte Instrument der Expositionsabschätzung im Strahlenschutz hinsichtlich seiner Effektivität bei der Endlagerungsplanung an seine Grenzen stößt. Daher ist die einhellige Expertenmeinung, dass Dosis- bzw. Expositionswerte kein Entscheidungskriterium sein können, sondern maximal Indikatoren darstellen, anhand derer potentielle Standorte, beziehungsweise deren „Performance“, miteinander verglichen werden können (BMU 2010) (DAEF 2017). Obwohl logisch begründet, mag der Verzicht auf Dosisangaben als Entscheidungskriterium dennoch in der uninformierten Öffentlichkeit als ein Verzicht auf Strahlenschutz, bzw. als verminderte Anforderungen des Strahlenschutzes an die Endlagerung erscheinen. Dieser Problematik muss entgegengesehen werden, es bedarf konstruktiver Lösungen.

4.1.2 Problematik der Risikokommunikation zur Expositionsmodellierung

Die Problematik der Kommunikation der Dosisabschätzungsergebnisse im Endlagerungskontext wird auch international diskutiert. So sind Chapman und McCombie (Chapman und McCombie 2003) der Auffassung, dass ein großer Teil der Skepsis, die von der Öffentlichkeit gegenüber den Fähigkeiten der Wissenschaftler, das Verhalten eines zukünftigen Endlagers quantitativ zu bestimmen, daher stamme, dass Berechnungsergebnisse oft als „präzise“ Vorhersagen präsentiert werden. Tatsache sei hingegen, „dass die Berechnungen nur großzügige Abschätzungen zeigen, die für gewöhnlich das Verhalten des Endlagers für das jeweilige Entwicklungsszenario zeigen. Wenn solche Berechnungen für eine Reihe von Szenarien, die relevante Prozesse und Ereignisse betrachten, kombiniert werden, ist eine glaubwürdige Sicherheitsanalyse

²⁸ „Gemessen an der Geschichte der Menschheit sind 1 Million Jahre ein sehr langer Zeitraum. So wenig, wie sich der Frühmensch vor 1 Million Jahren, also bevor es Neandertaler und Cro-Magnon-Menschen gab, sich die heutige Menschheit vorstellen konnte, genauso wenig können wir die Entwicklung der Menschheit über diese Zeitspanne abschätzen. Gemessen an der Erdgeschichte jedoch sind 1 Million Jahre kurz, und in geologisch stabilen Regionen, in denen sich die geologische Entwicklung über 10 oder 100 Millionen Jahre zurückverfolgen lässt, kann die Entwicklung während der nächsten 1 Million Jahre zuverlässig angegeben werden. Deshalb wird mit der Endlagerung in geologischen Formationen ein Weg gewählt, bei dem die langfristige Sicherheit des Endlagers auf der Stabilität der geologischen Barriere beruht, ohne dass dazu eine Nachsorge durch menschliches Handeln erforderlich ist.“ Bundesanstalt für Geowissenschaften, https://www.bgr.bund.de/DE/Themen/Endlagerung/Langzeitsicherheit/langzeitsicherheit_node.html, Stand 24.10.2018.

möglich“²⁹. Es wird auch hier deutlich, dass die Vermittlung der Glaubwürdigkeit der Aussagen eine nicht zu unterschätzende Herausforderung darstellt.

Auch die Problematik, dass fachlich komplexe Sachverhalte nur bedingt über die isolierte Präsentation der Fakten vermittelt werden können, wird im Hinblick auf die Risikokommunikation seit langem beobachtet. Wie in einer Studie zur laiengerechten Kommunikation von wissenschaftlichen Unsicherheiten im Bereich elektromagnetischer Felder (Wiedemann, Löchtefeld et al. 2009) gezeigt wurde, besteht eine Diskrepanz in den Formen der Informationsverarbeitung bei Experten und Nicht-Experten. Die Experten gehen vom „Idealbild des informierten Bürgers“ aus, der in der Lage und motiviert ist, die präsentierten Informationen angemessen zu verarbeiten. In den „Zwei-Prozess-Theorien“ der Persuasionsforschung in der Sozialpsychologie wird demgegenüber auf unterschiedliche Pfade der Informationsverarbeitung hingewiesen. Das „Elaboration-Likelihood-Model“ (Petty und Cacioppo 1986) unterscheidet zwischen einer zentralen Route der Verarbeitung, die auf systematischer Verarbeitung der fachlichen Inhalte einer Information beruht, und der peripheren Route, die nicht-fachliche Hinweise – wie Sympathie/Antipathie gegenüber dem Informationsgeber, Übereinstimmung mit dessen Werten, Rahmenbedingen der Informationsübermittlung, etc. – genutzt werden, um die gegebenen Informationen zu bewerten. Die Bewertung auf dem zentralen Pfad setzt sowohl eine hohe Motivation als auch eine hohe kognitive, fachliche und zeitliche Verarbeitungskapazität voraus. Auf dem peripheren Pfad der Informationsverarbeitung hingegen wird kein großer kognitiver Aufwand betrieben, bzw. kann dieser Aufwand aus einem Mangel an zeitlichen, fachlichen oder kognitiven Ressourcen nicht betrieben werden. Von daher sind die peripheren Informationen, die bei der Risikokommunikation zur Expositionsabschätzung für ein potentiell Endlager gegeben werden, nicht gering zu schätzen. Die Darstellung der Sorgfalt, mit der der Radionuklidtransfer durch die Biosphäre berechnet wird, wird - wie von den Experten erwähnt - mit großer Wahrscheinlichkeit als periphere Information für die Einschätzung des gesamten Abschätzungsverfahrens dienen.

Die Fixierung auf Zahlen in der Risikokommunikation, die von den Experten als problematisch beschrieben wurde, ist ein weiteres Dilemma der Vermittlung von Ergebnissen von Expositionsabschätzungen. Die vorliegende Untersuchung legt nahe, dass die Fokussierung einer Darstellung von bestimmten Sachverhalten qua Zahlenwert bereits in den Naturwissenschaften beginnt und in die angegliederten policy-Prozesse übernommen wird. Die Darstellung einer technischen, gesundheitlichen oder organisatorischen Sicherheit anhand von Grenz-, Richt- oder Referenzwerten ist in weiten Bereichen des Gesundheits-, Umwelt- oder Arbeitsschutzes üblich (siehe auch Smeddinck

²⁹ “The confidence that can be placed in such performance assessment calculations is the subject of much debate. Much of the scepticism often expressed by the public concerning scientists’ ability to quantify future repository performance stems from the fact that the results are often presented or interpreted as precise “predictions”. The realistic picture is that they are only broad estimates, that they normally quantify the bounding behaviour for any given evolution scenario and that, if this is done for a range of scenarios representing the principal processes and events that might affect repository evolution, a credible safety analysis is possible.”

und König 2016). In Anbetracht der Ungewissheiten für die Grundannahmen der Biosphären-Systeme für den Zeitraum von 1 Million Jahre stellt sich die Frage, welchen Charakter prognostizierte Expositionsdaten haben. Selbst als Indikatoren haben sie einen psychologischen „Ankereffekt“ (engl. Priming)³⁰, das heißt, dass selbst wenn einer Person bewusst ist, dass die Werte niedriger liegen müssen, sie sich am genannten Wert als mentaler Referenz orientiert (siehe Kahneman 2011). Zudem besteht die Gefahr, dass Ergebnisse aus konservativen Berechnungen als Repräsentation der zukünftigen Realität aufgefasst werden. Die Sicherheitsindikatoren im Endlagerungsmanagement sind hochaggregierte Zahlen, deren Verständnis nicht intuitiv erfolgen kann. Nicht nur bei Stakeholdern, auch zwischen den mit der Endlagerung befassten unterschiedlichen Disziplinen ist ein Verlust an kontextuellen Informationen zu Daten bei der Weiterbearbeitung zu beobachten, der die angemessene Interpretation der Daten erschwert.

Für ein technisches Projekt, das in seiner zeitlichen Betrachtung die menschliche Dimension überschreitet, sollte die anzustrebende Sicherheit des zu errichtenden Systems über Zahlenwerte hinaus definiert werden. Deliberative d.h. dialogische Verfahren zur Definition der Sicherheit und der daraus abgeleiteten Sicherheitsanforderungen und -funktionen werden notwendig sein, um Akzeptabilität und Akzeptanz zu erreichen. Bereits 2007 verwies die OECD/NEA in einer Publikation zur Regulierung der Langzeitsicherheit bei der Endlagerung auf die Notwendigkeit dieser Prozesse:

„Die bisherige Arbeit kommt zu dem Schluss, dass die Vielfalt der Kriterien [Langzeitsicherheits-Kriterien, Anm. d. Autorin] in erster Linie durch gesellschaftliche Unterschiede begründet ist. Die quantitativen Unterschiede [der Dosiskriterien, Anmerkung der Autorin] haben keine signifikanten Konsequenzen hinsichtlich der radiologischen Auswirkungen. Außerdem sollte man nicht vergessen, dass die kalkulierten Dosen (und Risiken) die mit diesen Kriterien verglichen werden, nur Performance Indikatoren [Leistungsindikatoren, Anm. d. Autorin] sind. In gleichem Maße sind Schutzanforderungen komplementärer Maßnahmen wichtig, wie die Optimierung und die Anwendung der „besten verfügbaren Techniken, die keine übermäßigen Kosten nach sich ziehen“. Die bisherige Arbeit hat viele Hinweise identifiziert, die weiterer Forschung bedürfen, unter ihnen den Bedarf ethische Fragen in größerer Tiefe zu untersuchen; der Bedarf Methoden der Partizipation bei Langzeitprojekten, die durch abgestufte Entscheidungsprozesse gekennzeichnet sind, anzuwenden; und den Bedarf für ein verbessertes Verständnis der Sicherheits-Zielvorgaben, die den derzeitigen Kriterien zugrunde liegen.

³⁰ „Er [der Ankereffekt, Anm.] ereignet sich, wenn Menschen einen bestimmten Wert für eine unbekannte Größe erwägen, bevor sie diese Größe abgeschätzt haben. [...] Die Schätzwerte bleiben nahe bei der Zahl, die den Personen im Vorfeld angeboten wurde. [...] Jede Zahl, die ihnen als mögliche Lösung für ein Schätzproblem präsentiert wird, erzeugt einen Ankereffekt.“ (Kahneman 2011).

Vertiefte Untersuchungen dieser Sachverhalte können helfen, die Wahl der jeweiligen Kriterien zu erklären, sie würden helfen zu verdeutlichen, dass der Prozess der Sicherheitsbeurteilung an sich wichtiger ist als die berechneten Dosis- oder Risikozahlen, die währenddessen entstehen, und es könnte eine essentielle Rolle dabei spielen, sich über die normale Entwicklung von nationalen „Politiken“, Zielsetzungen, Regulierungen und Richtlinien zu verständigen.“

4.1.3 Dilemma der Weiterentwicklung radioökologischer Expositionsabschätzungsverfahren während laufender behördlicher Genehmigungsverfahren

Der Hinweis eines Experten auf die verminderte fachliche Weiterentwicklung von regulativ genutzten Expositionsabschätzungsmodellen während laufender Genehmigungsverfahren (siehe Kapitel 2.3.3) verwies auf einen intrinsischen, nahezu antagonistischen Widerspruch der jeweiligen Zielstellungen der Expositionsmodellierung in den Bereichen Administration und Wissenschaft. Die folgende Tabelle veranschaulicht die unterschiedlichen Zielstellungen der radioökologischen Expositionsmodellierung im wissenschaftlichen und im administrativen Kontext sowie die daraus folgenden unterschiedlichen Ansprüche.

Tab. 17: Zielstellungen und Anwendungen der Expositionsabschätzung in Wissenschaft und ‚policy‘ bzw. Administration (modifiziert nach Mosbach-Schulz 2013).

		Radioökologische Expositionsabschätzung		
Akteure	Ziele	Radionuklide in der Umwelt	Transport durch die Umwelt	Dosis
Wissenschaft	Erklärung	bekannt oder beobachtet	?(erforscht)	bekannt oder beobachtet ?(erforscht)
Policy Administration	Prognose	bekannt oder geplant	bekannt	? (prognostiziert)
	Regulation	? (erlaubt)	bekannt	bekannt oder toleriert

Das Ziel der Forschung im wissenschaftlichen Bereich ist die Erklärung der beobachteten Prozesse. Dabei wird selten ein abschließender Erkenntnisstand postuliert, sondern ein verfeinertes Verständnis angestrebt, aus dem sich zumeist neue Fragestellungen ableiten. Im Fokus der radioökologischen Forschung steht dabei das Verständnis der

Transportwege der Radioisotope durch die Umwelt, wobei die resultierende Dosis für Menschen und andere Organismen nicht zwangsläufig ein Risiko darstellen muss. Behördliche Entscheidungsträger benötigen demgegenüber Entscheidungsgrundlagen, die so stabil sind, dass sie Rechtssicherheit ermöglichen. Ihre Aufgabe ist es, Gesundheitsschutz und Umweltschutz zu gewährleisten. Das bedeutet, dass sie von Modellen des Transportes der Radioisotope durch die Umwelt ausgehen müssen, die nicht in Frage stehen und nicht widerrufen werden. Sowohl für Prognosen über das Gefährdungspotential von bereits in der Umwelt existierenden Radioisotopen als auch für Genehmigungsentscheidungen für die Freisetzung von Radioisotopen müssen sie von einem radioökologischen Expositionsmodell ausgehen können, das für den Prognose- bzw. Genehmigungszeitraum Gültigkeit besitzt.

Es stellt sich daher die Frage, wie der aktuelle Stand von Wissenschaft und Technik in Expositionsabschätzungsverfahren, die Bestandteil von Genehmigungsverfahren sind, implementiert werden kann. Das Standortauswahlgesetz begegnet diesem Dilemma mit einem gestuften Verfahren der Sicherheitsbetrachtungen (§ 27 StandAG): *Vorläufige Sicherheitsuntersuchungen* werden in jeder Phase der Standortauswahl durchgeführt, wobei ihr Detaillierungsgrad von Phase zu Phase zunehmen wird. Die noch zu erlassende Rechtsverordnung, die ähnlich wie die bisherigen *Sicherheitsanforderungen* des BMU (2010) bestimmt, welche Anforderungen für die Durchführung der *Vorläufigen Sicherheitsuntersuchungen* gelten, ist alle zehn Jahre zu überprüfen und ggf. dem Stand von Wissenschaft und Technik anzupassen (§ 27 (6) StandAG). Darüber hinaus wird bereits in der Zielstellung³¹ des StandAGs darauf verwiesen, dass in einem „lernenden“ Verfahren der Standort mit der bestmöglichen Sicherheit ermittelt werden soll.

4.2 Diskussion der Ergebnisse der Untersuchungen zu Parametern der Iodmigration in Böden

Die Diskussion der Ergebnisse erfolgt im Hinblick auf die eingangs formulierten Forschungsfragen:

- Kann die weite Spannbreite der Angaben zum Verteilungskoeffizienten für Iod in Böden aus Datenbanken (IAEA) für mitteleuropäische Böden eingeengt werden?
- Welche Unterschiede im Sorptionsverhalten können für unterschiedliche Böden beobachtet werden?
- Welchen Einfluss haben unterschiedliche Untersuchungsmethoden auf die Bestimmung des Verteilungskoeffizienten?

³¹ „Mit dem Standortauswahlverfahren soll in einem partizipativen, wissenschaftsbasierten, transparenten, selbsthinterfragenden und lernenden Verfahren für die im Inland verursachten hochradioaktiven Abfälle ein Standort mit der bestmöglichen Sicherheit für eine Anlage zur Endlagerung nach § 9a Absatz 3 Satz 1 des Atomgesetzes in der Bundesrepublik Deutschland ermittelt werden.“

4.2.1 Spannbreite der Verteilungskoeffizienten für Iod im Boden

Zur ersten Frage konnte gezeigt werden, dass für 4 zentraleuropäische Referenzböden die Spannbreite der Verteilungskoeffizienten auf Werte zwischen $0,23 \pm 0,33$ bis $91 \pm 26 \text{ L kg}^{-1}$, also einen Bereich von 3 Größenordnungen, eingeengt werden konnte. Dieser Aussage müssen allerdings weitere Hinweise hinzugefügt werden. Zum einen zeigte sich, dass die K_d -Werte für die Konzentrationsbereiche zwischen 10^{-8} bis $10^{-4} \text{ mol L}^{-1}$ eine deutliche Konzentrationsabhängigkeit aufwiesen. Darüber hinaus zeigten sich die auch in der Literatur bereits aufgeführten Abhängigkeiten des Verteilungskoeffizienten im Hinblick auf den Gehalt der organischen Substanz in den Böden sowie die mikrobielle Aktivität, worauf in der Diskussion zum Unterschied des Sorptionsverhaltens bei unterschiedlichen Böden näher eingegangen wird. Zum Einfluss der Iodkonzentration auf die Verteilungskoeffizienten beschrieben auch Santschi et al. (2017), dass Iodid und Iodat in umweltrelevanten Konzentrationen ($\sim 10^{-7} \text{ M}$) signifikant durch Sorption an Mineraloberflächen und kovalenten Bindungen an organischem Material retardiert wurden, während bei höheren Konzentrationen, die traditionell in Laborversuchen eingesetzt werden (d.h. 10^{-4} M oder höher) Iodid nur vernachlässigbare Sorption an Böden zeigte und sich unretardiert mit dem Grundwasser bewegte. Auch Barthel und Geißmann (2006) betonen in ihrer Arbeit über das K_d -Konzept und seine Anwendung bei der radioökologischen Modellierung, dass

„die Nutzung von Literaturangaben zu K_d -Werten [...] nicht nur wegen der sehr starken Variabilität dieses Parameters in Abhängigkeit von den jeweiligen Bedingungen mit großen Unsicherheiten behaftet [ist]. In vielen Fällen sind auch die Angaben zu durchgeführten Messungen nicht ausreichend, um auf dieser Basis die Übertragbarkeit von Messwerten auf andere Bedingungen einschätzen zu können. [...] Unter Beachtung der verschiedenartigen Mechanismen der Sorption von gelösten Stoffen an feste Bodenbestandteile, ist festzustellen, dass die lineare Näherung von Sorptions-Isothermen, die dem K_d -Ansatz zugrunde liegt, in vielen Fällen nicht oder nur in grober Näherung gerechtfertigt ist. So wurde gezeigt, dass eine Ermittlung von K_d -Werten bei Konzentrationen des Sorptivs, die über dem Wertebereich einer späteren Anwendung des K_d -Wertes liegen, in der Regel mit einer erheblichen Unterschätzung der Sorption verbunden ist, wenn die Sorption in Wirklichkeit einer Langmuir-, BET-, Freundlich- oder Frumkin-Isotherme folgt. Zur Vermeidung grober Übertragungsfehler wäre es deshalb erforderlich, für die aus Messungen abgeleiteten K_d -Werte auch entsprechende Konzentrationsbereiche für deren Gültigkeit anzugeben, was jedoch kaum erfolgt.“

Die Ergebnisse der Säulenversuche gaben außerdem Hinweise darauf, dass der Effekt der erhöhten Sorption bei sinkender Iodidkonzentration unter realitätsnäheren Versuchsbedingungen noch stärker ausfallen kann, als in den Batchversuchen bereits beobachtet wurde.

4.2.2 Unterschiede im Sorptionsverhalten für unterschiedliche Böden

Im Hinblick auf die zweite Forschungsfrage konnte deutlich gezeigt werden, dass das Sorptionsverhalten für unterschiedliche Böden je nach Gehalt an organischer Substanz und mikrobieller Aktivität unterschiedlich stark war. Für den Fall des RefeSol 2 schien außerdem ein hoher Schluffgehalt eine Verstärkung der Sorption zu bewirken³². Neben den Beobachtungen des Sorptionsverhaltens in den Batchversuchen wiesen insbesondere die Ergebnisse der sequentiellen Extraktion darauf hin, dass eingetragenes Iodid vorrangig Bindungen mit der organischen Phase des Bodens einging. Diese Beobachtung stand im Einklang mit den Ergebnissen in der Literatur. So zeigten auch die Ergebnisse der sequentiellen Extraktion von ¹²⁹Iod und ¹²⁷Iod aus einem dänischen Boden (0-10 cm Oberboden) und einem IAEA Referenzboden (0-20 cm Oberboden) von Hansen (Hansen, Roos et al. 2011), dass 35 – 55 % des ¹²⁷Iod und 50 – 60 % des ¹²⁹Iod an die Fulvo- und Huminsäure in der organischen Phase im Boden assoziiert waren (Abbildung 33).

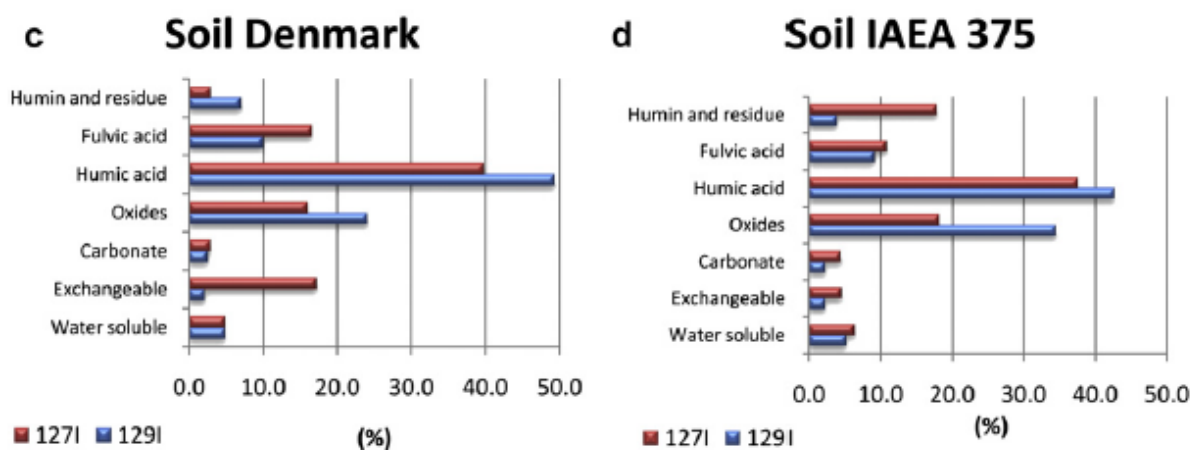


Abb. 33: Ergebnisse der sequentiellen Extraktion eines dänischen Bodens und eines IAEA-Referenzbodens (Hansen et al. 2011).

Auch Schwehr et al. (2009) wiesen in ihren Untersuchungen zur Bildung von Organoiod in Böden und Aquiferen bei Umweltkonzentrationen darauf hin, dass „die [untersuchten] Boden-Iod-Interaktionen irreversibel sind und dass die in den Böden und den Sedimenten vorhandene organische Substanz den K_d -Wert dramatisch anheben kann, was bedeutet, dass die Iod-Mobilität in Aquifer-Sedimenten stark retardiert wird.“

In den Batchversuchen mit natürlichen und sterilisierten Böden konnte der Einfluss der Sterilisation und damit der Mikroorganismen auf die Sorptionskapazität der Böden deutlich nachgewiesen werden. Diese Beobachtung befindet sich in Übereinstimmung mit Aussagen in der Literatur. Muramatsu et al. (1990) untersuchten in japanischen Böden die Rolle von Mikroorganismen auf die Akkumulation von Iod im Boden. Dabei konnten sie

³² Diese Beobachtung verdient weitere Untersuchungen zu Wechselwirkungen zwischen organischer Substanz und der Mineralphase im Boden, die Einfluss auf die Iodsorption haben könnten. Derzeit ist nicht ersichtlich, inwieweit der Schluffgehalt direkten Einfluss, auch in Abwesenheit von Mikroorganismen, auf die Sorption hat, oder indirekt über Bildungen von organo-mineralischen Verbindungen.

feststellen, dass durch die Sterilisation der Böden mittels Gammastrahlung von 27 kGy die Sorption reduziert wurde, die Reduktion allerdings schwächer ausfiel als bei den Böden, die durch Autoklavierung sterilisiert wurden³³. Dies wurde als Hinweis aufgefasst, dass die Abtötung der Mikroorganismen nicht die einzige Ursache für die Sorptionsreduktion darstellte, sondern auch die Veränderung der Stoffwechselprodukte der Organismen (wie beispielsweise Enzyme). Mittels Inkubationsversuchen wiesen Muramatsu et al. (2004) die aktive Rolle der Mikroorganismen nach. Autoklavierten Bodenproben wurde 1 % bzw. 10 % frischer Boden beigemischt. Eine Charge der gemischten Böden wurde für 6 Wochen inkubiert, eine zweite nicht behandelt. Es konnte deutlich gezeigt werden, dass durch die Inkubation, die das Wachstum und die Vermehrung der Mikroorganismen förderte, die Sorptionskapazität der Böden für Iodid deutlich gesteigert wurde, siehe Abbildung 34.

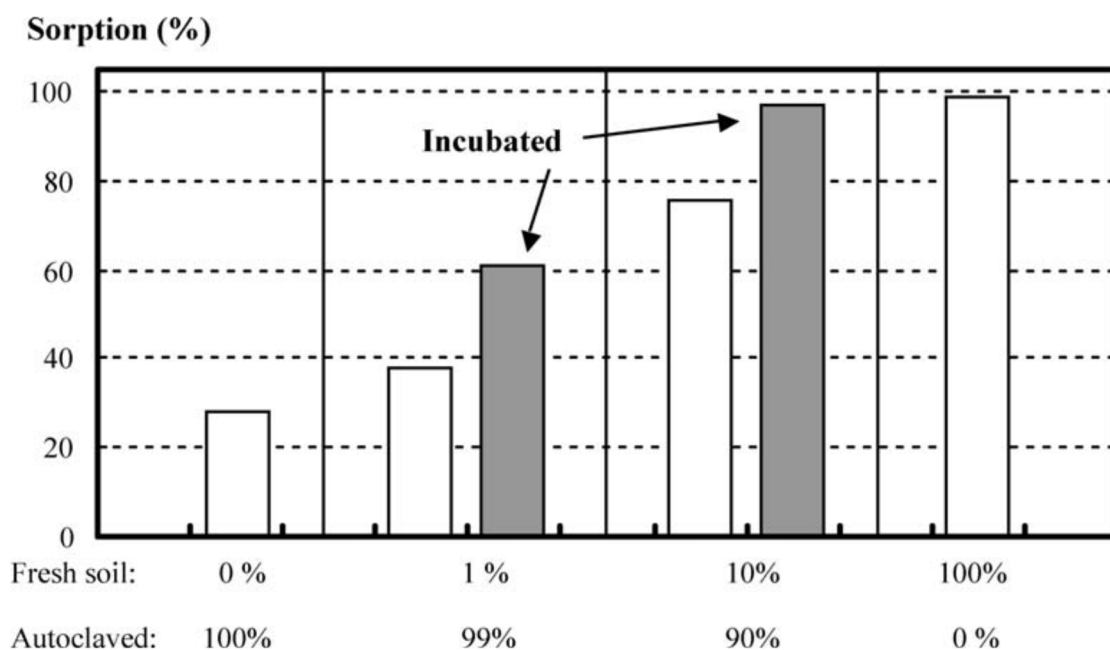


Abb. 34: Anstieg der Iodidsorption nachdem frischer Boden (1 % oder 10 %) mit autoklaviertem Boden gemischt wurde (Muramatsu et al. 2004).

Wie Amachi (2008) in seinen Ausführungen darlegte, gibt es zweierlei Hypothesen für die maßgeblichen Prozesse, durch die Mikroorganismen Einfluss auf die Sorption von Iod im Boden haben. Zum einen kann Iodid im Boden durch mikrobielle Enzyme zu I_2 oxidiert werden und anschließend in organische Verbindungen eingebaut werden. Zum anderen besteht die Möglichkeit, dass Iod an die Zellhülle von Mikroorganismen gebunden wird oder in die Zellen aufgenommen wird. Auch Gil-Garcia et al. (2009) wiesen in ihrer umfassenden Analyse von K_d -Werten für diverse Radioisotope in Böden auf eine komplexe Abhängigkeit des K_d -Wertes für Iod vom Gehalt an organischer Substanz, dem Wassergehalt, den Redox-Bedingungen und der mikrobiellen Aktivität hin.

³³ Eine Hypothese lautet, dass Gammastrahlung reaktive Oxidantien (ROS) produziert und somit einen oxidativen Prozess auslöst, der wiederum der sonst beobachteten Reduktion entgegenwirkt.

4.2.3 Einfluss unterschiedlicher Untersuchungsmethoden auf die Bestimmung der Verteilungskoeffizienten

Die Ergebnisse der Säulenversuche zeigen, dass die K_d -Werte, die durch Batchversuche ermittelt wurden, für niedrige Konzentrationen unter Versuchsbedingungen, die sich den natürlichen Umweltbedingungen annähern, nicht bestätigt werden konnten. Die beobachtete Retardation war für Iodidkonzentrationen $< 10^{-6} \text{ mol L}^{-1}$ höher als erwartet. Die Ergebnisse legten die Vermutung nahe, dass außer der Speziation des Iods, den chemischen Charakteristika des Bodenwassers und des Bodens auch biologische, kinetische und die Bodenstruktur betreffende Faktoren für die Sorption des Iods eine Rolle spielen. Die Rolle der mikrobiellen Aktivität könnte unter Umweltbedingungen noch stärker sein, als bereits in den Batchversuchen erkennbar war.

Auch Ashworth wies in seinen Artikeln (Ashworth und Shaw 2006; Weather et al. 2007) über Säulen-Experimente zur K_d -Wert-Bestimmung von Iod im Boden auf die Einschränkungen bei Batchversuchen hin. Durch den Säulenversuchsaufbau sowie den Untersuchungszeitraum von 49 Tagen konnten a) ein realistischeres Boden-Flüssigkeits-Verhältnis erreicht werden und b) zeitabhängige Veränderungen in den Boden-Variablen nachvollzogen werden. Seine Untersuchungen zeigten, dass der K_d -Wert im Verlauf von 30 Tagen anstieg und danach wieder sank. Damit konnte die Relevanz der Kontaktzeit und der biogeochemischen Prozesse für die Sorption von Iod im Boden gezeigt werden. In den Säulenversuchen wurde außerdem der Einfluss des Wassergehaltes auf die Sorption nachgewiesen, einem Parameter, der durch Batchversuche nicht erfasst werden kann und der einen indirekten Einfluss auf die Redox-Bedingungen und die mikrobielle Aktivität im Boden haben könnte. Die ermittelten K_d -Werte lagen zwischen 0,01 und 6 L kg^{-1} für anoxische und oxische Bedingungen (siehe Tabelle 18).

Tab. 18: Parameter für Iod aus Säulenversuchen (Weather et al. 2007)

Experiment ⁺	Root uptake coefficient (α') [$\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$]	Soil oxidation state	Sorption coefficient (K_d) [$\text{cm}^3 \text{g}^{-1}$]
Phase V	$6.0 \times 10^{-15} - 4.4 \times 10^{-13}$	Oxic	0.01–0.1
		Anoxic	0.6–3.0
Phase VII	N/A	Oxic	0.01
		Anoxic	1.0–6.0

⁺Soils were re-constituted Silwood soil sown with perennial ryegrass.

Die Ergebnisse deuteten darauf hin, dass Iod unter oxischen Bedingungen weniger mobil ist als unter anoxischen. Im Hinblick auf die Endlagerung bedeutet dies, dass Iod im Grundwasser in der gesättigten Zone (unterhalb des Grundwasserspiegels) nur in geringem Maße retardiert wird, wohingegen der Transport zur Bodenoberfläche durch Evapotranspiration innerhalb der gut durchlüfteten ungesättigten Zone durch stärkere Sorption verlangsamt wird. Ashworth et al. wiesen darauf hin, dass durch die Akkumulation von ^{129}I am Übergang der oxischen zu anoxischen Verhältnissen im

Boden ein potentielles Reservoir für ^{129}I entstehen könnte. Nach ihrer Auffassung sollte außerdem der Einfluss des schwankenden Grundwasserspiegels auf diesen Übergangsbereich langfristig untersucht werden, um die Freisetzungsbedingungen dieses Reservoirs zu erkennen.

Auch Mikrokosmos-Experimente von Shetaya et al. (2012) die über einen Zeitraum von 9 Monaten durchgeführt wurden, konnten die Vielschichtigkeit der relevanten Prozesse für die Sorption von Iod im Boden aufzeigen. Es konnte beobachtet werden, dass für Iod im Boden zweierlei Sorptionsprozesse mit unterschiedlicher Kinetik stattfanden. Die Reaktion des zugegebenen anorganischen Iods mit organischen Verbindungen in der Bodenlösung lief schnell ab, die Rate der Sorption an die Festphase war allerdings abhängig von der Ursprungsspeziation. So wurde Iodid innerhalb von Minuten bis zu Stunden fixiert, während der Prozess für Iodat innerhalb von Stunden bis hin zu Tagen ablief. Der pH-Wert der Bodenlösung schien nur Einfluss auf den ersten Teil des Transformationsprozesses zu haben, während der Anteil an organischer Bodensubstanz die langfristige Sorption steuerte. Auch Shetaya et al. wiesen darauf hin, dass die Kinetik des Iodtransportes nicht auf einen einzelnen Bodenparameter zurückgeführt werden konnte.

4.2.4 Zusammenfassung der Diskussion der experimentellen Untersuchungen

Durch die experimentellen Untersuchungen konnte die große Spannweite der Verteilungskoeffizienten in der Literatur für zentraleuropäische Böden eingengt werden. Gleichzeitig wurde ersichtlich, dass es Defizite in der Dokumentation der kontextuellen und experimentellen Rahmenbedingungen bei der Bestimmung der Verteilungskoeffizienten in der Literatur gibt. Dieses Problem hinsichtlich der Nutzung von Verteilungskoeffizienten bei der Modellierung radioökologischer Prozesse ist nicht neu. Bereits 1999 formulierte die US-amerikanische Environmental Protection Agency (EPA 1999) im Vorwort ihres Berichtes ‘Understanding Variation in Partition Coefficient, K_d -Values‘:

„Es ist wichtig zu betonen, dass Bodenkundler und Geochemiker, die sich mit Sorptionsprozessen in der Umwelt befassen, seit langem wissen, dass generische und standardmäßige Werte für Verteilungskoeffizienten, die in der Literatur gefunden werden, zu signifikanten Fehlern führen können, wenn sie dazu eingesetzt werden, die absoluten Auswirkungen der Migration von Schadstoffen vorauszusagen oder Flächensanierungs-Optionen abzuschätzen. Demzufolge ist eine der Haupt-Empfehlungen dieses Berichtes, dass für ortsspezifische Berechnungen ortsspezifische Verteilungskoeffizienten, die unter ortsspezifischen Bedingungen ermittelt wurden, absolut essentiell sind“ (Unterstreichung im Original, Anm. der Autorin).

Derartige Empfehlungen verweisen auf ein Problem prognostischer Expositionsabschätzungen, für die zukünftige Umweltbedingungen nicht bekannt sein können, wie beispielsweise für die zu betrachtenden Endlagerungszeiträume.

Die Untersuchungsergebnisse befinden sich außerdem in einer Linie mit Hinweisen darauf, dass der ^{129}I -Peak, der für potentielle Freisetzungen aus einem Endlager berechnet wird, durch die Immobilisierungs-Prozesse im Boden über einen längeren Zeitraum gestreckt und damit abgeflacht wird (Kaplan et al. 2014). Das hieße, dass die bisher errechneten maximalen Dosen nicht erreicht werden. Dennoch bleibt zu klären, inwieweit die Immobilisierungs-Prozesse im Boden zu Iod-Akkumulationen in bestimmten Bodenschichten führen können und unter welchen Bedingungen beschleunigte Freisetzungen erfolgen könnten.

Bei der Erstellung eines radioökologischen Modells finden notwendigerweise Simplifizierungen ökologischer Prozesse statt, allerdings sollten diese auf ihre Angemessenheit hin beleuchtet werden. Derzeit finden vermehrt Arbeiten statt, die testen, inwieweit die K_d -Werte, die in den radioökologischen Transfermodellen eingesetzt werden und zumeist aus Batchexperimenten stammen, durch Daten aus Feldversuchen validiert werden können³⁴. Wie aus der Literatur und der vorliegenden Untersuchung hervorgeht, steht die Retardation von Iod im Boden im Zusammenhang mit dem Kohlenstoffgehalt des Bodens und Stoffwechselprozessen von Mikroorganismen. Es konnte gezeigt werden, dass die Sorption von Iod in derartigen Substraten nicht linear verläuft, sondern konzentrationsabhängig ist. Daraus lässt sich folgern, dass die Darstellung und Modellierung der Sorption mit K_d -Werten für niedrige Konzentrationsbereiche, insbesondere für langfristige Prozesse, diskussionswürdig ist. Wie auch in der Literatur bereits erwähnt wird, legen die vorliegenden Untersuchungen nahe, für die Prognose langfristiger Prozesse im Boden die Kopplung von Iod an den Kohlenstoff-Kreislauf detaillierter zu untersuchen (Santschi und Schwehr 2004).

4.3 Schlussfolgerungen

Die Untersuchungen dieser Arbeit bewegten sich im Rahmen der interdisziplinären Thematik „Radioökologische Instrumente als fachliche Unterstützung zur regulatorischen Entscheidungsfindung“. Dabei wurde die Expositionsmodellierung im Rahmen eines sehr konfliktbehafteten gesellschaftlichen Themas untersucht: der Endlagerung der Wärme entwickelnden hochradioaktiven Abfälle. Dilemmata, die für die Expositionsabschätzung auch in anderen Bereichen des Gesundheits- und Umweltschutzes auftreten, entwickeln in einer gesellschaftlichen Situation der beständigen Kontroverse ein besonderes Gewicht.

Es ist unbestritten, dass die radioökologische Expositionsabschätzung für die Sicherheitsbetrachtungen eines Endlagers eine große Rolle spielt, um die realistischen Entwicklungen bei der potentiellen Migration von Radioisotopen vom Fernfeld in die Biosphäre darstellen zu können. Es wurde deutlich, dass die Prozesse in der Biosphäre weiterhin untersucht werden müssen, um potentielle Akkumulationen und zukünftige Freisetzungsregimes in der Biosphäre besser beschreiben zu können. Die realen Prozesse müssen verstanden und in ihrer Relevanz eingeschätzt werden, um die Rechtfertigung für

³⁴ (<https://tree.ceh.ac.uk/>)

den gewählten konservativen Ansatz oder das gewählte Szenario zu geben. Gleichzeitig ist zu betonen, dass die Expositionswerte aus derartigen Betrachtungen nicht als Sicherheitskriterien oder -indikatoren dienen können, sondern aufgrund der schlechten Prognostizierbarkeit der betrachteten Systeme nur zu Demonstrationszwecken eingesetzt werden können. Solche Demonstrationen des jeweiligen Kenntnisstandes sind allerdings ein nicht zu unterschätzender Bestandteil eines lernenden Verfahrens, wie es für den Endlagerungsprozess angestrebt wird. Holmes et al. (2009) weisen darauf hin, dass für die angemessene Interpretation der Ergebnisse der ‚regulatory models‘ die Kommunikation zwischen Wissenschaftlern und Nicht-Wissenschaftlern obligatorisch ist³⁵. Auch Schütz et al. (2003) verwiesen in ihrer Arbeit zur Risikoregulierung auf die große Spannbreite der involvierten Prozesse, Institutionen und Stakeholder, sie zitieren zudem die Ergebnisse der 2003 eingesetzten Risikokommission:

„Im gesellschaftlichen Umgang mit Risiken sind Risikoabschätzung, Risikobewertung und Risikomanagement in vielfältiger Weise aufeinander bezogen. Zugleich stellen sie aber auch eine Abfolge notwendiger Schritte für die rationale Regulierung von Risiken dar. Die Risikokommission (2003) bezeichnet diesen Gesamtprozess von der Risikoabschätzung über die Risikobewertung bis hin zum Risikomanagement als Risikoregulierung. [...]

Nach Ansicht der Risikokommission sollten in diesem gesamten Prozess nicht nur Fachleute involviert sein, sondern auch andere gesellschaftliche Gruppen: „Risikobewertungen stoßen in einer Gesellschaft, in der Wertepluralismus herrscht und politische Handlungen stets unter hohem Rechtfertigungsdruck stehen, oft auf Skepsis und Misstrauen. Aussagen über Risiken sind daher mehr als andere Aussagen auf Plausibilität und Vertrauen in die Regulierungsgremien angewiesen. Je mehr Individuen und Gruppen die Möglichkeit haben, aktiv an der Risikoregulierung mitzuwirken, desto größer ist die Chance, dass sie Vertrauen in die Institutionen entwickeln und auch selbst Verantwortung übernehmen. [...] Insofern ist eine frühzeitige und gegenseitige Beteiligung der Betroffenen und der organisierten gesellschaftlichen Gruppen an der Entscheidungsfindung sachlich angemessen sowie rechtsstaatlich und demokratisch geboten.“

Die Ergebnisse der vorgelegten Studie legen nahe, mehr institutionelle Plattformen für policy-Verhandlungen zwischen Wissenschaftlern, Stakeholdern und Entscheidungsträgern zu schaffen. Die Debatte um die Sicherheit eines Endlagers sowie die Darstellbarkeit der Sicherheit muss in größerem Rahmen geführt werden, um zu akzeptierten Lösungen zu finden. Wie am Beispiel des Iods am Boden gezeigt werden konnte, sind die natürlichen Prozesse in der Biosphäre zu komplex und zu variabel, um eindeutige Entscheidungsgrundlagen zu liefern.

³⁵ „Models have a prominent future in the environmental decision-making process because they provide insight and information that clearly outweighs their imperfection. [...] Computational models will continue to provide linkages for interpretation, but as science gets more complex, it can easily become more isolated from non-scientists, whose mistrust of science might increase. Ultimately, this can seriously damage the scientific endeavor. Thus, it is incumbent on both scientists and non-scientists to develop a strong communication bridge.”

4.4 Fazit

*Es gibt Fragen, auf die Antwort zu geben unmöglich ist,
doch ebenso unmöglich ist es, sie nicht zu stellen.*

Imre Kertész, Galeerentagebuch, 9. November 1975

Die Expositionsmodellierung nimmt eine schwierige Stellung in der Regulierung und im Management der Endlagerung hochradioaktiver Abfälle ein: Obgleich die Sicherheitsaussagen im Strahlenschutz größtenteils auf Dosisaussagen rekurrieren, können solche Aussagen im Hinblick auf die Endlagerungszeiträume und -szenarien nur unter großen Ungewissheiten gegeben werden, die nur eine geringe prognostische Güte zulassen. Wie kann dennoch die „strahlenschützerische Sicherheit“ demonstriert werden, ohne zugleich eine neue Größe zu definieren? Ist ein komplexes Gebilde wie der Safety Case in der Lage dieses Dilemma auszugleichen (siehe auch (Röhlig und Eckhardt 2017))?

Es bedarf einer vertieften Diskussion über die Experten-Gremien hinaus, wie die Langzeitsicherheit eines Endlagers für Wärme entwickelnde hochradioaktive Abfälle dargestellt werden kann.

4.5 Ausblick

Im Hinblick auf die Weiterentwicklung der Expositionsabschätzung bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle sind zu Fragen des Iod-Transfers im Boden zukünftige Arbeiten in folgenden Bereichen hilfreich:

- Insoweit Verteilungskoeffizienten in Datenbanken angegeben werden, ist es notwendig, dass auch kontextuelle Angaben gemacht werden, die die Untersuchungsmethode, die Stoffkonzentration und Ionenstärke des Bodenwassers, als auch die Bodencharakteristik, das Bodengefüge und die Vorbehandlung des Bodens³⁶ betreffen.
- Darüber hinaus bedarf es der Untersuchungen, mit denen herausgefunden werden kann, welche Umweltbedingungen günstig für die Akkumulation von Iod im Boden sind und welche Rahmenbedingungen wieder zu einer Freisetzung von Iod führen können. Infolge dessen könnten „tipping points“³⁷ identifiziert werden. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit konnte die Volatilisierung als Freisetzungspfad nicht untersucht werden. Für das Verständnis langfristiger Prozesse müsste dieser Prozess mit einbezogen werden.
- Es ist zu bedenken, wie der Einfluss der Mikroorganismen in die Modellierung des langfristigen Verhaltens von Iod im Boden integriert werden kann.

³⁶ In der Literatur finden sich Untersuchungen, die keine Bodencharakteristik angeben. Teilweise werden Böden im Vorfeld erhitzt, was Einfluss auf die Aktivität der Mikroorganismen hat.

³⁷ Umschlagpunkte.

Literaturverzeichnis

AtG (2015). Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren (Atomgesetz), Bonn, Bundesgesetzblatt.

Amachi, S. (2008). "Microbial Contribution to Global Iodine Cycling: Volatilization, Accumulation, Reduction, Oxidation, and Sorption of Iodine." *Microbes and Environments* **23**(4): 269-276.

Appelo, C. A. J., Postma, D. (2005). *Geochemistry, Groundwater and Pollution*. Leiden, A. A. Balkema.

Ashworth, D. J. (2009). Transfers of Iodine in the Soil-Plant-Air-System: Solid-Liquid Partitioning, Migration, Plant Uptake and Volatilization. *Comprehensive Handbook of Iodine - Nutritional, Biochemical, Pathological and Therapeutical Aspects*. V. Preedy, G. N. Burrow and R. R. Watson. Burlington, USA, Elsevier.

Ashworth, D. J., Shaw G. (2006). "Effects of moisture content and redox potential on in situ Kd values for radioiodine in soil." *Science of the Total Environment* **359**(1–3): 244-254.

Barthel, R., Geißmann G. (2006). Kd-Konzept und seine Anwendung für natürliche Radionuklide (Bericht zum Vorhaben StSch 4396). Aachen, Brenk Systemplanung GmbH.

Barthel, R., Thierfeldt S. (2015). Vergleichende Betrachtung der probabilistischen/stochastischen und deterministischen Modellierung von Expositionen im Hinblick auf die Belastbarkeit des Modellergebnisses und die Anforderungen an die Qualität der Eingangsdaten - Vorhaben 3609S50002. Ressortforschungsberichte zur kerntechnischen Sicherheit und zum Strahlenschutz. Salzgitter.

BIOPROTA (2016). Report of the 2016 BIOPROTA Annual Workshop - Brussels, Belgium, 18-19 April 2016, BIOPROTA - Key Issues in Biosphere Aspects of Assessment of the Long-term Impact of Contaminant Releases Associated with Radioactive Waste Management.

BMI (1979). Allgemeine Berechnungsgrundlage für die Strahlenexposition bei radioaktiven Ableitungen mit der Abluft oder in Oberflächengewässer (Richtlinie zu § 45 StrlSchV). Bundesministerium des Inneren, Gemeinsames Ministerialblatt.

BMU. www.jodblockade.de. Stand 6.8.2018.

BMU (2010). Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle, Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: 22.

BMU (2012). Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 47 der Strahlenschutzverordnung (Ermittlung der Strahlenexposition durch die Ableitung radioaktiver Stoffe aus Anlagen oder Einrichtungen) vom 28. August 2012. Bundesanzeiger, Bundesministerium der Justiz.

BMUB (2015). Programm für eine verantwortungsvolle und sichere Entsorgung bestrahlter Brennelemente und radioaktiver Abfälle (Nationales Entsorgungsprogramm), Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit: 26.

Böhret, C., Jann, W. et al. (1988). Innenpolitik und politische Theorie. Opladen, Westdeutscher Verlag.

Brans, M., Ferraro G. et al. (2015). The OECD Nuclear Energy Agency's Forum on Stakeholder Confidence, radioactive waste management and public participation - A synthesis of its learnings and guiding principles. Luxembourg, European Commission.

Brunnengräber, A., Mez L. et al. (2012). "Nukleare Entsorgung: Ein "wicked" und höchst konfliktbehaftetes Gesellschaftsproblem." Technikfolgenabschätzung - Theorie und Praxis **21** Jg.(3): 59-65.

Buhmann, D., Mönig J. et al. (2008). Untersuchungen zur Ermittlung und Bewertung von Freisetzungsszenarien - Teilbericht zu ISIBEL - "Überprüfung und Bewertung des Instrumentariums für eine sicherheitliche Bewertung von Endlagern von HAW". Braunschweig, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: 120.

Bundestag (2015). Anforderungen an Endlagersicherheit - Kommission Lagerung hoch radioaktiver Abfallstoffe - Anhörung 19.11.2015. heute im Bundestag (hib).

Chapman, N., McCombie C. (2003). Principles and standards for the disposal of long-lived radioactive wastes. Amsterdam, Pergamon.

DAEF (2017). Standortauswahl für ein Endlager für Wärme entwickelnde radioaktive Abfälle - Empfehlungen der DAEF zu Rolle und Methodik der im Standortauswahlgesetz vorgesehenen Sicherheitsuntersuchungen, Deutsche Arbeitsgemeinschaft Endlagerforschung (DAEF).

Dai, J. L., Zhang M. et al. (2004). "Adsorption and desorption of iodine by various Chinese soils - I. Iodate." *Environment International* **30**(4): 525-530.

Di Nucci, M., Brunnengraeber A. et al. (2017). From the “right to know” to the “right to object” and “decide”. A comparative perspective on participation in siting procedures for high level radioactive waste repositories. *Progress in Nuclear Energy* **100c**: 316-325.

Drögemüller, C. (2018). Schlüsselakteure der Endlager-Governance - Entsorgungsoptionen und -strategien radioaktiver Abfälle aus Sicht regionaler Akteure. Wiesbaden, Springer VS Verlag für Sozialwissenschaften.

ENTRIA (2014). Memorandum zur Entsorgung hochradioaktiver Reststoffe. Röhlig, K. J. et al. (Hrsg). Hannover.

EPA (1992). Guidelines for Exposure Assessment. Washington, DC, U.S. Environmental Protection Agency.

EPA (1999). Understanding Variation in Partition Coefficient, K_d , Values - Volume I: The K_d Model, Methods of Measurement, and Application of Chemical Reaction Codes, U.S. Environmental Protection Agency.

Esposito, E. (2007). Die Fiktion der wahrscheinlichen Realität. Frankfurt am Main, Suhrkamp Verlag.

EURATOM (2011). Richtlinie 2011/70/Euratom des Rates vom 19. Juli 2011 über einen Gemeinschaftsrahmen für die verantwortungsvolle und sichere Entsorgung abgebrannter Brennelemente und radioaktiver Abfälle. Amtsblatt der Europäischen Union.

Firestone, R. B., Shirley, V. S. (1997). "Table of isotopes (Eighth edition)". New York, John Wiley & Sons, Inc.

Fuge, R. (1996). Geochemistry of iodine in relation to iodine deficiency diseases. In J. D. Appleton, R. Fuge, G. J. H. McCall (eds): *Environmental Geochemistry and Health*, with Special Reference to Developing Countries. 201-211.

Fuge, R., Johnson C. C. (1986). "The geochemistry of iodine - a review." *Environmental Geochemistry and Health* **8**(2): 31-54.

Fuge, R., Johnson, C. C. (2015). "Iodine and human health, the role of environmental geochemistry and diet, a review." *Applied Geochemistry* **63**: 282-302.

Gephart, R. E. (2010). "A short history of waste management at the Hanford Site." *Physics and Chemistry of the Earth* **35**(6-8): 298-306.

Gil-Garcia, C., Tagami, K. et al. (2009). "New best estimates for radionuclide solid-liquid distribution coefficients in soils. Part 3: miscellany of radionuclides (Cd, Co, Ni, Zn, I, Se, Sb, Pu, Am, and others)." *Journal of Environmental Radioactivity* **100**: 704-715.

Gläser, J., Laudel, G. (2009). *Experteninterviews und qualitative Inhaltsanalyse als Instrument rekonstruierender Untersuchungen*. Wiesbaden, VS Verlag für Sozialwissenschaften.

Glueckauf, E. (1961). *Atomic Energy Waste - Its Nature, Use and Disposal*. New York, Interscience Publication.

Hansen, V., Roos, P. et al. (2011). "Partition of iodine (I-129 and I-127) isotopes in soils and marine sediments." *Journal of Environmental Radioactivity* **102**(12): 1096-1104.

Holmes, K. J., Graham, J. A. et al. (2009). "Regulatory Models and the Environment: Practice, Pitfalls, and Prospects." *Risk Analysis* **29**(2): 159-170.

Hou, X. L., Fogh, C. L. et al. (2003). Chemical fractionation of iodine-129 and cesium-137 in Chernobyl contaminated soil and Irish Sea sediment. *Environmental Radiochemical Analysis*. P. Warwick: 410-417.

Hou, X. L., Povinec, P. P. et al. (2013). "Iodine-129 in Seawater Offshore Fukushima: Distribution, Inorganic Speciation, Sources, and Budget." *Environmental Science & Technology* **47**(7): 3091-3098.

Hu, Q., Moran, J. E. (2010). Iodine. In Atwood D. A.(ed): *Radionuclides in the Environment*. Chichester, United Kingdom, Wiley: 167-178.

Hu, Q. H., Zhao, P. H. et al. (2005). "Sorption and transport of iodine species in sediments from the Savannah River and Hanford Sites." *Journal of Contaminant Hydrology* **78**(3): 185-205.

IAEA (2003). "Reference Biospheres" for solid radioactive waste disposal - Report of Biomass Theme 1 of the BIOSphere Modelling and ASSESSment (BIOMASS) Programme, Part of the IAEA Co-ordinated Research Project on Biosphere Modelling and Assessment (BIOMASS), International Atomic Energy Agency: 560.

IAEA (2009). Quantification of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments. Technical Document 1616. International Atomic Energy Agency, Vienna.

IAEA (2010). Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. Technical Report 472. International Atomic Energy Agency, Vienna.

IAEA (2012a). Environmental Modelling for Radiation Safety (EMRAS) - A Summary Report of the Results of the EMRAS Programme (2003-2007). Technical Documents. International Atomic Energy Agency, Vienna.

IAEA (2012b). The Safety Case and Safety Assessment for the Disposal of Radioactive Waste. International Atomic Energy Agency, Vienna.

ICRER (2017). 4th International Conference on Radioecology and Environmental Radioactivity (ICRER) 3.-8. September 2017, Berlin. Workshop on Radioecology as a Support to Regulatory Decision Making on NORM and other Legacies, Related Waste Management and Disposal.

ICRP (2007). 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection - ICRP Publication 103. Orlando.

ICRP (2008). Environmental Protection - the Concept and Use of Reference Animals and Plants. ICRP Publication 108. Annals of the ICRP, International Commission on Radiological Protection.

ICRP (2013). Radiological protection in geological disposal of long-lived solid radioactive waste - ICRP Publication 122. International Commission on Radiological Protection.

Iden, S., Durner, W. (2014). Environmental Fate: Laborexperimente für Studierende der Vertiefung "Schadstoffmonitoring und -modellierung" im Masterstudiengang Geoökologie. Braunschweig, Technische Universität Braunschweig, Institut für Geoökologie, Bodenkunde und Bodenphysik.

Ito, K. , Hirokawa, T. (2009). Iodine and Iodine Species in Seawater: Speciation, Distribution and Dynamics. In Preedy, V., Burrow G. N., Watson, R. R. Eds. Comprehensive Handbook of Iodine - Nutritional, Biochemical, Pathological and Therapeutical Aspects. Burlington, USA, Elsevier.

Kahneman, D. (2011). Thinking, Fast and Slow. London, Penguin Books Ltd.

Kaplan, D. I., Denham, M. E., et al. (2014). "Radioiodine Biogeochemistry and Prevalence in Groundwater." *Critical Reviews in Environmental Science and Technology* **44**(20): 2287-2335.

Lewis, J., Sjostrom, J. (2010). "Optimizing the experimental design of soil columns in saturated and unsaturated transport experiments." *Journal of Contaminant Hydrology* **115**(1-4): 1-13.

Limousin, G., Gaudet, J. P., et al. (2007). "Sorption isotherms: A review on physical bases, modeling and measurement." *Applied Geochemistry* **22**(2): 249-275.

Lusa, M., Bomberg, M., et al. (2015). "Sorption of radioiodide in an acidic, nutrient-poor boreal bog: insights into the microbial impact." *Journal of Environmental Radioactivity* **143**: 110-122.

Mayring, P., Gläser-Zikuda M. (Hrsg.) (2008). Die Praxis der Qualitativen Inhaltsanalyse. Weinheim und Basel, Beltz Verlag.

Mekel, O., Mosbach-Schulz, O., et al. (2007). Evaluation von Standards und Modellen zur probabilistischen Expositionsabschätzung (Abschlussbericht zum Projekt Xprob); Teil 1: Grundlagen der bevölkerungsbezogenen Expositionsmodellierung; Teil 2: Empfehlungen für Expositions faktoren; Teil 3: Szenarien. WaBoLu-Hefte. Dessau, Umweltbundesamt.

Meuser, M. , Nagel, U. (2009). Das Experteninterview - konzeptionelle Grundlagen und methodische Anlage. Methoden der vergleichenden Politik- und Sozialwissenschaft - Neue Entwicklungen und Anwendungen. S. Pickel, G. Pickel, H.-J. Lauth and D. Jahn. Wiesbaden, Springer Verlag: 465-479.

Mönig, J., Buhmann, D., et al. (2012). Grundzüge des Sicherheits- und Nachweiskonzeptes ,Bericht zum Arbeitspaket 4, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben, mit Corrigendum Dezember 2011 und Änderung der Vorbemerkung Dezember 2012. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Braunschweig'.

Mosbach-Schulz, O. (2013). Wissenschaftliche Risikobewertung - wie unsicher ist sicher? In LÜKEX 2013, Wissenschaftliche Unsicherheit und Krisenkommunikation in außergewöhnlichen biologischen Bedrohungslagen, Tagungsband des 3. Themenworkshops, Herausforderungen für Behörden im Bereich Gesundheit,

gesundheitlicher Verbraucherschutz und Sicherheit, 18. und 19. Juni 2013. Bad Breisig, Bundesamt für Bevölkerungsschutz und Katastrophenhilfe: 38-47.

Mrdakovic Popic, J., Sneve, M. K. et al. (2018). Radioecology as a Support to Regulatory Decision making on NORM and other Legacies, Related Waste Management and Disposal - Report of an International Workshop, Berlin, 3 September 2017. StrålevernRapport. Osteras, Statens strålevern (Norwegian Radiation Protection Agency, NRPA), SCK CEN (Belgian Nuclear Research Center): 55.

Müller-Lyda, I., Sailer, M. et al. (2008). Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle in Deutschland. GRS 247. Öko-Insitut e.V. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH.

Muramatsu, Y., Uchida, S. et al. (1990). "Some considerations on the sorption and desorption phenomena of iodide and iodate on soil." *Water Air Soil Pollut.* **49**: 125-138.

Muramatsu, Y., Yoshida, S. et al. (2004). "Studies with natural and anthropogenic iodine isotopes: iodine distribution and cycling in the global environment." *Journal of Environmental Radioactivity* **74**(1-3): 221-232.

Müssig, K. (2009). Iodine-Induced Toxic Effects due to Seaweed Consumption. In Preedy, V., Burrow, G. N., Watson, R. R. (eds). *Comprehensive Handbook of Iodine - Nutritional, Biochemical, Pathological and Therapeutical Aspects*. Burlington, USA, Elsevier.

OECD/NEA (1999). The role of the analysis of the biosphere and human behaviour in integrated performance assessment, Organisation for Economic Co-operation and Development - Nuclear Energy Agency, Radioactive Waste Management Committee.

OECD/NEA (2000). Features, Events and Processes (FEPs) for Geologic Disposal of Radioactive Waste - An International Database. Radioactive Waste Management. Paris, Organisation for Economic Co-operation and Development - Nuclear Energy Agency.

OECD/NEA (2007). Regulating the Long-term Safety of Geological Disposal - Towards a Common Understanding of the Main Objectives and Bases of Safety Criteria. Radioactive Waste Management, Nuclear Energy Agency, Organisation for Economic Co-operation and Development: 25 + appendices.

OECD/NEA (2012). Indicators in the Safety Case - A report of the Integrated Group on the Safety Case (IGSC), Organisation for Economic Co-operation and Development - Nuclear Energy Agency.

Petty, R. E., Cacioppo, J. T. (1986). "The Elaboration Likelihood Model of Persuasion." *Advances in experimental social psychology* **19**: 123-205.

Poinssot, C., Geckeis, H., Eds. (2012). *Radionuclide behaviour in the natural environment - science, implications and lessons for the nuclear industry*. Woodhead Publishing Series in Energy. Cambridge, UK; Philadelphia, USA, Woodhead Publishing.

Pröhl, G. , Gering, F. (2002). Dosiskonversionsfaktoren zur Berechnung der Strahlenexposition in der Nachbetriebsphase von Endlagern nach dem Entwurf der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zu § 47 Strahlenschutzverordnung in Anlehnung an die Vorgehensweise im Rahmen des Planfeststellungsverfahrens des geplanten Endlagers Konrad, Bundesamt für Strahlenschutz.

Pröhl, G., Olyslaegers, G., et al. (2005). "Development and comparison of five site-specific biosphere models for safety assessment of radioactive waste disposal." *Journal of Radiological Protection* **25**(4): 343-373.

Reiller, P., Moulin, V. (2003). Chemical Data on Iodine-Natural Organic Matter Interactions. Humic substances in performance assessment of nuclear waste disposal: Actinide and iodine migration in the far field - Wissenschaftliche Berichte FZKA 6800. G. Buckau. Karlsruhe, Forschungszentrum Karlsruhe.

Risikokommission (2003). Abschlussbericht der Risikokommission - Im Auftrag des Bundesministeriums für Gesundheit und Soziale Sicherung und des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit. Aktionsprogramm Umwelt und Gesundheit. Salzgitter, Ad hoc-Kommission "Neuordnung der Verfahren und Strukturen zur Risikobewertung und Standardsetzung im gesundheitlichen Umweltschutz der Bundesrepublik Deutschland". <http://nbn-resolving.de/urn:nbn:de:0221-201004071338>.

Röhlig, K.-J. (2017). Endlagerforschung: Technische Herausforderungen vor dem Hintergrund gesellschaftlicher Konflikte. In: Jahrbuch 2016 Braunschweigische Wissenschaftliche Gesellschaft, J.Cramer Verlag: 100 - 114.

Röhlig, K.-J., Eckhardt, A. (2017). "Primat der Sicherheit. Ja, aber welche Sicherheit ist gemeint?" *GAIA Ecological Perspectives for Science and Society* **26**(2): 103-105.

Salbu, B. (2013). Summary Presentation of the Radioecology Course. O. C. Lind. As, Norway, Norwegian University of Life Sciences (UMB).

Salminen, R. (Ed) (2005). Geochemical Atlas of Europe. A contribution to IUGS/IAGC Global Geochemical Baselines, EuroGoSurveys, GTK Geological Survey of Finland, Forum of European Geological Surveys (FOREGS). Part 1 and Part 2.

Santschi, P. H., Schwehr K. A. (2004). "¹²⁹I/¹²⁷I as a new environmental tracer or geochronometer for biogeochemical or hydrodynamic processes in the hydrosphere and geosphere: the central role of organo-iodine." *Science of the Total Environment* **321**(1–3): 257-271.

Santschi, P. H., C. Xu, et al. (2017). "Recent advances in the detection of specific natural organic compounds as carriers for radionuclides in soil and water environments, with examples of radioiodine and plutonium." *Journal of Environmental Radioactivity* **171**: 226-233.

Scheffer, F., P. Schachtschabel, et al. (2010). *Lehrbuch der Bodenkunde*. Heidelberg, Spektrum Akademischer Verlag.

Schlegel, M. L., Reiller, P. et al. (2006). "Molecular environment of iodine in naturally iodinated humic substances: Insight from X-ray absorption spectroscopy." *Geochimica et Cosmochimica Acta* **70**(22): 5536-5551.

Schmidt, G., Kallenbach-Herbert, B. et al. (2017). VP5 Option Endlagerung ohne Vorkehrungen zur Rückholbarkeit - Technik- und Sicherheitsaspekte - Im Auftrag der ENTRIA-Forschungsplattform. Freiburg, Öko-Institut e.V.: 106.

Schmitz, K., Aumann, D. C. (1995). "A study on the association of two iodine isotopes, of natural I-127 and of the fission product I-129, with soil components using a sequential extraction procedure." *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry-Articles* **198**(1): 229-236.

Schütz, H., Wiedemann, P. M. et al. (2003). *Vergleichende Risikobewertung - Konzepte, Probleme und Anwendungsmöglichkeiten - Abschlussbericht zum BfS-Projekt StSch 4217 "Risikobewertung und -management: Ausarbeitung von Konzepten eines integrierten und vergleichenden Risikoansatzes"*, Programmgruppe "Mensch, Umwelt, Technik" (MUT), Forschungszentrum Jülich GmbH.

Schwehr, K. A., Santschi, P. H. et al. (2009). "Organo-Iodine Formation in Soils and Aquifer Sediments at Ambient Concentrations." *Environmental Science & Technology* **43**(19): 7258-7264.

Schwehr, K. A., Santschi, P. H. et al. (2005). "Near-conservative behavior of I-129 in the orange county aquifer system, California." *Applied Geochemistry* **20**(8): 1461-1472.

Schwinger, M. (2014). Deutschlandweite Untersuchung der ^{129}I - und ^{127}I -Inventare und ihres Isotopenverhältnissen in verschiedenen Umweltkompartimenten. Dissertation an der Naturwissenschaftlichen Fakultät. Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover.

Shetaya, W. H., Young, S. D. et al. (2012). "Iodine dynamics in soils." *Geochimica Et Cosmochimica Acta* **77**: 457-473.

Skipperud, L. and B. Salbu (2015). "Sequential extraction as a tool for mobility studies of radionuclides and metals in soils and sediments." *Radiochimica Acta* **103**(3): 187-197.

Smeddinck, U., König, C. Eds. (2016). Grenzwertbildung im Strahlenschutz - Physik, Recht, Toxikologie; Grundlagen, Kontraste, Perspektiven. Braunschweiger Rechtswissenschaftliche Studien. Berlin, BWV Berliner Wissenschafts-Verlag.

SSK (1984). Möglichkeiten und Grenzen der Anwendung der Kollektivdosis. Empfehlungen der Strahlenschutzkommission, Strahlenschutzkommission.

SSK (1992). Modelle, Annahmen und Daten mit Erläuterungen zur Berechnung der Strahlenexposition bei der Ableitung radioaktiver Stoffe mit Luft oder Wasser zum Nachweis der Einhaltung der Dosisgrenzwerte nach § 45 StrlSchV. Stuttgart, Gustav Fischer Verlag.

SSK (2013). Ermittlung der Strahlenexposition. Empfehlung der Strahlenschutzkommission. Strahlenschutzkommission, Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit.

StandAG (2017). Gesetz zur Suche Auswahl eines Standortes für ein Endlager für hochradioaktive Abfälle (Standortauswahlgesetz - StandAG), Bonn, Bundesgesetzblatt.

Staudt, C., Semiochkina, N. et al. (2012). Fachliche Unterstützung des BfS bei der Erstellung von Referenzbiosphärenmodellen für den radiologischen Langzeitsicherheitsnachweis von Endlagern - Modellierung des Radionuklidtransports in Biosphärenobjekten - Abschlussbericht für das Vorhaben BfS 3609S50005, Bundesamt für Strahlenschutz.

StrlSchG (2017). Gesetz zur Neuordnung des Rechts zum Schutz vor der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlung (Strahlenschutzgesetz - StrlSchG). Teil I Nr. 422. Bonn, Bundesgesetzblatt.

StrlSchV (2001). Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung - StrlSchV), Bonn, Bundesgesetzblatt.

StrlSchV (2018). Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung - StrlSchV) innerhalb der "Verordnung zur weiteren Modernisierung des Strahlenschutzrechtes". Bonn, Bundesgesetzblatt.

Texier, D., Loutre, M. F. et al. (2003). Modelling BIOSphere systems under CLIMate change for radioactive waste disposal (BIOCLIM). International High-Level Waste Management Conference, March 3 - April 2, 2003. Las Vegas.

Till, J. E., Grogan, H. A. Eds. (2008). Radiological Risk Assessment and Environmental Analysis. New York, Oxford University Press.

UBA und IME (2013). "RefeSol." www.refesol.de.

Uematsu, S., Vandenhove, H. et al. (2016). "Variability of the soil-to-plant radiocesium transfer factor for Japanese soils predicted with soil and plant properties." *Journal of Environmental Radioactivity* **153**: 51-60.

van den Hove, S. (2007). "A rationale for science-policy interfaces." *Futures* **39**(7): 807-826.

Van Genuchten, M. T. Wierenga, P. J. (1986). Solute Dispersion Coefficients and Retardation Factors. In Klute A. (Eds). *Methods of Soil Analysis, Part 1: Physical and Mineralogical Methods*. Madison, USA, American Society of Agronomy, Inc., Soil Science Society of America, Inc.

Weather, H. S., Bell, J. N. B. et al. (2007). *Biosphere Implications Of Deep Disposal Of Nuclear Waste: The Upwards Migration of Radionuclides in Vegetated Soils*. London, Imperial College Press. **5**.

Weinfurtner, K., W. Böhmer, et al. (2005). Abschlussbericht - Informationen zur Charakterisierung von Referenzböden - Speziierung und Beschreibung des Verhaltens von Schadstoffen in Referenzböden. Dessau, Fraunhofer-Institut für Molekularbiologie und Angewandte Oekologie, Schmallenberg: 177.

Whitehead, D. C. (1974). "The Sorption of Iodide by Soil Components." *Journal of the Science of Food and Agriculture* **25**: 73-79.

Whitehead, D. C. (1978). "Iodine in soil profiles in relation to iron and aluminium-oxides and organic matter" *Journal of Soil Science* **29**(1): 88-94.

Whitehead, D. C. (1984). "The Distribution and Transformations of Iodine in the Environment" *Environment International* **10**(4): 321-339.

WHO (2004). Iodine status worldwide - WHO Global Database on Iodine Deficiency. Geneva, Department of Nutrition for Health and Development, World Health Organization.

Wiedemann, P. M., Löchtefeld, S. et al. (2009). Laiengerechte Kommunikation wissenschaftlicher Unsicherheiten im Bereich EMF. Abschlussbericht zum Forschungsvorhaben StSch 3608S03016, Ressortforschungsberichte zur kerntechnischen Sicherheit und zum Strahlenschutz. Berlin, Bundesamt für Strahlenschutz.

Wolf, J., Behlau, J. et al. (2012). FEP-Katalog für die VSG - Konzept und Aufbau - Bericht zum Arbeitspaket 7, Vorläufige Sicherheitsanalyse Gorleben. Braunschweig, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH.

Xu, C., Kaplan, D. I. et al. (2015). "Radioiodine sorption/desorption and speciation transformation by subsurface sediments from the Hanford Site." *Journal of Environmental Radioactivity* **139**: 43-55.

Xu, C., Miller, E. J. et al. (2011). "Sequestration and Remobilization of Radioiodine (I-129) by Soil Organic Matter and Possible Consequences of the Remedial Action at Savannah River Site." *Environmental Science & Technology* **45**(23): 9975-9983.

Xu, C., Zhang, S. J. et al. (2011). "Is soil natural organic matter a sink or source for mobile radioiodine (I-129) at the Savannah River Site?" *Geochimica Et Cosmochimica Acta* **75**(19): 5716-5735.

Xu, C., Zhong, J. Y. et al. (2012). "Molecular environment of stable iodine and radioiodine (I-129) in natural organic matter: Evidence inferred from NMR and binding experiments at environmentally relevant concentrations." *Geochimica et Cosmochimica Acta* **97**: 166-182.

Zhang, S., Du, J. et al. (2010). "Mobility of iodine (I-129 and I-127) species in sediment columns from the Savannah River Site." *Geochimica et Cosmochimica Acta* **74**(12): A1211-A1211.

Zhang, S., Du, J. et al. (2011). "Concentration-Dependent Mobility, Retardation, and Speciation of Iodine in Surface Sediment from the Savannah River Site." *Environmental Science & Technology* **45**(13): 5543-5549.

Anhang

Anhang A

Beispiele für Dosisabschätzungen für potentielle Freisetzungen aus Endlagern in unterschiedlichem Wirtsgestein

Beispiel 1: Dosisabschätzung für ein Endlager in einer Salzformation

Müller-Lyda et al. (2008) präsentieren in ihrem Abschlussbericht zum Stand von Wissenschaft und Technik in der Endlagerung eine Dosismodellierung für ein Endlager in einem Salzdiapir.

Die Grundannahmen waren:

- a) generisches Endlager in einem Salzstock
- b) Bohrlochlagerung von bestrahlten Brennstäben in Edelstahlkokillen (BSK-3)
- c) begrenzter Lösungszutritt

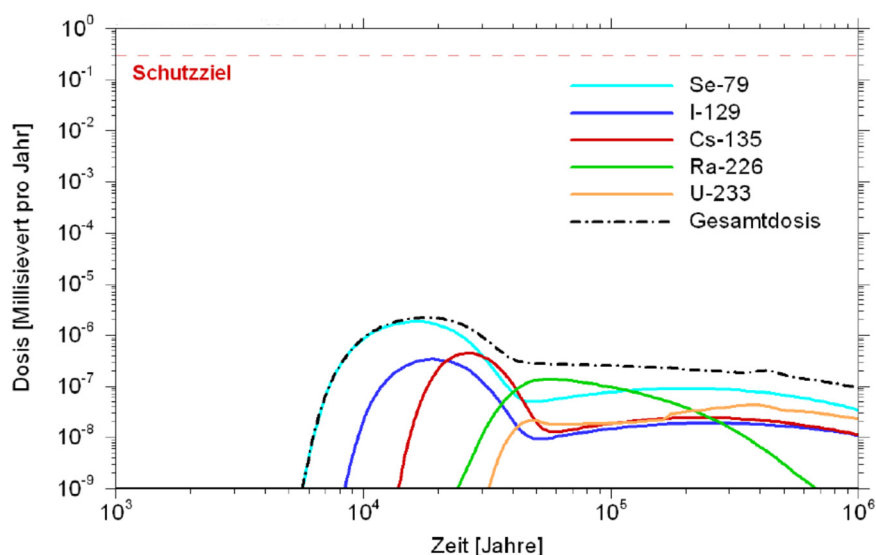


Abbildung A 1: Berechnete Strahlenexposition in der Nachbetriebsphase eines Endlagers in einem Salzstock, aufgeschlüsselt nach dominierenden Radionucliden.

Quelle: Müller-Lyda, I., Sailer, M. et al. (2008). Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle in Deutschland. GRS-Bericht247. Öko-Institut e.V., Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH.

Beispiel 2: Dosisabschätzung für ein Endlager in einer Tonformation

Marivoet und Weetjens (2008) haben Expositionsabschätzungen für die erwartete Endlagerungsentwicklung eines belgischen Endlagers in der Boom Clay-Formation durchgeführt.

Grundsätzliche Modellierungsannahmen waren folgende:

- Abgebrannter Kernbrennstoff (im Gegensatz zu verglasten Wiederaufbereitungsabfällen),
- Lebensdauer der Abfallcontainer: 2000 Jahre,
- Uranoxid-Matrix löst über 500.000 Jahre mit konstanter Rate,
- Transport der Radioisotope über Grundwasserleiter,
- Entnahme des Grundwassers aus einem Brunnen,
- Brunnenwasser wird als Trinkwasser, zur Bewässerung und für Viehtränken von einer sich selbst versorgenden Population genutzt.
- Szenario der erwarteten Entwicklung

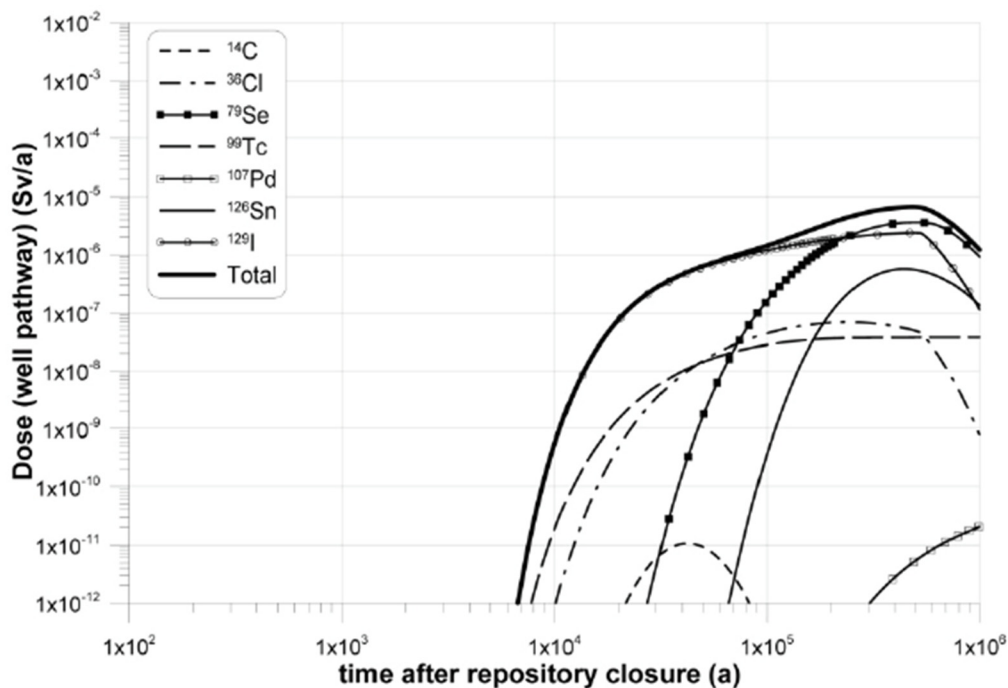


Abbildung A 2: Entwicklung der Gesamtdosis und Darstellung der Beiträge der unterschiedlichen Radioisotope in einer Tonformation

Quelle:

Marivoet, J., Weetjens, E. (2008). The importance of mobile fission products for long-term safety in the case of disposal of vitrified high-level waste and spent fuel in a clay formation, in OECD/NEA (2009): Mobile Fission and Activation Products in Nuclear Waste Disposal, Workshop Proceedings, La Baule, France, 16-19 January 2007, NEA No. 6310.

Beispiel 3: Dosisabschätzung für ein Endlager in einer Granitformation

Lührmann et al. (2000) präsentieren in ihrem Bericht zur Langzeitsicherheitsanalyse für ein generisches Endlager in einer Granitformation eine Dosisabschätzung. Grundsätzliche Modellierungsannahmen waren:

- Abgebrannter Kernbrennstoffe, 25.000 t Schwermetall, Brennstäbe befinden sich in Edelstahlbehältern, Behälter in vertikalen Bohrlöchern, diese mit Bentonit ausgekleidet,
- instantane Aufsättigung des Bentonit-Buffers,
- Ausfall aller Behälter nach 1000 Jahren,
- Diffusion der Radioisotope durch den Bentonit, Transport im Granit entlang von Klüften,
- 25 % der Behälter verbunden mit schnellen Transportwegen (Kluftsystemen) im Granit,
- Brunnenwasser wird als Trinkwasser, zur Bewässerung, für Viehtränken und zur Fischzucht genutzt.

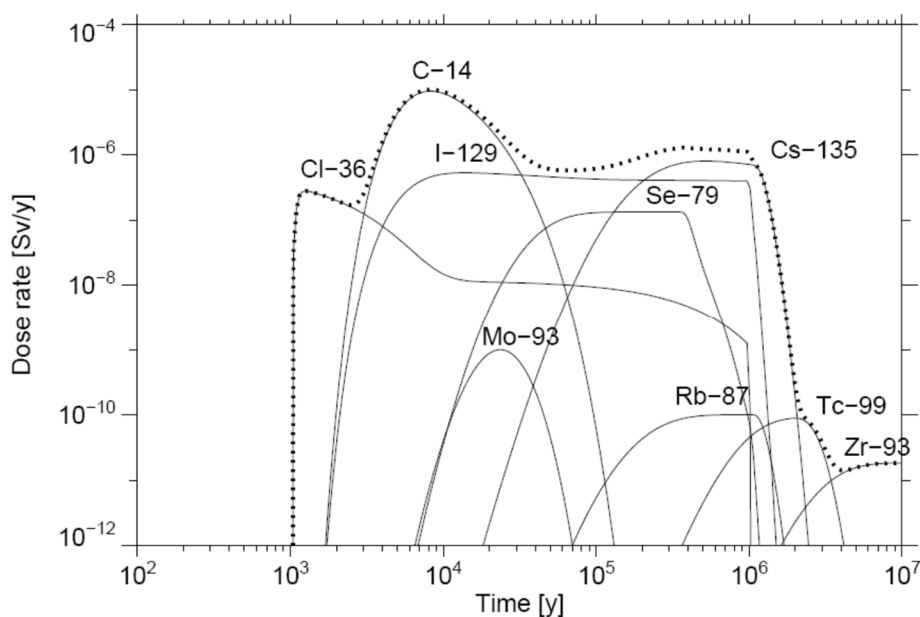


Abbildung A 3: Abgeschätzte Strahlenexposition für ein Endlager in einer Granitformation und Darstellung der Beiträge der relevanten Radioisotope.

Quelle:

Lührmann, L., Noseck, U., et al. (2000). Spent Fuel Performance Assessment (SPA) for a Hypothetical Repository in Crystalline Formations in Germany. GRS 154. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Braunschweig.

Anhang B

Vorlage der Einverständniserklärung

Einverständniserklärung zum Interview

Forschungsprojekt: Kritische Evaluation der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zum § 47 der Strahlenschutzverordnung

Das Promotionsvorhaben von Claudia König ist ein Teilprojekt der
Forschungsplattform ENTRIA (www.entria.de)

Interviewte/Interviewter: N.N.

Interviewdatum: xx.xx.2014

Ich erkläre mich dazu bereit, im Rahmen des genannten Forschungsprojekts an einem Interview teilzunehmen. Ich wurde über das Ziel und den Verlauf des Forschungsprojekts informiert. Ich kann das Interview jederzeit abbrechen, weitere Interviews ablehnen und meine Einwilligung in die Aufzeichnung/Niederschrift des Interviews zurückziehen, ohne dass mir dadurch Nachteile entstehen.

Ich bin damit einverstanden, dass das Interview mit einem Aufnahmegerät aufgezeichnet und anschließend vom Projektbearbeiter bzw. einer Hilfskraft in Schriftform gebracht wird. Die Mitarbeiter/innen verpflichten sich diesbezüglich zur Einhaltung der Grundsätze des Ethik-Kodex‘ der Deutschen Gesellschaft für Soziologie (siehe Seite 3). Für die weitere wissenschaftliche Auswertung des Interviewtextes gilt grundsätzlich, dass alle Angaben zu meiner Person aus dem Text entfernt bzw. anonymisiert werden und dass das Interview in wissenschaftlichen Veröffentlichungen nur in Ausschnitten zitiert wird.

Allein mir obliegt dabei die Entscheidung, von diesem Grad der Anonymisierung abzuweichen und ggf. freiwillig auf eine vollständige Anonymisierung zu verzichten. Ich bestimme den Grad der Anonymisierung wie folgt (*bitte ankreuzen!*):

- ☐ Ich bitte darum, dass das Interview in wissenschaftlichen Veröffentlichungen stets im höchsten Maße anonymisiert zitiert wird, so dass meine Ausführungen mich gegenüber Dritten nicht als Person erkennbar machen.
- ☐ Die Nennung meines Namens und meiner Funktion im Zuge der weiteren wissenschaftlichen Bearbeitung sowie damit verbundenen Veröffentlichungen gestatte ich unter der Bedingung, dass mir die entsprechenden Textpassagen aus dem Interview vorab zur Einsicht und Einwilligung (z.B. per Mail) vorgelegt werden.
- ☐ Ich gestatte die Nennung meines Namens und meiner Funktion im Zuge der weiteren wissenschaftlichen Bearbeitung und damit verbundenen Veröffentlichungen ohne Einschränkungen.

Mir wurde versichert, dass die Tonaufnahmen lediglich für Mitarbeiter*innen des Projektes zugänglich sind und spätestens nach zwei Jahren vernichtet werden.

Mit den oben genannten Punkten erkläre ich mich einverstanden.

Ich habe eine Ausführung dieser Erklärung erhalten.

Ort, Datum

Unterschrift der/des Interviewten

Ich sichere zu, die in dieser Einverständniserklärung zugesicherten Grundsätze zum Datenschutz nach bestem Wissen und Gewissen einzuhalten und sämtliche damit verbundene Entscheidungen der/des Interviewten zu respektieren.

Ort, Datum

Unterschrift der Interviewerin

Zusätzliches Beiblatt zur Einverständniserklärung

Auszug³⁸: Ethik-Kodex der Deutschen Gesellschaft für Soziologie (DGS) und des Berufsverbandes Deutscher Soziologinnen und Soziologen (BDS)

»Präambel

Die Erarbeitung und Verbreitung soziologischen Wissens sind soziale Prozesse, die in jedem Stadium ethische Erwägungen und Entscheidungen erfordern. Dieser Bestandteile soziologischer Wissensproduktion, -verwendung und -weitergabe sollten sich Soziologinnen und Soziologen stets bewusst sein. [...]. Der Kodex formuliert einen Konsens über ethisches Handeln innerhalb der professionellen und organisierten Soziologie in Deutschland. Er benennt die Grundlagen, auf denen die Arbeit der Ethik-Kommission beruht. Dieser Kodex soll dazu dienen, Soziologinnen und Soziologen für ethische Probleme ihrer Arbeit zu sensibilisieren und sie zu ermutigen, ihr eigenes berufliches Handeln kritisch zu prüfen. [...]. Um die in der Präambel genannten Ziele zu erreichen, bestätigen und unterstützen die Mitglieder der "Deutschen Gesellschaft für Soziologie" und des "Berufsverbandes Deutscher Soziologinnen und Soziologen" den folgenden Ethik-Kodex. [...]

B. Rechte der Untersuchten

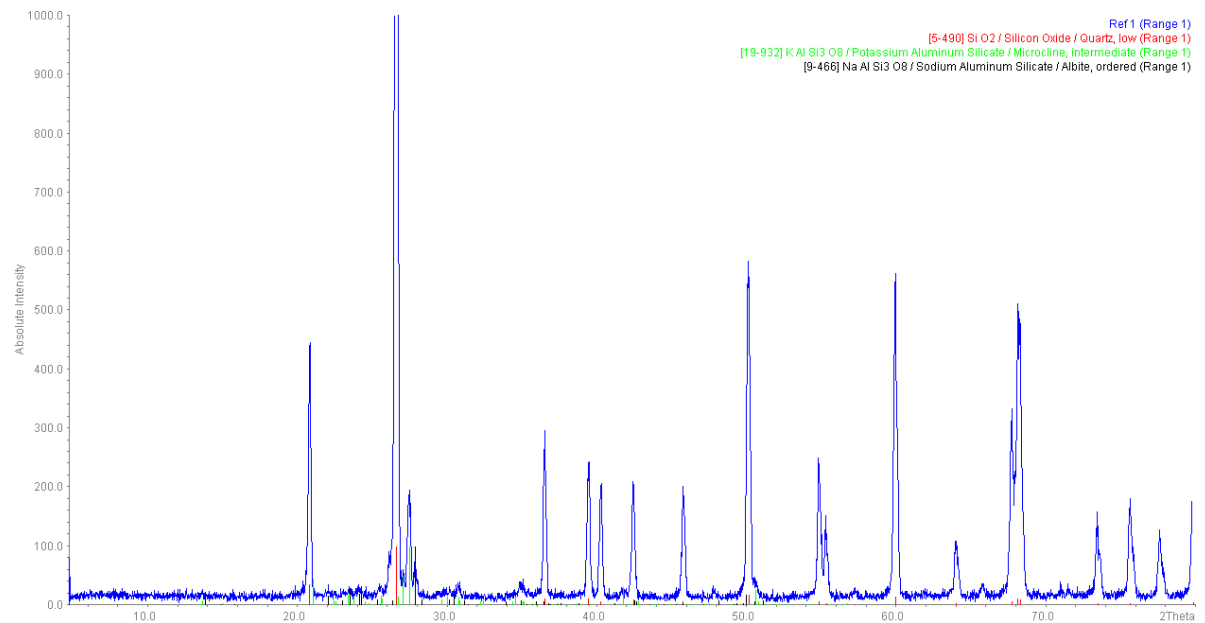
Das Befolgen von Regeln der wissenschaftlichen Methode kann ungünstige Konsequenzen oder spezielle Risiken für Individuen oder Gruppen nach sich ziehen. [...]. In der soziologischen Forschung sind die Persönlichkeitsrechte der in sozialwissenschaftliche Untersuchungen einbezogenen Personen ebenso wie ihr Recht zur freien Entscheidung über die Beteiligung an Forschungsvorhaben zu respektieren. Generell gilt für die Beteiligung an sozialwissenschaftlichen Untersuchungen, dass diese freiwillig ist und auf der Grundlage einer möglichst ausführlichen Information über Ziele und Methoden des entsprechenden Forschungsvorhabens erfolgt. [...]. Personen, die in Untersuchungen als Beobachtete oder Befragte oder in anderer Weise, z.B. im Zusammenhang mit der Auswertung persönlicher Dokumente, einbezogen werden, dürfen durch die Forschung keinen Nachteilen oder Gefahren ausgesetzt werden. Die Betroffenen sind über alle Risiken aufzuklären, die das Maß dessen überschreiten, was im Alltag üblich ist. Die Anonymität der befragten oder untersuchten Personen ist zu wahren. [...]. Verfahren, die eine Identifizierung der Untersuchten ausschließen, sollen in allen geeigneten Fällen genutzt werden. Besondere Aufmerksamkeit ist den durch die elektronische Datenverarbeitung gegebenen Möglichkeiten des Zugangs zu Daten zu widmen. Auch hier sind sorgfältige Vorkehrungen zum Schutz vertraulicher Informationen erforderlich. Von untersuchten Personen erlangte vertrauliche Informationen müssen entsprechend behandelt werden; diese Verpflichtung gilt für alle Mitglieder der Forschungsgruppe (auch Interviewer/innen, Codierer/innen, Schreibkräfte etc.), die über einen Datenzugriff verfügen. Es liegt in der Verantwortung der Projektleiter/innen, die Mitarbeiter/innen hierüber zu informieren und den Zugang zu vertraulichem Material zu kontrollieren. Soziologinnen und Soziologen sollen unter Verweis auf entsprechende Regelungen für andere Professionen der Schweigepflicht unterliegen und für sich das Recht auf Zeugnisverweigerung beanspruchen, wenn zu befürchten steht, dass auf der Basis der im Rahmen soziologischer Forschung gewonnenen Informationen die Informanten irgendwelche – insbesondere strafrechtliche – Sanktionen zu gewärtigen haben.

³⁸ Zur ungekürzten Version: <http://www.soziologie.de/de/die-dgs/ethik-kodex.html>

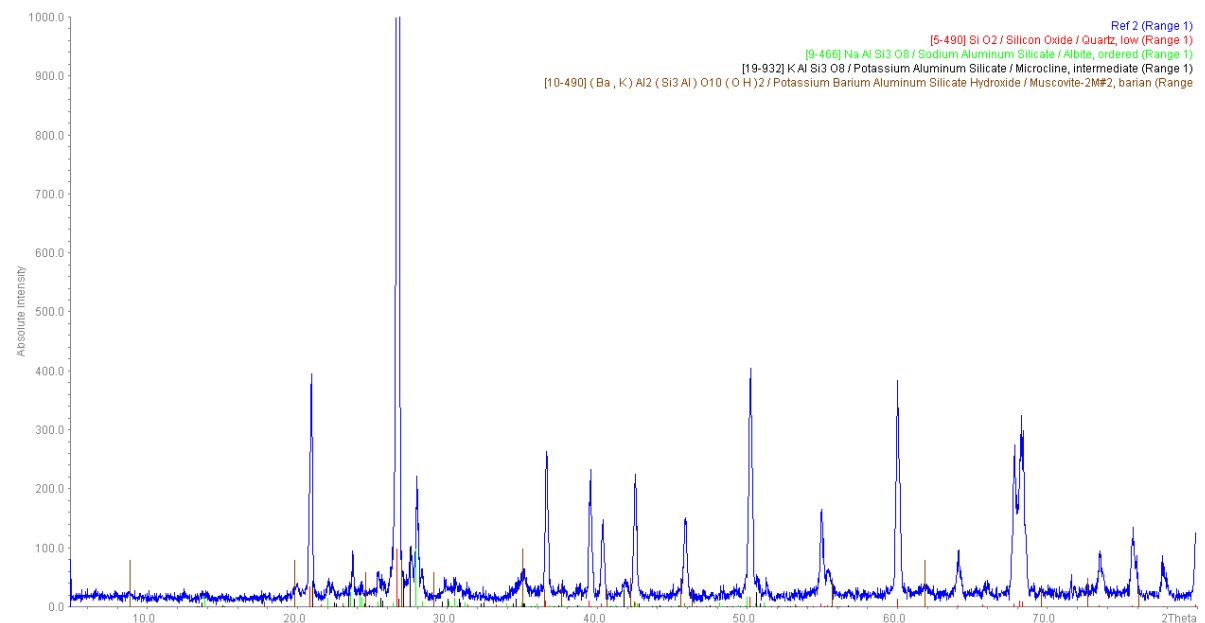
Anhang C

XRD-Messung der RefeSol Böden 1-4

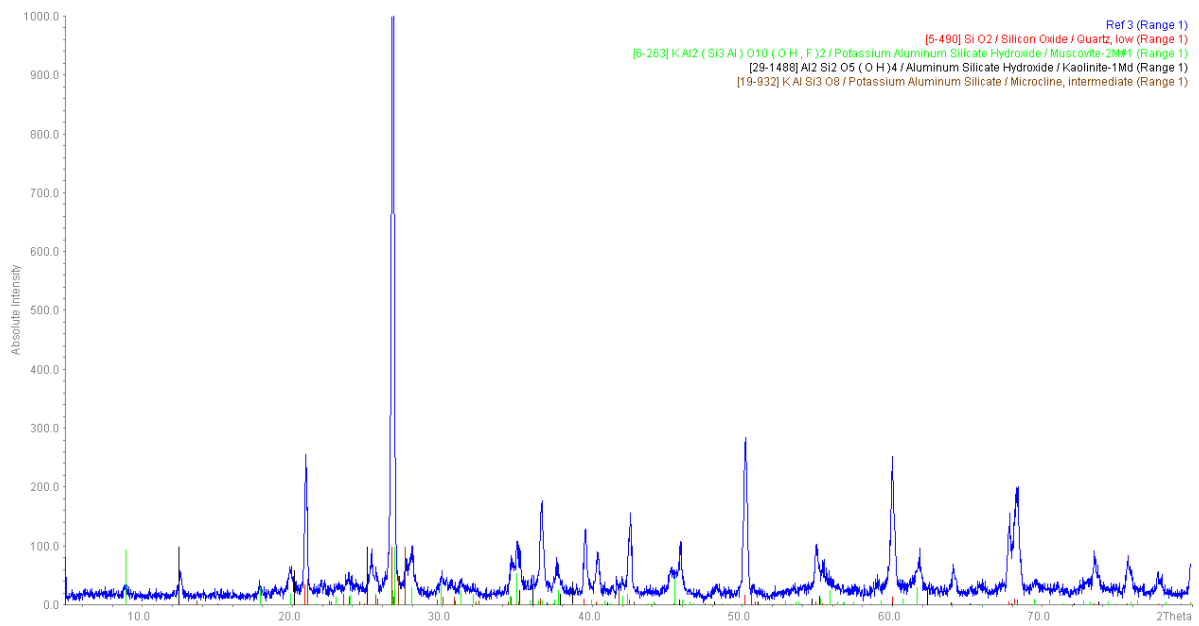
Ref 1: Sehr viel Quarz sowie etwas Feldspat (Mikroclin und Albit)



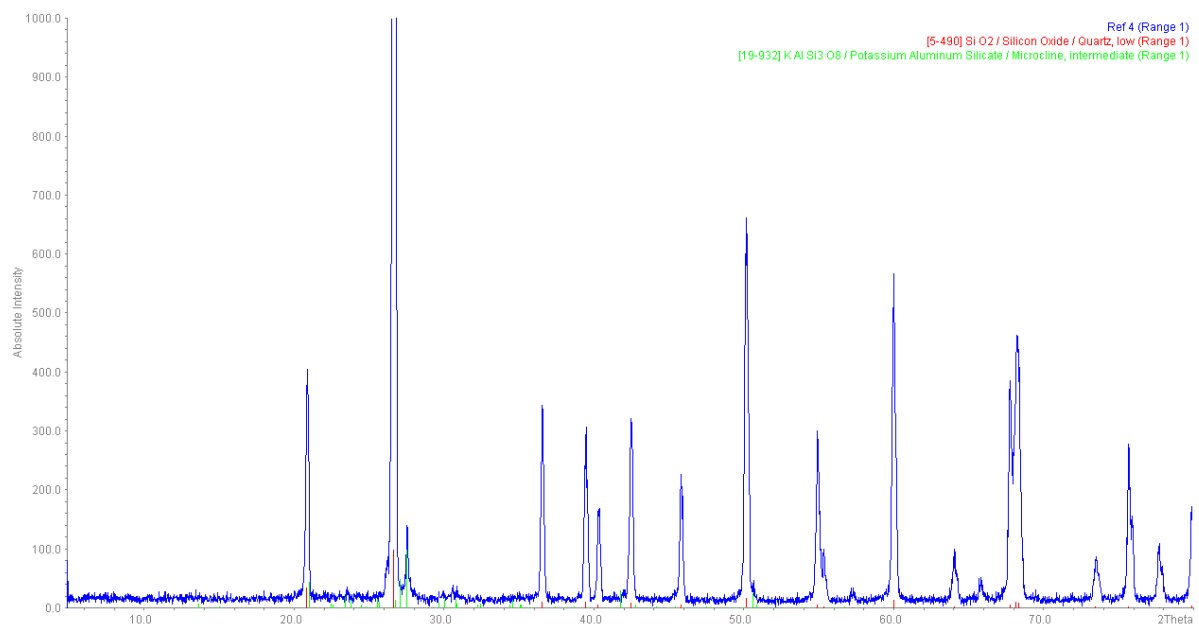
Ref 2: Viel Quarz, etwas Albit sehr wenig Mikroclin und Muscovit



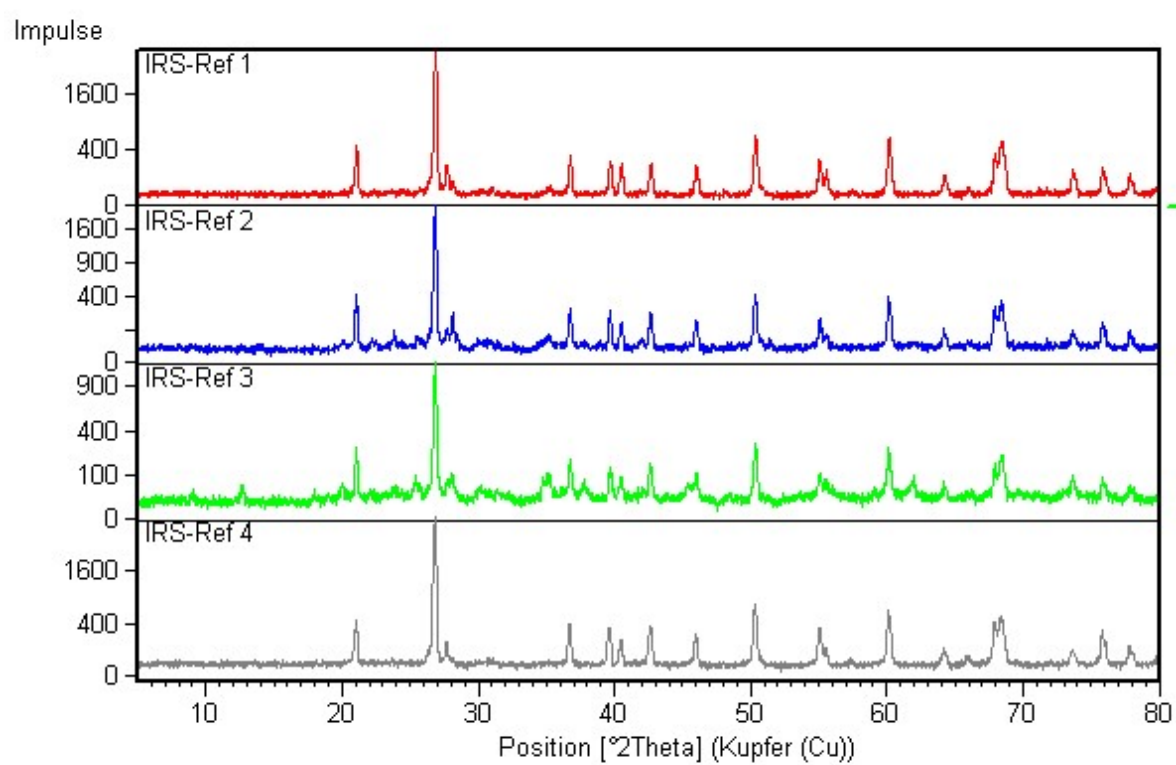
Ref 3: Viel Quarz, wenig Glimmer (Muscovit) wenig Kaolinit und minimal noch Feldspat



Ref 4: Quarz mit minimal Feldspat



Zusammenstellung der XRD-Spektren



Wissenschaftlicher Werdegang

Studium

Okt 87 -	Jul 88	Studium der Germanistik, Kunstpädagogik und Psychologie an der Justus-Liebig-Universität Gießen
Okt 93 -	Sep 96	Studium der Geologie an der Justus-Liebig-Universität Gießen Abschluss: Vordiplom
Okt 96 -	Jun 01	Studium der Geologie an der Universität Bremen mit Schwerpunkt auf Meeresgeologie, Hydrogeologie, Petrologie Abschlussarbeit unter Anleitung von Prof. Dr. Henrich: <i>„Untersuchungen zur Genese von Sedimentkrusten an Seamounts im Nord-Ost-Atlantik“</i> und <i>„Geologische Kartierung im Maßstab 1:10 000 im Gebiet zwischen Herborn und Schönbach (Hessen) Blatt 5315 Herborn (TK 25)“</i> Abschluss: Diplom
Seit Jul 13		Promotion am Institut für Radioökologie und Strahlenschutz der Leibniz Universität Hannover unter Anleitung von Prof. Dr. Walther <i>„Zwei Perspektiven auf die Expositionsmodellierung bei der Endlagerung hochradioaktiver Abfälle“</i>

Wissenschaftliche Tätigkeiten

Mai 02 -	Okt 05	Wissenschaftliche Mitarbeiterin im Kompetenzzentrum Frauen in Naturwissenschaft und Technik Universität Bremen
Dez 08 -	Dez 16	Wissenschaftliche Mitarbeiterin im Institut für Radioökologie und Strahlenschutz der Leibniz Universität Hannover, Projekte innerhalb des Verbundprojektes „Entsorgungsoptionen für radioaktive Reststoffe: Interdisziplinäre Analyse und Entwicklung von Bewertungsgrundlagen“ (ENTRIA) und zur Risikokommunikation bei der Sanierung radioaktiver Altlasten

Veröffentlichungen

Smeddinck, U., König, C. (Hrsg.) (2016): Grenzwertbildung im Strahlenschutz - Physik, Recht, Toxikologie, Berliner Wissenschafts-Verlag, Berlin, eBook ISBN 978-3-83052172-3
ISBN: 978-3-8305-3701-4

König, C. (2016): Einführung in den Strahlenschutz – Grundlagen, Grenzwertkonzepte, Heterogenität, in Smeddinck, König (Hrsg.) Grenzwertbildung im Strahlenschutz - Physik, Recht, Toxikologie, Berliner Wissenschafts-Verlag, Berlin

König, C., Drögemüller, C., Riebe, B., Walther, C. (2014): Remediation of TENORM residues: risk communication in practice, J. Radiol. Prot. 34, 575-593
DOI: 10.1088/0952-4746/34/3/575

König, C., Drögemüller, C., Riebe, B. (2013): TENORM-Sanierung im Spannungsfeld zwischen Experteneinschätzung und Alltagswahrnehmung - TESSA, Abschlussbericht zum BMBF-Projekt 02 S 8689, 90 S. <http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e01fb13/766613577.pdf>

Vorträge und Konferenzbeiträge

König, C. (2017): Role and Implementation of Dose Modelling in Final Disposal of Radioactive Waste, Research on Radioactive Waste Management Ethics – Society – Technology, Final ENTRIA Conference, 26.-30. September 2017, Braunschweig

König, C., Köhler, F., Walther, C. (2017): Transfer Processes of Iodine-129 in Soil, Research on Radioactive Waste Management Ethics – Society – Technology, Final ENTRIA Conference, 26.-30. September 2017, Braunschweig, (Poster)

König, C. (2017): Long-term safety assessment – results from expert interviews, Pre-Event Workshop ‘Radioecology as a Support to Regulatory Decision Making on NORM and other Legacies’, 4th International Conference on Radioecology & Environmental Radioactivity, 3. September 2017, Berlin

König, C. (2015): Heterogenität von Grenzwertsystemen – Strukturen, Konzepte, Werkstattgespräch ‘Grenzwertbildung im Strahlenschutz’, ENTRIA-Verbundprojektes, 27. Januar 2015, Braunschweig

König, C. (2015): Remediation of radioactive residues: risk communication in practice, „Regulatory Supervision of Legacy Sites: from Recognition to Resolution“. Workshop hosted by the Norwegian Radiation Protection Authority, Oslo, 17.-19. November 2015, Page 92-96. <http://www.nrpa.no/filer/7be4a09906.pdf>

König, C., Walther, C., Smeddinck, U. (2014): Critical evaluation of German regulatory specifications for calculating radiological exposure, DAEF conference 'Key topics in deep geological disposal', 24-26 September, Cologne, (Poster)

König, C., Drögemüller, C., Riebe, B. (2011): Residues of uranium processing and NORM industries – an interdisciplinary study on risk assessment and risk perception, Uranium Mining and Hydrogeology VI Conference, September 18-22, 2011, Freiberg, (Poster)

Koenig, C., Riebe, B., Rieger, M. (2010): Remediation of TENORM residues: Professional risk assessment and public risk perception, Third European IRPA Congress, Helsinki, Finland, 14-18 June 2010, (Poster)

König, C., Riebe, B., Rieger, M. (2010): TENORM-Sanierung im Spannungsfeld zwischen Experteneinschätzung und Alltagswahrnehmung, 42. Jahrestagung des Fachverbandes für Strahlenschutz e.V., 26.-30. September 2010, Borkum

Selbstständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst habe, keine Textabschnitte von Dritten oder eigener Prüfungsarbeiten ohne Kennzeichnung übernommen habe und keine anderen als die zitierten Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Bremen, den

Claudia König