

**Betreff:** Fwd: Änderungsantrag Nr. 27

**Von:** [REDACTED]

**Datum:** 13.05.2013 09:18

**An:** [REDACTED]

Zur Info.

Gruß

----- Ursprüngliche Nachricht -----

Von: [REDACTED]

An: [REDACTED]

Cc: [REDACTED]

Datum: 10. Mai 2013 um 12:51

Betreff: Änderungsantrag Nr. 27

Lieber [REDACTED],

wie am 08. Mai 2013 telefonisch vereinbart habe ich heute das Fachgespräch mit [REDACTED] zum Änderungsantrag Nr. 27 und speziell zur Np-236/Np-236m - Problematik geführt. Als Gesprächsergebnis ist festzuhalten:

1. Die dem Änderungsantrag Nr. 27 beigefügte Verfahrensunterlage werde ich überarbeiten und Ihnen erneut zuleiten (siehe hierzu meinen beigefügten Vermerk vom 10. Mai 2013 an [REDACTED]). In diesem Zusammenhang werde ich auch die zugehörigen Revisionsblätter anpassen und Ihnen zusammen mit der überarbeiteten Verfahrensunterlage zusenden.
2. Zwischen [REDACTED] und Ihnen wurde bereits besprochen, dass der Änderungsantrag Nr. 27 zu überarbeiten und die neu aufzunehmenden weiteren Radionuklide Hf-172, Pm-145 und Pu-246 explizit zu nennen sind.
3. Bis zur Vorlage des überarbeiteten Änderungsantrages Nr. 27, der geänderten Verfahrensunterlage und der angepassten Revisionsblätter wird die Bearbeitung dieses Vorgangs bei EÜ ruhen.
4. Im Rahmen der laufenden Arbeiten zur Revision der Endlagerungsbedingungen Konrad (interner Bericht SE-IB-29/08-REV-2) wird bei den weiteren Radionukliden, die in radioaktiven Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung enthalten sein können, auf Np-236 abgestellt.
5. [REDACTED] bittet nachdrücklich darum, das BMU über die vertauschten Halbwertszeiten für Np-236 und Np-236m in der Strahlenschutzverordnung zu informieren. In Beantwortung Ihrer Frage am Ende Ihrer E-Mail vom 08. Mai 2013 möchte ich Sie daher bitten, auf den zuständigen Fachbereich SW zuzugehen und um ein entsprechendes Schreiben an das BMU zu bitten. In diesem Zusammenhang füge ich die Vermerke vom 23. November 1999 von [REDACTED] und vom 04. Februar 2000 von [REDACTED] bei.

Für evtl. sich ergebende Rückfragen stehe ich Ihnen gerne zur Verfügung.

Mit freundlichen Grüßen

[REDACTED]

--

[REDACTED]  
c/o Bundesamt für Strahlenschutz

Postfach 10 01 49  
38201 Salzgitter  
Deutschland / Germany

Tel.: #49 (0)30 18333 [REDACTED]  
Fax: #49 (0)30 18333 [REDACTED]  
E-Mail: [REDACTED]

[REDACTED]  
Bundesamt für Strahlenschutz

—Anhänge:—

---

Stellungnahme Np-236-Np-236m.doc	50,0 KB
Vermerk [REDACTED]_23.11.1999.pdf	144 KB
Vermerk [REDACTED]_04.02.2000.pdf	432 KB
[REDACTED]	376 Bytes

Herrn

Endlagerüberwachung

- im Hause -

Betreff: Änderungsantrag Nr. 27  
hier: Radionuklide Np-236 und Np-236m

Bezug: 1. Ihre E-Mail vom 07. Mai 2013 an [REDACTED]  
2. Fachgespräch [REDACTED] / [REDACTED] am 10. Mai 2013

Kopie: SE 2.1 / [REDACTED]

Sehr geehrter [REDACTED],

wie in unserem heutigen Fachgespräch festgelegt habe ich die in der Unterlage

- [REDACTED]  
"Überprüfung des Radionuklidspektrums aus den Endlagerungsbedingungen Konrad,  
Stand: Dezember 1995 – Stand: November 2008 – "  
Bundesamt für Strahlenschutz, interner Bericht SE-IB-32/08, Salzgitter, Dezember  
2008

aufgeführten weiteren Radionuklide mit metastabilem Zustand mit dem jeweiligen  
Grundzustand zusammengefasst und die jeweiligen Halbwertszeiten (HWZ) gemäß  
Strahlenschutzverordnung vom 20. Juli 2001 (zuletzt geändert am 24. Februar 2012) und  
Karlsruher Nuklidkarte, 7. Auflage, Karlsruhe (2006) angegeben.

Radionuklid	HWZ gemäß StrISchV	HWZ gemäß Karlsruher Nuklidkarte
Bi-210	5,0 d	5,013 d
Bi-210m	3,0E+6 a	3,0E+6 a
Cd-115	53,4 h	53,38 h

Cd-115m	44,8 d	44,8 d
Ho-166	26,8 h	26,80 h
Ho-166m	1,2E+3 a	1200 a
In-114	kleiner 10 m	71,9 s
In-114m	49,5 d	49,5 d
Np-236	22,5 h	1,54E+5 a
Np-236m	1,2E+5 a	22,5 h
Pm-148	5,4 d	5,37 d
Pm-148m	41,3 d	41,3 d
Rh-102	206,0 d	207 d
Rh-102m	2,9 a	2,9 a
Sn-117		
Sn-117m	13,6 d	13,6 d
Sn-119		
Sn-119m	293,0 d	293 d
Sn-121	27,0 h	27,0 h
Sn-121m	50,0 a	etwa 50,0 a
Tc-95	20,0 h	20 h
Tc-95m	60,0 d	60 d
Te-123	1,2E+13 a	1,24E+13 a
Te-123m	119,7 d	119,7 d
Te-127	9,4 h	9.35 h
Te-127m	109,0 d	109 d
Te-129	69,6 m	69,6 m
Te-129m	33,6 d	33,6 d
Xe-131		
Xe-131m	11,9 d	11.9 d

Der Vergleich der Halbwertszeiten aus der Strahlenschutzverordnung und der Karlsruher Nuklidkarte zeigt unmittelbar, dass mit Ausnahme der Angaben zu Np-236 und Np-236m die angegebenen Halbwertszeiten (bis auf marginale Abweichungen in einigen Fällen) genau übereinstimmen.

Vor diesem Hintergrund möchte ich den folgenden Vorschlag unterbreiten:

In der Unterlage

- [REDACTED]  
"Überprüfung des Radionuklidspektrums aus den Endlagerungsbedingungen Konrad, Stand: Dezember 1995 – Stand: Oktober 2010 – "  
Bundesamt für Strahlenschutz, interner Bericht SE-IB-32/08-Rev-2, Salzgitter, Oktober 2010

wird auf den Seiten 19 unten und 20 oben die Diskussion über die unterschiedlichen Angaben der Halbwertszeiten für Np-236 und Np-236m nicht geführt, sondern es wird an dieser Stelle ausschließlich auf die Karlsruher Nuklidkarte abgehoben und bezüglich der weiteren Radionuklide, die in radioaktiven Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung enthalten sein können, nur auf das Radionuklid Np-236 abgestellt.

Vor diesem Hintergrund werde ich die o.a. genannte Unterlage überarbeiten und SE 2.1/[REDACTED] [REDACTED] erneut zuleiten.

Ich möchte darauf hin weisen, dass mein Vorschlag unter dem Vorbehalt der Projektleitung Konrad (SE 2.1 / [REDACTED]) steht.

Für evtl. sich ergebende Rückfragen stehe ich Ihnen gerne zur Verfügung.

Mit freundlichen Grüßen

[REDACTED]

**KORIGEN – Halbwertszeiten von Np-236 und Se-79**

Im Zusammenhang mit Abklingrechnungen, die wir mit dem Programm KORIGEN für das Endlager Morsleben durchgeführt haben, sind Inkonsistenzen bei dem Nuklid Np-236 aufgetreten: Dieses Nuklid ist für die Sicherheit im Endlagerbereich relevant und muß in den radioaktiven Abfallgebinden deklariert werden. Gemäß Nuklidkarte<sup>1</sup> hat Np-236 eine Halbwertszeit von  $1,54 \cdot 10^5$  a. Daneben existiert ein metastabiler Zusatzstand bei 0,060 MeV mit einer Halbwertszeit von 22,5 h. Diese Daten sind in Übereinstimmung mit den Angaben in „Table of Isotops“<sup>2</sup> und in der Datei PCNUDAT<sup>3</sup>.

In KORIGEN werden demgegenüber folgende Eingabedaten verwendet:

```
468 NP236M 1.91E-13 4.91E-01 4.91E-01
+
469 NP236 8.56E-06 4.91E-01 4.91E-01
+
470 NP237 N,2N* 3.47E-04
470 NP237 N,2N 9.15E-04
```

Die Zerfallskonstante  $\lambda = 1,91 \cdot 10^{-13} \text{ s}^{-1}$  entspricht der Halbwertszeit von  $1,15 \cdot 10^5$  a, die ehemals in der Karlsruher Nuklidkarte aufgeführt war, und  $\lambda = 8,56 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$  entspricht der Halbwertszeit des metastabilen Zustandes von 22,5 h. Verglichen mit den o.g. Angaben sind Grundzustand und metastabiler Zustand vertauscht.

Ich bitte Sie, diesen Sachverhalt zu überprüfen und ggf. vorzuschlagen, welche Änderungen in den Eingabedaten von KORIGEN vorzunehmen sind.

Ein ähnliches Problem besteht bei dem Nuklid Se-79. Die in KORIGEN noch verwendete Halbwertszeit von 65000 a entspricht nicht mehr dem mittlerweile auch in Tabellenwerken verwendeten Wert. Nach neuesten Angaben<sup>4</sup> soll diese Halbwertszeit  $(1,1 \pm 0,2) \cdot 10^6$  a betragen. Ich bitte Sie um Auskunft, wie diese Änderung in KORIGEN vorzunehmen ist. Gibt es ggf. Folgeänderungen?

Ich bedanke mich für Ihre Bemühungen.

Mit freundlichen Grüßen  
im Auftrag

<sup>1</sup> Karlsruher Nuklidkarte, Dezember 1998

<sup>2</sup> R.B. Firestone Ed., Table of Isotops 8<sup>th</sup> Edition 1996

<sup>3</sup> R.R. Kinsey et al. Program for Nuclear Data 1997 (s. auch: <http://www.dne.bnl.gov/cgi-bin>)

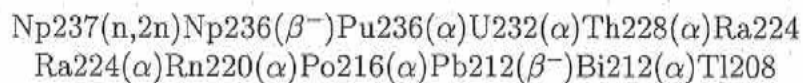
<sup>4</sup> Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 123 (1997) 405

# Bildung von Np236m aus Np237

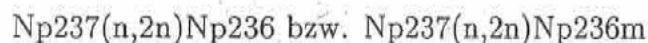
██████████, FZK-IKET  
4. Februar 2000

Nach Übernahme des Abbrand- und Zerfallsprogramms ORIGEN vom ORNL Ende der 70er Jahre konzentrierten sich die Arbeiten im FZK im Rahmen des Projektes Abfallbehandlung (PWA) auf die Ertüchtigung dieses Codes im Hinblick auf nukleare Abfälle aus deutschen Reaktoren. Dabei entstand die Karlsruher Version von ORIGEN unter dem Namen KORIGEN[1, 2].

Ein Gesichtspunkt unter vielen war dabei die Bestimmung des über die Kette



entstehende Tl208, das hochenergetische  $\gamma$ -Strahlung mit einer Energie von 2.6MeV emittiert. Verlässlich konnte dies nur geschehen, wenn die Menge des während des Reaktorbetriebs gebildeten Pu236 als Startmaterial in die anschließende Zerfallskette berechnet werden konnte. Die dazu benötigten Neutronenwirkungsquerschnitte  $\sigma_{n,2n}^{\text{Np237}}$  und  $\sigma_{n,2n^*}^{\text{Np237}}$  der Reaktionen



wurden auf der Basis von Experimenten und Rechnungen [3, 4] ermittelt.

Von den Np-Nukliden Np236 und Np236m ist das eine langlebig ( $\tau_{1/2} = 1.54 \cdot 10^5 \text{a}$ ) und das andere kurzlebig ( $\tau_{1/2} = 22.5 \text{h}$ ). ██████████ schreibt in dem [3] zugrunde liegenden internen Bericht[4]

"At present it is not established which isomer of Np236 has to be assigned to the ground state. However, this is only a question of nomenclature concerning the formation of Pu236, since only the question is significant, which fraction of the (n,2n)-processes at Np237 leads to the short-lived state of Np236. The assignments just have to be in the right order. **In the KORIGEN library the short-lived state has been assigned to the ground state.**"

Die damals vorgenommene und auch in der KORIG95-Actiniden Datei noch vorhandene Zuordnung des kurzlebigen Np236 zum Grundzustand steht, wie von BfS moniert, im Gegensatz zu der heutigen Zuordnung - s. z.B. Karlsruher Nuklidkarte, 6. Auflage 1995.

Des Weiteren wird statt der in KORIG95 enthaltenen Halbwertszeit von  $1.15 \cdot 10^5 \text{a}$  heute ein Wert von  $1.54 \cdot 10^5 \text{a}$  für das langlebige Np236 angegeben.

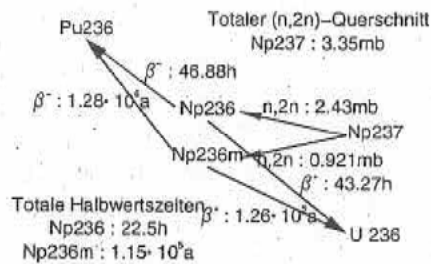


Abb. 1 : Bildung von Pu236 aus Np237 (Falsch)

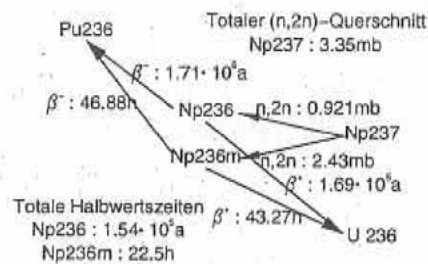


Abb. 2 : Bildung von Pu236 aus Np237 (Richtig)

Abb. 1 zeigt den zu korrigierenden KORIGEN-Zustand, Abb. 2 den zu erreichenden Zustand. Der angegebene totale (n,2n)-Querschnitt von 3.35mb ist nach [3] bei Druckwasserreaktoren zu benutzen (KORIGEN-Eingabekarte U2).

Zur Korrektur der KORIGEN-Actinidendatei ist folgendes vorzunehmen :

1. Vertausche die Datenblöcke von Np236 und Np236m und ersetze dann in diesen Blöcken 932361 durch 932360 bzw. 932360 durch 932361, so dass Np236m mit dem Identifier 932361 an erster Stelle steht.
2. Ersetze die Halbwertszeit in Sekunden im Np236-Block von  $3.629E+12$  durch  $4.860E+12$ .
3. Ersetze im Np237-Block den nach Np236m gehenden Anteil am (n,2n)-Querschnitt von .275 durch .725

Im Anhang finden sich sowohl die alten als auch die neuen Datenblöcke für Np236m, Np236 und Np237. Zur Wiedergabe der 80 Spalten langen Zeilen wurden diese hier in jeweils zwei Zeilen geschrieben.

Es wurden Testrechnungen zum Vergleich der Ergebnisse von Rechnungen mit den alten und neuen Daten durchgeführt. Die vorher unter Np236 erscheinenden Werte erscheinen jetzt unter Np236m und umgekehrt.

#### 4. Referenzen

1. [Redacted]: Verbesserte konsistente Berechnung des nuklearen Inventars abgebrannter DWR-Brennstoffe auf der Basis von Zell-Abbrand-Verfahren mit KORIGEN, KfK 3014, Januar 1983
2. [Redacted]: Erweiterung der KORIGEN-Datenbibliotheken und Berücksichtigung der Spaltprodukte aus Spontanspaltungen, Interner Bericht PSF 3253, August 1996
3. [Redacted]: Analysis of the Neutron Cross Sections for the Formation of Pu236 and Co58,60 in both Thermal and Fast Reactors, Proc Int. Conf. Nuclear Data for Science and Technology, Sept. 1982, S. 202
4. [Redacted]: Formation of Pu236 in PWR-Fuel, Interner Bericht PWA 12/82, März 1992



## Anhang

### Neue Daten von Np236m, Np236 und Np237

9323618.1	E+041.0	.5200.0	.0	0.0	0.0	.3403.0	
						.0	4.77-72.70-9
0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.77E 00	
				0.0	.0	0.0	1
0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.77E 00	
				0.0	.0	0.0	2
3.59E-01		0.0	3.15E 00				
				0.0	.0	0.0	3
0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
				0.0	.0	0.0	4
9323604.860E+121.0		.9100.0	.0	0.0	0.0	.1333.0	
						.0	.240-5.800-6
0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.77E 00	
				0.0	.0	0.0	1
0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.77E 00	
				0.0	.0	0.0	2
3.59E-01		0.0	3.15E 00				
				0.0	.0	0.0	3
0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
				0.0	.0	0.0	4
9323706.753E+131.0	.0	.0	.0	1.0000.0		4.957.0	
						4.957007.37-83.9-10	
1.70E 02	9.60E 02	0.0	1.90E-02	0.0		1.22E 00	
						1.30E-03.725	9.50E-061
1.70E 02	7.56E 02	0.0	1.90E-02	0.0		1.22E 00	
						4.55E-03.725	9.50E-062
7.65E-01		0.0	3.60E-01				
						9.75E-05.725	7.10E-073
3.14E 02	8.94E 02	0.0	3.70E-02	0.0		0.0	
						9.80E-03.725	0.0
							4

Alte Daten von Np236m, Np236 und Np237

9323613.629E+121.0	.9100.0	.0	0.0	0.0	.1333.0		
				.0	.240-5.800-6		
0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.77E 00		
				0.0	.0	0.0	1
0.0	0.0	0.0	0.0	-0.0	1.77E 00		
				0.0	.0	0.0	2
3.59E-01		0.0	3.15E 00				
				0.0	.0	0.0	3
0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0		
				0.0	.0	0.0	4
9323608.1 E+041.0	.5200.0	.0	0.0	0.0	.3403.0		
				.0	4.77-72.70-9		
0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.77E 00		
				0.0	.0	0.0	1
0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.77E 00		
				0.0	.0	0.0	2
3.59E-01		0.0	3.15E 00				
				0.0	.0	0.0	3
0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0		
				0.0	.0	0.0	4
9323706.753E+131.0	.0	.0	.0	1.0000.0	4.957.0		
					4.957007.37-83.9-10		
1.70E 02	9.60E 02	0.0	1.90E-02	0.0	1.22E 00		
					1.30E-03.275	9.50E-061	
1.70E 02	7.56E 02	0.0	1.90E-02	0.0	1.22E 00		
					4.55E-03.275	9.50E-062	
7.65E-01		0.0	3.60E-01				
					9.75E-05.275	7.10E-073	
3.14E 02	8.94E 02	0.0	3.70E-02	0.0	0.0		
					9.80E-03.275	0.0	4