

***Gegenüberstellung von Endlagerkonzepten
in Salz und Tongestein (FKZ 02 E 9511)***

***Sicherheit in der
Nachbetriebsphase (A4)***

DBE TECHNOLOGY GmbH
Eschenstraße 55
D-31224 Peine

Dezember 2004

Projektleiter: W. Filbert
DBE TECHNOLOGY GmbH

Zusammengestellt von: W. Filbert

Bearbeiter: P. Amelung
W. Bollingerfehr
N. Müller-Hoeppe
DBE TECHNOLOGY GmbH

B. Kienzler
A. Bauer
A. Loida
V. Metz
Institut für Nukleare Ent-
sorgung
Forschungszentrum Karls-
ruhe

DBE TECHNOLOGY GmbH

Die diesem Bericht zu Grunde liegenden Arbeiten wurden im Auftrag des Bundesministeriums für Wirtschaft und Arbeit (BMWA), vertreten durch den Projektträger für Wassertechnologie und Entsorgung im Forschungszentrum Karlsruhe, durchgeführt (FKZ 02 E 9511). Die Verantwortung für den Inhalt liegt jedoch allein bei den Autoren.

Dieser Bericht unterliegt samt Inhalt dem Schutz des Urheberrechts und darf nur mit Zustimmung der DBE TECHNOLOGY GmbH oder ihrer Auftraggeber ganz oder in Teilen vervielfältigt werden.

Zusammenfassung

Im Rahmen des FuE-Vorhabens „Gegenüberstellung von Endlagerkonzepten in Salz und Tongestein (GEIST)“ wurde ein Endlagerkonzept im Tongestein entworfen und dem für Steinsalz vorliegenden Konzept gegenübergestellt. Dabei wurden die charakteristischen Unterschiede zwischen einem generischen Endlager für hochaktive Abfälle im Salz und einem in Tongestein herausgearbeitet. Insbesondere wurden die Besonderheiten des Wirtsgesteins Ton hinsichtlich der Technik, der Sicherheit und der Kosten analysiert und offene Fragen identifiziert. Die Gegenüberstellung konzentrierte sich auf den Bereich des Endlagers. Im vorliegenden Anlagenband A4 der Studie wurden zum Thema Sicherheit in der Nachbetriebsphase, die Langzeitsicherheit, die Kritikalitätsfrage beim Endlagerkonzept in Ton und Salz und die Safeguardsmaßnahmen untersucht.

Langzeitsicherheit

Die Untersuchungen zur Langzeitsicherheit zeigten, dass Endlagerkonzepte in Salz und Ton hinsichtlich der Langzeitsicherheit eine vergleichbare Sicherheitstrategie aufweisen. Die Endlagerkonzepte basieren im Unterschied z. B. zu Endlagerkonzepten im Granit auf einer langfristig einschlusswirksamen geologischen Barriere.

Hinsichtlich des Transportes von Radionukliden und sonstigen Schadstoffen außerhalb des einschlusswirksamen Gebirgsbereiches für einen hypothetischen Störfall sind Endlagerkonzepte im Salz und Ton methodisch in gleicher Weise zu behandeln. Sie werden an Hand von Modellrechnungen zur Grundwasserbewegung bewertet. Dominant für die Grundwasserbewegung sind dabei standortspezifische Unterschiede, die wirtsgesteinsspezifischen Unterschiede sind von geringerer Bedeutung.

Im Falle des Wirtsgesteins Salz findet zwangsläufig eine maßgebliche Verdünnung der radionuklidbelasteten Salzlösung statt, da diese bei einem störfallbedingten Austritt aus dem Salzstock als gesättigte Salzlösung vorliegt. Gesättigte Salzlösungen werden von der Biosphäre unverdünnt nicht aufgenommen. Bzgl. der Ausbreitung von Radionukliden in der Biosphäre ergeben sich keine Unterschiede für Endlagerkonzepte im Salz und Ton, da Biosphärenmodelle auf Grundlage der Nutzung von Wasser und Boden sowie Verzehrgewohnheiten regulativ festgelegt sind.

Die wesentlichen Unterschiede der Wirtsgesteine Salz und Ton im Hinblick auf Langzeitsicherheitsfragen beziehen sich auf das Nahfeld. Den dort herrschenden unterschiedlichen Bedingungen wird durch entsprechend angepasste technische Endlagerkonzepte Rechnung getragen, so dass für beide Wirtsgesteine langfristig ein hinreichendes Sicherheitsniveau erreicht werden kann. Der Langzeitsicherheitsnachweis muss diese Unterschiede abbilden, wobei der derzeitige wissenschaftlich/technische Kenntnisstand im Ton deutlich weniger weit fortgeschritten ist als im Salz.

Vergleich der Kritikalitätssicherheit in der Nachbetriebsphase eines Endlagers in Ton bzw. Salz

In der folgenden Tabelle sind die in der vorliegenden Studie durchgeführten Kritikalitätsanalysen für die Endlagerung in Steinsalz bzw. in Tongestein zusammengestellt. Es zeigte sich, dass für das vorgegebene Kernbrennstoffinventar auch unter Annahme von sehr unwahrscheinlichen Szenarien eine Kritikalität in beiden Wirtsgesteinen und für alle bisherigen Einlagerungskonzepte ausgeschlossen werden kann.

Konzept	Steinsalz <i>/3-5/, /3-6/</i>		Tongestein	
Szenario	POLLUX Streckenlage- rung	BSK 3 Bohrloch (300 m)	POLLUX Streckenlage- rung	BSK 2 Tiefe 50 m
Mechanische Veränderun- gen in den Endlagerge- binden	nicht relevant	nicht relevant	nicht relevant siehe Kap. 3.4.1	nicht relevant siehe Kap. 3.4.1
Leckage von Behältern, Eindringen von Wasser bzw. Lauge	Voraussetzung für Kritikalität keine Kritikalität möglich, da hohe Cl- Konzentration	Voraussetzung für Kritikalität keine Kritikalität möglich, da hohe Cl-Konzentration	Voraussetzung für Kritikalität geringe Cl- Konzentration keine Kritikalität mög- lich, siehe Kap. 3.4.2	Voraussetzung für Kritikalität geringe Cl- Konzentration keine Kritikalität möglich, siehe Kap. 3.4.2
Korrosion und Auflö- sung der Behälter- struktur, Vermischen von Kern- brennstoff mit dem Wirtsgestein	Bildung von Cl- haltigen Korro- sionsprodukten K_{inf} Berechnun- gen durchge- führt	Bildung von Cl- haltigen Korrosi- onsprodukten	Eisenphasen mit unterschiedlichem Wassergehalt, siehe Kap.3.4.3	Eisenphasen mit unterschiedlichem Wassergehalt, siehe Kap.3.4.3

Zusammenfassung der Kritikalitätsanalysen für die Endlagerung in Steinsalz bzw. in Tongestein (Teil 1)

Konzept	Steinsalz /3-5/, /3-6/		Tongestein	
Zusammenfließen des Kernbrennstoffs aus mehreren Behältern durch Fließbewegung	Advektive Transportprozesse als Funktion der Zeit Zusammenfließen des Kernbrennstoffs aus mehreren Behältern nicht vorstellbar	Diffusion und advektive Transportprozesse zu langsam Zusammenfließen des Kernbrennstoffs aus mehreren Behältern nicht vorstellbar	Diffusion und advektive Transportprozesse zu langsam siehe Kap. 3.4.5 Sorption, Ausfällung/Redoxreaktionen und Phasenbildung siehe Kap. 3.4.6	Diffusion und advektive Transportprozesse zu langsam siehe Kap. 3.4.5 Sorption, Ausfällung/Redoxreaktionen und Phasenbildung siehe Kap. 3.4.6
Auflösung, Migration und Ablagerung von Kernbrennstoff nach dem Beispiel einer geologischen Lagerstättenbildung	nicht relevant	nicht relevant	Für Kernbrennstoffinventar nach 3.2.2 nicht relevant. Bei MOX durch Bildung von kristallwasserhaltigen Phasen	Für Kernbrennstoffinventar nach 3.2.2 nicht relevant.
Trennung von Uran und Plutonium auf geochemischem Weg sowie Anreicherung von Plutonium	Kein Prozess vorstellbar, der zur Trennung von Uran und Plutonium auf geochemischem Weg führt. Isotopentrennung nicht möglich.	Kein Prozess vorstellbar, der zur Trennung von Uran und Plutonium auf geochemischem Weg führt. Isotopentrennung nicht möglich.	Kein Prozess vorstellbar, der zur Trennung von Uran und Plutonium auf geochemischem Weg führt. Isotopentrennung nicht möglich. Günstige Moderationsverhältnisse für einige U(VI)- und Pu-Phasen	Kein Prozess vorstellbar, der zur Trennung von Uran und Plutonium auf geochemischem Weg führt. Isotopentrennung nicht möglich. Günstige Moderationsverhältnisse für einige U(VI)- und Pu-Phasen
Moderationseigenschaften	Neutronenabsorption durch Stahl und Cl	Neutronenabsorption durch Chlorid	Neutronenabsorption durch Stahlbehälter Tabelle 3-16	Tabelle 3-16 Ton entspricht Wasser
Einlagerung von MOX	keine Kritikalität möglich, da hohe Cl-Konzentration	keine Kritikalität möglich, da hohe Cl-Konzentration	Günstige Moderationsverhältnisse für einige U(VI)- und Pu-Phasen	

Konzept	Steinsalz /3-5/, /3-6/	Tongestein
---------	---------------------------	------------

Zusammenfassung der Kritikalitätsanalysen für die Endlagerung in Steinsalz bzw. in Tongestein (Teil 2)

Safeguardsaspekte

Die Untersuchungen zu den Safeguardsaspekten zeigten, dass der für das Endlagerkonzept angenommene Tonstein sich hinsichtlich seiner Verformungseigenschaften ähnlich verhält wie Steinsalz. Damit unterliegt auch dieses Wirtsgestein langfristig starkem Konvergenzverhalten. Nach einer sofortigen Verfüllung der Einlagerungshohlräume um oder über den Endlagergebinden in Strecken und Bohrlöchern, sorgt die natürliche Konvergenz dafür, dass das Versatzmaterial kompaktiert und die Gebinde eingeschlossen werden. Es wird davon ausgegangen, dass in einem Endlager in Tongestein wie im Salz ein vollständiger Einschluss der Endlagergebinde möglich ist. Somit kann wie für ein Endlager im Salz die Überwachung in der Nachbetriebsphase auf eine Überwachung der Erdoberfläche über dem verfüllten und geschlossenen Endlager beschränkt werden. Dazu zählen Luftbildaufnahmen, Satellitenbilder oder örtliche Begehungen. Im Rahmen weiterführender Forschungen ist dabei zu untersuchen, ob neue geophysikalische Methoden zur Überwachung des Endlagers von über Tage weiterführende Ergebnisse liefern können. Durch Studien könnte dies analysiert werden und, falls diese zu positiven Ergebnissen führen, durch in-situ Versuche auf ihre Anwendungsfähigkeit überprüft werden.

Die nicht geplante aber denkbare Rückholung eingelagerter Endlagerbehälter ist sowohl im Salz als auch im Ton aufgrund des genannten Konvergenzverhaltens des Gebirges sehr aufwändig und würde nicht unbemerkt erfolgen können. Dazu wäre nach Beendigung des Endlagerbetriebes die Wiederauffahrung des Grubengebäudes oder die Errichtung eines neuen Endlagerbergwerkes erforderlich.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Langzeitsicherheit	5
2.1	Standortunabhängige Schutzziele	5
2.2	Nachweiszeiträume	5
2.2.1	Allgemeines	5
2.2.2	Prognostizierbarkeit	6
2.2.3	Öffentlichkeit und regulatorische Aspekte	7
2.2.4	Zusammenfassung der Ergebnisse zu den Nachweiszeiträumen	8
2.3	Standortunabhängige Sicherheitskriterien für die Langzeitsicherheitsanalyse	9
2.3.1	Konventionelles Schutzziel Senkung/Hebung Tagesoberfläche	9
2.3.2	Konventioneller Grundwasserschutz	9
2.3.3	Radiologischer Schutz der Biosphäre	11
2.3.4	Kritikalitätssicherheit	12
2.3.5	Zusammenfassung zu den standortunabhängigen Sicherheitskriterien	12
2.4	Abfallinventar	13
2.5	Methodische Vorgaben hinsichtlich potentieller Endlagerentwicklungen	13
2.6	Standortspezifische Grundlagen für den Langzeitsicherheitsnachweis	14
2.6.1	Geologisches Modell	14
2.6.1.1	Wirtsgestein Salz	15
2.6.1.2	Wirtsgestein Ton	16
2.6.2	Hydrogeologisches Modell	16
2.6.2.1	Wirtsgestein Salz	18
2.6.2.2	Wirtsgestein Ton	18
2.7	Technisches Endlagerkonzept	19
2.7.1	Salz	19
2.7.2	Ton	20
2.8	Szenarienanalyse	21
2.8.1	Salz	22
2.8.1.1	Relevante Randbedingungen für die Entwicklung und Klassifizierung von Szenarien	22
2.8.2	Ton	23
2.8.2.1	Relevante Randbedingungen für die Entwicklung und Klassifizierung von Szenarien	23
2.9	Zusammenfassung zu den standortspezifischen Randbedingungen, dem technischen Endlagerkonzept und der Szenarienanalyse	23

3	Vergleich der Kritikalitätssicherheit in der Nachbetriebsphase	25
3.1	Methodik zur Bewertung der Kritikalitätssicherheit	25
3.1.1	Definitionen	25
3.1.2	Publizierte Daten zur Kritikalitätssicherheit	30
3.1.3	Temperaturabhängigkeit des Multiplikationsfaktors	31
3.2	Vorgaben für die Studie	33
3.2.1	Wirtsgesteine und Versatzstoffe	33
3.2.2	Kernbrennstoff-Inventare	35
3.2.3	Behälterkonzepte	36
3.2.4	Einlagerungskonzepte	37
3.2.5	Thermische Leitfähigkeit von Bentonit und dem Opalinuston	38
3.2.6	Strahlungsfeld	39
3.3	Charakteristika der Nachbetriebsphase	40
3.3.1	Entwicklung der Temperatur innerhalb der Bentonit-Barriere und der Ton Endlagerformation	41
3.3.2	Einflüsse der eingelagerten Abfälle auf die Stabilität der Bentonit- Barriere	41
3.3.3	Aufsättigung des Versatzstoffs in den Lagerstollen	43
3.4	Kritikalitätsrelevante Szenarien in der Nachbetriebsphase	44
3.4.1	Mechanische Verformung von Endlagergebinden	44
3.4.1.1	Verdichtung der Stababstände	44
3.4.1.2	Aufweitung der Lagerungsabstände	44
3.4.1.3	Spaltstoff in Pelletschüttung	45
3.4.1.4	Spaltstoff in Partikelschüttung	45
3.4.2	Leckage von Behältern, Eindringen von Wasser bzw. Lauge	45
3.4.3	Korrosion und Auflösung der Behälterstruktur, Vermischen von Kernbrennstoff mit dem umgebendem Wirtsgestein und Wasser/Lauge	47
3.4.4	Zusammenfließen des Kernbrennstoffs aus mehreren Behältern durch Fließbewegung im Wirtsgestein	49
3.4.5	Auflösung, Migration und Ablagerung von Kernbrennstoff nach dem Beispiel einer geologischen Lagerstättenbildung	49
3.4.6	Trennung von Uran und Plutonium auf geochemischem Weg	51
3.5	Kritikalitätsanalysen	54
3.5.1	Ergebnisse von Kritikalitätsanalysen im Steinsalz-System	56
3.5.2	Ergebnisse von Kritikalitätsanalysen im Ton/Bentonit-System	57
3.6	Zusammenfassung und Schlussfolgerungen	59
4	Safeguardsaspekte	63
5	Literaturverzeichnis	65
6	Abbildungsverzeichnis	77

7	Tabellenverzeichnis	79
8	Abkürzungsverzeichnis	81
9	Verzeichnis der Anlagenbände	83

1 Einleitung

Mit der Entscheidung der Bundesregierung neben dem Endlagermedium Salz auch andere geologische Formationen auf ihre Eignung als Wirtsgestein für radioaktive Abfälle zu untersuchen, ergibt sich auch die Notwendigkeit, grundlegende konzeptionelle Ansätze für ein generisches Endlager in nichtsalinarem Gestein zu entwickeln.

Untersuchungen zur Endlagerung hochradioaktiver Abfälle im Salz werden in der Bundesrepublik Deutschland seit mehr als 30 Jahren durchgeführt. Im Rahmen einer Vorstudie fasste das Kernforschungszentrum Karlsruhe (KfK) im Auftrag des Bundesministeriums für Forschung und Technologie 1979 den bis dahin vorliegenden Kenntnisstand zur Direkten Endlagerung zusammen. In dem auf diesen Ergebnissen aufbauenden Forschungs- und Entwicklungsschwerpunkt Andere Entsorgungstechniken wurde in den Jahren 1981 bis 1984 ein technisches Konzept für die Direkte Endlagerung entwickelt und ein umfassender Vergleich der beiden Entsorgungswege mit und ohne Wiederaufarbeitung angestellt. Die Bundesregierung entschied auf Grundlage der dabei erzielten Ergebnisse, die Arbeiten zur Direkten Endlagerung bis zur Anwendungsreife weiterzuführen. In diesem Zusammenhang wurden von 1985 bis 1993 sowohl Demonstrationsvorhaben als auch systemanalytische Arbeiten durchgeführt. Während in den Demonstrationsversuchen technische Komponenten entwickelt und erprobt wurden, dienten die Systemanalyse Mischkonzept (SAM) /1-1/ und die Systemanalyse Endlagerkonzepte (SEK) /1-2/ dazu, für unterschiedliche Mischungsverhältnisse von Brennelementen und Wiederaufarbeitungsabfällen vollständige Entsorgungssysteme zu erarbeiten und hinsichtlich Sicherheit, technischer Machbarkeit und Wirtschaftlichkeit zu bewerten.

Seit 1979 wurde der Salzstock Gorleben auf seine Eignung als Endlager für alle Arten fester radioaktiver Abfälle untersucht. Über zwei Schächte und entsprechende Strecken wurde der Salzstock in 840 m Teufe bis zum Moratorium 2000 großräumig erschlossen und geowissenschaftlich erkundet. Nach Feststellung der Eignung aufgrund der Erkundung sollte sich das atomrechtliche Genehmigungsverfahren mit dem Ziel der Errichtung und des Betriebes des Endlagers anschließen. Um dieses Ziel wirksam erreichen zu können, war es erforderlich, ein Konzept für eine durchzuführende Planung zu erstellen. Das Planungskonzept sollte parallel zur untertägigen Erkundung des Salzstockes durchgeführt werden und die Grundlage für standortspezifische Sicherheitsanalysen, die für den Eignungsnachweis des Salzstockes notwendig sind, bilden.

Ende der 90er Jahre wurde spezifisch für den Standort Gorleben auf Basis der bis dahin bekannten Erkundungsergebnisse und einer präzisierten Abfallprognose bis 2080 eine Aktualisierung des Konzeptes Endlager Gorleben /1-3/ erarbeitet. Insofern liegen Untersuchungs- und Planungsergebnisse für ein Endlager im Salz in einem hinreichenden Tiefgang vor, der für eine vergleichende Gegenüberstellung von Endlagerkonzepten in anderen geologischen Formationen erforderlich ist.

Zielsetzung des nachfolgend beschriebenen Vorhabens ist es, die Grundlagen für eine Gegenüberstellung eines generischen Endlagers im Salz und eines im Tongestein unter vergleichbaren Randbedingungen zu schaffen. Dazu sind die wesentlichen Unterschiede der beiden Konzepte herauszuarbeiten und ihre Auswirkungen in Bezug auf Sicherheit, technische Machbarkeit und Kosten etc. zu analysieren. Ausgehend von dieser allgemeinen Zielsetzung wurden umfangreiche Planungen und Untersuchungen durchgeführt und die jeweiligen Ergebnisse in einem zusammenfassenden Hauptband /1-4/ und 6 Anlagenbänden (A1 – A6) dargestellt.

Die veröffentlichten internationalen Überlegungen und konzeptionellen Ansätze für ein Endlager im Tongestein wurden für die Länder Belgien, Schweiz, Frankreich und Spanien zusammengestellt. Berücksichtigung fanden dabei die zugrundeliegenden Endlagerszenarien, Behälterkonzepte und Materialien, radiologische und thermische Basisdaten, Einlagerungskonzepte, Endlagerauslegung und -technik, Sicherheitsnachweiskonzepte sowie Terminpläne und Kostenansätze für die Realisierbarkeit der Endlager (Anlagenband 1) /1-5/.

Um einen Vergleich der technischen Endlagerkonzepte im Wirtsgestein Salz und Ton zu ermöglichen, wurde zunächst das deutsche technische Endlagerkonzept in Salz (Stand 1998) zusammenfassend dargestellt. Beschrieben wurde das zugrundegelegte Abfallmengenszenarium, die berücksichtigten Behälterkonzepte, radiologische und thermische Basisdaten, Einlagerungskonzepte, Endlagerflächenbedarf und Anforderungen an Verfüllmaßnahmen und -materialien sowie Verschlussmaßnahmen. Zur Aufstellung eines technischen Endlagerkonzeptes im Wirtsgestein Ton wurden danach die dazu vorhandenen bergmännischen Erfahrungen bei der Streckenauffahrung und beim Bohren ausgewertet, das Abfallmengenszenarium 2002 dargestellt, Behälterkonzepte und -materialien international und national ausgewertet, Endlagerauslegungen für POLLUX-Behälter, HAW- und Brennstabkokillen durchgeführt sowie ein Verfüll- und Verschlusskonzept aufgestellt. Der Vergleich der beiden technischen Endlagerkonzepte erfolgte in den Bereichen Bergbau in den Wirtsgesteinen, Endlagerbehälterkonzepte, erforderliche Endlagerflächen, Verfüll- und Verschlusskonzept sowie Kosten (Anlagenband 2) /1-6/.

Betrachtungen zur Sicherheit in der Betriebsphase wurden thematisch für den betrieblichen Strahlenschutz, hinsichtlich der Kritikalität beim Endlagerkonzept im Ton und für Safeguardsmaßnahmen in der Betriebsphase durchgeführt. Als eine erste Grundlage für die Einlagerungstechnologie wurde eine Abschirmrechnung für eine mit Bentonit ummantelte HAW-Kokille durchgeführt (Anlagenband 3) /1-7/.

Ein Vergleich der Wirtsgesteine Ton/Tonstein und Steinsalz in den Ablagerungsräumen der Norddeutschen Senke und des Süddeutschen Molassebeckens schließen das Vorhaben ab. Darin enthalten sind die Anforderungen an ein Wirtsgestein, die geologische Situation im Süddeutschen Molassebecken und in der Norddeutschen Senke, die

Evaporitgesteine in der Norddeutschen Senke, Mineralogie, Temperaturumfeld der Gesteine und ihre Explorierbarkeit. (Anlagenband 5) /1-8/.

Auswirkungen auf den Langzeitsicherheitsnachweis eines Endlagers haben die wesentlichen Unterschiede des chemisch/mineralischen Stoffbestandes und damit die Materialeigenschaften der Wirtsgesteine Salz und Ton. So sind bei der Endlagerung im Ton zusätzlich chemische Rückhaltemechanismen wie die Sorption von Radionukliden zu betrachten. Im Ton sind des Weiteren Prozesse nicht auszuschließen, die das Rückhaltevermögen chemischer Barrieren und die Abdichtfunktion hydraulischer Barrieren beeinflussen können. Darüber hinaus werden die chemisch/mineralogischen Charakteristika von Evaporit- und Tonsedimenten sowie von Verfüll- und Abdichtmaterialien beschrieben (Anlagenband 6) /1-9/.

Im vorliegenden Anlagenband 4 „Sicherheit in der Nachbetriebsphase“ werden Betrachtungen thematisch zur Langzeitsicherheit, hinsichtlich der Kritikalität beim Endlagerkonzept im Ton und Salz und für Safeguardsmaßnahmen durchgeführt.

2 Langzeitsicherheit

2.1 Standortunabhängige Schutzziele

Unter standortunabhängigen Schutzzielen werden hier die Schutzziele behandelt, die unabhängig von einem konkreten Standort und dem für das Endlagersystem gewählten Wirtsgestein nach Schließung des Endlagers weiter betrachtet werden müssen. Häufig wird als standortunabhängiges Schutzziel ausschließlich das radiologische Schutzziel betrachtet. Diese Betrachtung ist unvollständig. So sind z.B. im Falle des Verschlusses des ERAM folgende Schutzziele zu betrachten /2-1/.

- Schutz der Biosphäre vor den radiologischen Beeinträchtigungen aus dem Endlager
- Schutz des Grundwassers vor konventionellen Beeinträchtigungen aus dem Endlager
- Schutz der Tagesoberfläche vor Beeinträchtigungen in Folge des Endlagers (Senkungen, Hebungen)

Mit der Benennung des Schutzziels ist noch keine Aussage über den zu betrachtenden Nachweiszeitraum vorgenommen. Im Falle des radiologischen Schutzziels wurde bereits festgestellt, dass es unbegrenzt gelten soll. Der Nachweis der Einhaltung des Schutzzieles wird jedoch zeitlich begrenzt. Dementsprechend stellen die zu untersuchenden Nachweiszeiträume eine Randbedingung für den Langzeitsicherheitsnachweis dar.

2.2 Nachweiszeiträume

Betrachtungen zu den Nachweiszeiträumen erfolgten bisher ausschließlich im Hinblick auf die Einhaltung des radiologischen Schutzziels. Die zu untersuchenden Nachweiszeiträume werden ebenfalls als vom gewählten Standort und vom als Endlagermedium gewählten Wirtsgestein unabhängig angesehen. Sie sind jedoch abhängig vom Abfallinventar /2-2/, /2-3/. Aus diesem Grund erfolgt in dieser Betrachtung eine Beschränkung auf wärmeentwickelnde, hochradioaktive, langlebige Abfälle.

2.2.1 Allgemeines

Die in der Sicherheitsanalyse zu betrachtenden Nachweiszeiträume resultieren aus dem ethischen Prinzip der Berücksichtigung der Lasten für zukünftige Generationen /2-4/, das besagt, dass die radiologische Belastung künftiger Generationen nicht höher sein soll, als die heute akzeptierte. Damit ist sichergestellt, dass der Schutz der Biosphäre auch in Zukunft gewährleistet ist. Die zu behandelnden Fragestellungen hinsichtlich der Nachweiszeiträume ergeben sich dann aus folgenden Sachverhalten.

- Die Länge des Zeitraums, in dem der Abfall eine Gefährdung darstellt.
- Dem Fakt, dass eine Freisetzung von Radionukliden in die Biosphäre erst zu einem Zeitpunkt erfolgt, der relativ weit in der Zukunft liegt.

Aus diesem Grund besteht international Übereinstimmung, dass es keinen streng definierten Endzeitpunkt des Betrachtungszeitraums geben kann. Allerdings wird für unterschiedliche Zeitphasen in der Zukunft die Sicherheit auf verschiedene, z.T. alternative Weise gezeigt. In einigen Ländern besteht die Forderung, die Sicherheitsanalyse so lange fortzuführen, bis das Maximum der in die Biosphäre freigesetzten Dosis bzw. des Risikos überschritten ist, unabhängig davon, zu welchen Zeitpunkt dies geschieht.

2.2.2 Prognostizierbarkeit

Eine Beschränkung der Nachweiszeiträume und der Gültigkeit von Nachweiskriterien ergibt sich auch für einen sorgfältig ausgesuchten Endlagerstandort aus der zeitlichen Beschränkung der Prognostizierbarkeit der in die Sicherheitsanalysen eingehenden Teilsysteme (Abbildung 2-1).

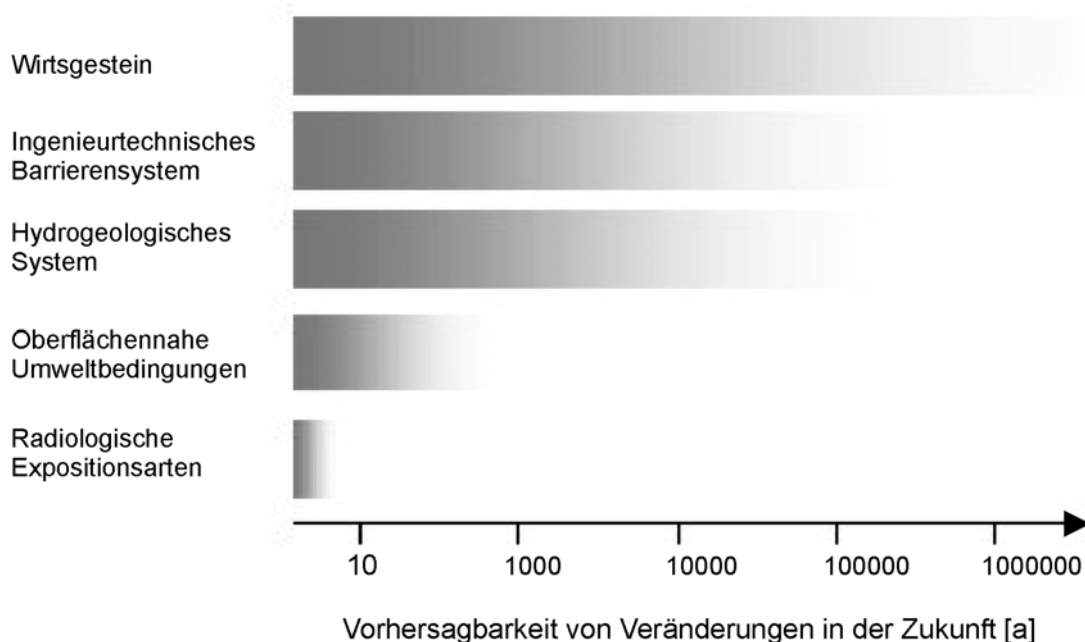


Abbildung 2-1: Prognostizierbarkeit relevanter Teilsysteme /2-5/

Es besteht Übereinstimmung, dass an einem geeigneten Endlagerstandort das Verhalten des Wirtsgesteins über einen Zeitraum von 10^5 bis 10^6 Jahren vernünftig prognostizierbar ist. Es gibt zwar Unsicherheiten in Bezug auf das Wirtsgestein sowie das ingenieurmäßig erstellte Mehrbarriersystem, jedoch wird davon ausgegangen, dass der Einfluss dieser Unsicherheiten wirksam beschränkt werden kann. Wichtig ist dabei zu unterscheiden, ob das Endlagersystem und die Biosphäre entkoppelt werden können oder nicht. Im Falle einer Entkopplung besteht für das Endlagersystem eine bessere Prognostizierbarkeit. Dies gilt unabhängig vom Wirtsgestein. Ist diese Entkopplung nicht möglich, z.B. weil das Endlagersystem vom Grundwasserfluss nicht entkoppelt werden kann, muss auf formal festgelegte Endlagerentwicklungen (*stylized situations*) zurückgegriffen werden.

Festzuhalten ist, dass in entfernten Zeitphasen die Prognostizierbarkeit abnimmt, dies wird jedoch vor dem Hintergrund der abnehmenden Radiotoxizität als adäquat betrachtet. Auch besteht Übereinstimmung, dass die Ergebnisse von quantitativen Sicherheitsanalysen nur noch im Sinne von Sicherheitsindikatoren gewertet werden können. Ein Vergleich mit natürlichen Analoga kann ebenfalls eine Bewertungsbasis bilden. Auch der Ansatz von formal festgelegten Endlagerentwicklungen wird zu diesen späten Zeiten als möglich angesehen, allerdings sind solche Ansätze unter regulatorischen Aspekten noch nicht präzisiert /2-5/.

2.2.3 Öffentlichkeit und regulatorische Aspekte

International wird gegenwärtig die Diskussion geführt, dass die derzeit durchgeführten Sicherheitsanalysen zu wenig auf die ersten 100 bis einige 1.000 Jahre eingehen, die seitens der Öffentlichkeit besser verstanden werden. Allerdings ist die Öffentlichkeit inhomogen und betrachtet auch längerfristige Einwirkungen, z.B. die einer Eiszeit. Der Öffentlichkeit sind für diese Zeiträume jedoch Sicherheitsindikatoren, die auf geologischer Stabilität und Vorhersagbarkeit beruhen, verständlicher als die weitere Verwendung von Dosis und Risikowerten als Sicherheitsindikatoren. Es wird unterstellt, dass ein großer Teil der Öffentlichkeit 1.000 Jahre als einen sehr langen Zeitraum betrachtet und die Behandlung längerer Zeiträume wenig glaubhaft erscheint. Dies ist der Grund, weshalb in Schweden eine vertiefte Betrachtung der ersten 1.000 Jahre gefordert wird.

Festzuhalten ist, dass die zu betrachtenden Nachweiszeiträume und die damit verknüpften Sicherheitsanalysen unterschiedlich gehandhabt werden. So fordert das Regelwerk in Großbritannien eine detaillierte Berechnung von Dosis und Risiko in nahen Zeiträumen, später sind einfachere zusammenfassende Berechnungen zulässig, die durch qualitative Information ergänzt werden.

In Schweden ist eine Risikogrenze ohne zeitliche Beschränkung definiert. Quantitative Analysen sind jedoch nur für die erste Zeitphase von einigen 1.000 Jahren gefordert. Danach erfolgt eine Bewertung des schützenden Charakters des Endlagers an Hand

verschiedener, möglicher Szenarien. In Finnland sind präzisere Anforderungen gegeben. Es sind Zeitphasen für den Langzeitsicherheitsnachweis explizit definiert. Sie sind wie folgt gegliedert.

- Die umweltmäßig vorhersagbare Zukunft (einige tausend Jahre). In diesem Zeitraum muss die Dosis konservativ ermittelt werden.
- Die Zeitphase extremer Klimaveränderungen (jenseits von 10.000 Jahren). In diesen Zeitphasen werden Perioden des Permafrosts und eiszeitliche Bedingungen erwartet. Der radiologische Schutz wird durch Beschränkung des Geosphären - Biosphären Flusses von Radionukliden gewährleistet.
- Die Zeitphase der fernen Zukunft (jenseits von 200.000 Jahren). In dieser Zeitphase erreicht die Aktivität von verbrauchten Kernbrennstoff die des Natururans, aus dem sie hergestellt wurden. In dieser Zeitphase wird kein strenger Sicherheitsnachweis mehr geführt, sondern die Sicherheit wird mit Hilfe vorwiegend qualitativer Betrachtungen gezeigt.

Um ethischen und technischen Betrachtungen gleichermaßen Rechnung zu tragen wird vorgeschlagen /2-6/, die Isolation im Endlager zeitlich zu gewichten.

500 Jahre: Für diese Anfangsperiode wird vorgeschlagen, den vollständigen Einschluss zu gewährleisten, zumindest für HAW und BE. Diese Zeitphase ist für die Öffentlichkeit von größtem Interesse.

500 – 100.000 Jahre: Eine Dosis abgeleitet aus der natürlichen Umgebungsdosis wird vorgeschlagen.

Jenseits 100.000 Jahre: Das Endlagersystem erreicht wieder natürliche Bedingungen, die Verteilung der verbleibenden Aktivität erfolgt durch natürliche Prozesse und liegt im Rahmen natürlicher regionaler Variationen.

Anmerkung zum regulatorischen Aspekt in Deutschland: Bereits genehmigte Deponien für nichtradioaktive Abfälle und deren Toxizitätsindex werden vergleichend herangezogen, um das Gefährdungspotential radioaktiver Abfälle (mit Zerfall) im Vergleich zu chemotoxischen Abfällen (ohne Zerfall) darzustellen und den Zeitpunkt zu bestimmen, wann in etwa eine Deponie für radioaktive Abfälle das Gefährdungspotential einer klassischen Deponie für chemotoxische Abfälle erreicht /2-2/, /2-3/. Der vorgenommene Vergleich stellt jedoch lediglich einen ersten Ansatz dar, da er ausschließlich auf dem Vergleich des Gefährdungspotentials beruht und die schützende Wirkung des Endlagersystems nicht berücksichtigt wird. Alle gewählten Toxizitätsindikatoren ergeben jedoch einen Betrachtungszeitraum von mindestens 100.000 Jahren, der für ein Endlager für HAW und BE zu betrachten ist.

2.2.4 Zusammenfassung der Ergebnisse zu den Nachweiszeiträumen

Als Ergebnis der internationalen Diskussion ist festzuhalten, dass der Nachweiszeitraum für ein Endlager für HAW und BE auf 100.000 bis 1.000.000 Jahre beschränkt ist. Innerhalb dieses Zeitraums werden weitere Unterteilungen vorgenommen, für die un-

terschiedliche Sicherheitsnachweiskriterien bzw. Sicherheitsindikatoren zu Grunde gelegt werden. Insbesondere die Zeitspanne von bis zu 1.000 Jahre nach Verschluss des Endlagers gilt als für die Öffentlichkeit von besonderem Interesse. Dieser Zeitraum ist identisch mit dem Zeitraum, der in der Endlagerentwicklung als thermische Phase bezeichnet wird. Die thermische Phase beinhaltet den Zeitraum des wesentlichen Zerfalls der Spaltprodukte und des Abklingens großer Wärmeleistungen. Eine weitere Phase umfasst den Zeitraum bis zum Auftreten extremer Klimawandels (Kaltzeit, Eiszeit). Diesem Zeitraum wird gemäß internationaler Diskussion ein Zeitbereich von 10.000 bis 100.000 Jahre zugeordnet. Er ist gekennzeichnet vom Erhalt des hydrogeologischen Systems.

2.3 Standortunabhängige Sicherheitskriterien für die Langzeitsicherheitsanalyse

2.3.1 Konventionelles Schutzziel Senkung/Hebung Tagesoberfläche

Im Falle des ERAM wird ein Grenzwert der Senkung von 1 m /2-7/ oder alternativ eine Schiefstellungsrate 1/300 /2-8/ pro Jahrhundert zur Genehmigung gestellt, um die Nutzung der Tagesoberfläche für zukünftige Generationen nicht zu beschränken. Da die Schiefstellungsrate degressiv abnimmt und immer unter dem Grenzwert liegt, wurde im Falle des ERAM dieser Nachweis zeitlich beschränkt auf 1.000 Jahre geführt /2-9/. Allgemein ist auf jeden Fall eine Beschränkung des maximalen Nachweiszeitraums auf den Zeitraum beständiger klimatischer Bedingungen sinnvoll, da die Tagesoberfläche in der Phase extremen Klimawandels derart massiv beeinflusst wird, dass der Einfluss aus dem Endlager vernachlässigt werden kann. Des Weiteren ist auch in einem Endlager für HAW und BE der thermische Einfluss soweit abgeklungen, dass das Maximum thermisch induzierter Hebungen überschritten ist.

2.3.2 Konventioneller Grundwasserschutz

Die für den Schutz des Grundwassers geltenden Regelungen sind unabhängig vom Standort des Endlagers oder von der Art des Wirtsgesteins. So sind in der Anlage der Grundwasserverordnung /2-10/ diejenigen Stofffamilien und Stoffgruppen in qualitativer Weise genannt (Listen I und II), die zu einer schädlichen Verunreinigung des Grundwassers oder zu einer sonstigen nachteiligen Veränderung seiner Eigenschaften führen können.

Liste I der Stofffamilien und Stoffgruppen:

Die Liste I umfasst die einzelnen Stoffe der nachstehend aufgeführten Stofffamilien und Stoffgruppen mit Ausnahme der Stoffe, die aufgrund des geringen Toxizitäts-, Langlebigkeits- oder Bioakkumulationsrisikos als ungeeignet für die Liste I angesehen werden. Stoffe, die im Hinblick Toxizität, Langlebigkeit oder Bioakkumulation für die Liste II geeignet sind, sind als Stoffe der Liste II zu behandeln.

1. Organische Halogenverbindungen und Stoffe, die im Wasser derartige Verbindungen bilden können
2. Organische Phosphorverbindungen
3. Organische Zinnverbindungen
4. Stoffe, die im oder durch Wasser krebserregende, mutagene oder teratogene Wirkung haben; Dazu gehören auch Stoffe aus der Liste II, soweit sie diese Wirkung haben
5. Quecksilber und Quecksilberverbindungen
6. Cadmium und Cadmiumverbindungen
7. Mineralöle und Kohlenwasserstoffe
8. Cyanid

Liste II der Stofffamilien und Stoffgruppen:

Die Liste II umfasst die einzelnen Stoffe und Stoffkategorien aus den nachstehend aufgeführten Stofffamilien und Stoffgruppen, die eine schädliche Wirkung auf das Grundwasser haben können.

1. Folgende Metalloide und Metalle und ihre Verbindungen: Zink, Kupfer, Nickel, Chrom, Blei, Selen, Arsen, Antimon, Molybdän, Titan, Zinn, Barium, Beryllium, Bor, Uran, Vanadium, Kobalt, Thallium, Tellur, Silber
2. Biozide und davon abgeleitete Verbindungen, die nicht in Liste I enthalten sind
3. Stoffe, die eine für den Geschmack oder den Geruch des Grundwassers abträgliche Wirkung haben, sowie Verbindungen, die im Grundwasser zur Bildung solcher Stoffe führen und es für den menschlichen Gebrauch ungeeignet machen können
4. Giftige oder langlebige organische Siliziumverbindungen und Stoffe, die im Wasser zur Bildung solcher Verbindungen führen können, mit Ausnahme derjenigen, die biologisch unschädlich sind oder sich im Wasser rasch in biologisch unschädliche Stoffe umwandeln
5. Anorganische Phosphorverbindungen und reiner Phosphor
6. Fluoride
7. Ammoniak und Nitrite

Grundwasserrelevante Aspekte im Zusammenhang mit der Endlagerung radioaktiver Abfälle sind am Beispiel des genehmigten Endlagers Konrad /2-11/ dargestellt. Es wird ausgeführt, dass eine mögliche Besorgnis hinsichtlich der Verunreinigung des Grundwassers zu überprüfen und zu bewerten ist. Dies setzt hinreichend detaillierte, quantitative Angaben voraus. Im ersten Schritt wurden die Inventare organischer und anorganischer nicht-radioaktiver Stoffe quantitativ bestimmt, die in den Listen I und II sowie in weiteren Regelwerke und Empfehlungen /2-12/, /2-13/, /2-14/, /2-15/ aufgeführt sind.

Die Ausbreitung der Schadstoffe über den Wasserpfad in das Grundwasser wurde mit Hilfe von Modellberechnungen unter konservativen Annahmen ermittelt und Prüfwerten bzw. Grenzkonzentrationen gegenübergestellt. Für nachfolgende, im Falle des Endlagers Konrad relevante Stoffe und Verbindungen sind die zu Grunde gelegten Prüfwerte bzw. Grenzkonzentrationen für das oberflächennahe Grundwasser angegeben /2-11/, siehe Tabelle 2-1.

Stoff/Verbindung	Cyanid	Ag	As	B	Ba	Be	Mo	Se
Prüfwerte/Grenzkonzentrationen [g/l]	$1,0 \cdot 10^{-5}$	$1,0 \cdot 10^{-5}$	$5,0 \cdot 10^{-6}$	$1,0 \cdot 10^{-4}$	$3,0 \cdot 10^{-4}$	$1,0 \cdot 10^{-7}$	$5,0 \cdot 10^{-5}$	$1,0 \cdot 10^{-6}$
Stoff/Verbindung	Se	Sn	Te	Ti	Tl	U	V	Zn
Prüfwerte/Grenzkonzentrationen [g/l]	$1,0 \cdot 10^{-6}$	$4,0 \cdot 10^{-5}$	$1,0 \cdot 10^{-5}$	$1,0 \cdot 10^{-7}$	$8,0 \cdot 10^{-6}$	$1,0 \cdot 10^{-7}$	$5,0 \cdot 10^{-5}$	$3,0 \cdot 10^{-4}$

Tabelle 2-1: Stoffe/Verbindungen und zugehörige Prüfwerte/Grenzkonzentrationen [g/l]

Für den Schutz des Grundwassers sind nicht nur die aus den Abfallgebinden resultierenden, das Grundwasser beeinträchtigenden Stoffe von Bedeutung. So ist im Fall der Stilllegung des ERAM auch das Versatzmaterial Salzbeton zu berücksichtigen. Aus diesem Grund wurden die Eluatwerte des Salzbetons bestimmt /2-9/.

Entsprechende Prüfwerte bzw. Grenzkonzentrationen im oberflächennahen Grundwasser sind auch im Falle eines Endlagers für HAW und BE einzuhalten. Welche im Detail maßgebend sind, ist in Abhängigkeit von den in das Endlager eingebrachten Stoffen festzulegen.

2.3.3 Radiologischer Schutz der Biosphäre

Im Allgemeinen sind durch nationales Regelwerk die (Mindest)anforderungen zur Gewährleistung des radiologischen Schutzes benannt. Diese Anforderungen, die in Deutschland durch die Strahlenschutzverordnung /2-16/ gegeben sind, werden auch für Endlager für radioaktive Abfälle in der Nachbetriebsphase angewandt. International wird von der ICRP empfohlen /2-17/ die ungestörte und die gestörte Entwicklung des

Endlagers unterschiedlich an Hand von Dosis- bzw. Risikokriterien zu bewerten. In Deutschland werden derzeit ausschließlich Dosiskriterien angewandt, so gilt für die Individualdosis der Bevölkerung ein Dosisgrenzwert von 0,3 mSv/a in Verbindung mit dem Minimierungsgebot. Unterhalb der trivialen Dosis von 0,03 mSv/a entfällt auch das Minimierungsgebot. Die Einführung von ergänzenden Sicherheitskriterien wird zur Zeit diskutiert /2-18/, /2-19/.

Alle nationalen Regelwerke fordern jedoch, Analysen durchzuführen, die direkten Bezug nehmen auf die quantitativen Maßstäbe Dosis bzw. Risiko. Dies gilt mindestens bis zum Beginn des Zeitraums extremen Klimawandels.

Zu späteren Zeitpunkten ist die Anwendbarkeit von Dosis- bzw. Risikowerten in der Diskussion. Es besteht jedoch Konsens, dass im Falle ihrer Anwendung sie lediglich Sicherheitsindikatoren darstellen. Weitere Sicherheitsindikatoren werden international diskutiert /2-20/.

- Radiotoxizität außerhalb der Geosphäre [Sv]
- Zeitintegrierter Radiotoxizitätsfluss aus der Geosphäre [Sv]
- Radiotoxizitätskonzentration im Biosphärenwasser [Sv/m³]
- Radiotoxizitätsfluss aus der Geosphäre [Sv/a]
- Relative Aktivitätskonzentrationen im Biosphärenwasser [-]
- Relativer Aktivitätsfluss aus der Geosphäre [-]

Sie sind auf Grund fehlender Bewertungsmaßstäbe und -grundlagen nur sehr eingeschränkt anwendbar.

2.3.4 Kritikalitätssicherheit

Aussagen zur Kritikalitätssicherheit sind in Kap. 3 aufgeführt.

2.3.5 Zusammenfassung zu den standortunabhängigen Sicherheitskriterien

Die angegebenen Sicherheitskriterien und Sicherheitsindikatoren stellen die Bewertungsmaßstäbe für den Nachweis der Sicherheit bzgl. konventioneller und radiologischer Fragestellungen des Langzeitsicherheitsnachweises dar und sind damit wesentliche Randbedingungen für den Langzeitsicherheitsnachweis. Sie müssen unabhängig vom gewählten Standort und Endlagermedium eingehalten werden.

2.4 Abfallinventar

Das Abfallinventar hängt vom Aufkommen radioaktiver Abfälle ab und gehört daher ebenfalls zu den standortunabhängigen und wirtsgesteinsunabhängigen Randbedingungen für den Langzeitsicherheitsnachweis. Die Konditionierung und Verpackung der Abfälle ist jedoch nicht mehr vom gewählten Wirtsgestein unabhängig. Eine Verknüpfung besteht auch zum technischen Endlagerkonzept, das wiederum spezifisch für verschiedene Wirtsgesteine ist.

Das Abfallinventar wird deshalb, obwohl im Grundsatz unabhängig vom gewählten Wirtsgestein, meistens im Zusammenhang mit dem Abfallgebinde behandelt und damit als eine wirtsgesteinsspezifische Einheit. Eine Abhängigkeit vom gewählten Standort ist noch nicht zwangsläufig gegeben. So können gleiche Abfallgebinde durchaus an verschiedenen Standorten mit vergleichbarem Wirtsgestein eingelagert werden.

Die Kenntnis des Abfallgebundes stellt eine Randbedingung für den Langzeitsicherheitsnachweis dar. Wie das Abfallgebinde in den Sicherheitsnachweis eingeht, hängt jedoch von den wirtsgesteinsspezifischen Randbedingungen ab und kann auch von den standortspezifischen Randbedingungen abhängen. Darauf wird jedoch an anderer Stelle in Kapitel 2.7.1 und 2.7.2 nochmals eingegangen.

2.5 Methodische Vorgaben hinsichtlich potentieller Endlagerentwicklungen

International wird von der ICRP empfohlen /2-17/ die gestörte und die ungestörte Entwicklung des Endlagers unterschiedlich an Hand von Dosis- bzw. Risikokriterien zu bewerten. Dabei gilt, dass für Freisetzungen aus einem Endlager in Folge von „allmählichen“ (stetigen) Prozessen die erwartete Jahresdosis für Personen der kritischen Gruppe geringer sein soll als ein oberer Dosisrichtwert. Dieser Dosisrichtwert wird von den nationalen Behörden orientiert an den individuellen Grenzwerten festgelegt, welcher gegenwärtig einer mittleren jährlichen Dosis von 1 mSV bei länger anhaltender Exposition entspricht (Prinzip 5). Das Sicherheitsniveau eines Endlagers für hochradioaktive Abfälle soll derart sein, dass das vom Endlager ausgehende, vorhergesagte Risiko eines Gesundheitsschadens in einem Jahr für eine Person der kritischen Gruppe in Folge von zerstörerischen (unstetigen) Prozessen, die nicht vom Prinzip 5 erfasst sind, geringer ist, als ein oberer Risikorichtwert, der von den nationalen Behörden orientiert an dem individuellen Risikogrenzwert für Gesundheitsschäden von Eins in Hunderttausend pro Jahr ($10^{-5}/a$) zugeteilt wird. (Prinzip 6).

Derzeit erfolgt für die ungestörte Entwicklung (Normalentwicklung, Referenzfall) des Endlagers der Sicherheitsnachweis auf Grundlage dosisbezogener Grenz- bzw. Richtwerte. Für die gestörte Endlagerentwicklung gelten in einigen Ländern risikobezogene Grenz- bzw. Richtwerte, in anderen erfolgt auch die Bewertung der

gestörten Entwicklung an Hand von Dosisgrenz- bzw. Richtwerten. Letzteres gilt auch in Deutschland /2-16/.

Aus den methodischen Vorgaben hinsichtlich der ungestörten und der gestörten Endlagerentwicklung ergibt sich die Fragestellung, welche FEP und daraus resultierende Szenarien der ungestörten Entwicklung und welche der gestörten Entwicklung eines Endlagers zuzuordnen sind bzw. welche gar nicht mehr zu betrachten sind, da ihr Eintreten hinreichend unwahrscheinlich ist, z.B. $\leq 10^{-8}/a$. Diese Zuordnung hängt wesentlich vom zu betrachtenden Nachweiszeitraum ab, da FEPs und sich daraus ergebende Szenarien, die im Nachweiszeitraum zu erwarten sind, im Rahmen der ungestörten Entwicklung zu behandeln sind.

Daraus ergibt sich, dass aus methodischen Gründen der zu betrachtende Nachweiszeitraum indirekt eine entscheidende Größe zur Definition der Randbedingungen für den Langzeitsicherheitsnachweis darstellt.

2.6 Standortspezifische Grundlagen für den Langzeitsicherheitsnachweis

Im folgenden sind notwendige, standortspezifische Grundlagen angegeben, die unabhängig vom gewählten Wirtsgestein für den Langzeitsicherheitsnachweis bekannt sein müssen. Wie sie in den Langzeitsicherheitsnachweis eingehen und ob komplexe oder einfache Modelle ausreichend sind, wird an dieser Stelle noch nicht entschieden, da dies wiederum vom gewählten Wirtsgestein und vom technischen Endlagerkonzept abhängt sowie von der bereits angesprochenen Kopplung zwischen Endlagersystem und Grundwasserfluss. Im vorliegenden Fall des Vergleiches von Endlagerkonzepten im Salz und Ton ist der Begriff Wirtsgestein identisch mit dem einschlusswirksamen Gebirgsbereich /2-21/.

Ein wesentlicher Unterschied der beiden Wirtsgesteine besteht darin, dass im Salz von einem trockenen Endlager und vom vollständigen dichten Einschluss der radioaktiven Abfälle ausgegangen wird, während im Ton immer von einem feuchten Endlager und einer Freisetzung von Radionukliden ausgegangen wird, wenn auch erst nach langen Zeiträumen des Radionuklidtransportes.

2.6.1 Geologisches Modell

Die Kenntnis der Geologie des Standortes einschließlich des Wirtsgesteins und der als Barriere wirkenden geologischen Einheiten ist Voraussetzung für die Endlagerplanung und damit auch für den Langzeitsicherheitsnachweis. Dies gilt unabhängig vom gewählten Wirtsgestein. Dabei ist es nicht ausreichend, die verschiedenen stratigraphischen Einheiten hinsichtlich ihrer geometrischen Eigenschaften und ihrer Entstehungsgeschichte zu erfassen, sondern es müssen ihnen für den Langzeitsicherheits-

nachweis auch ingenieurgeologisch quantitative Eigenschaften in Form von Homogenbereichen zugeordnet werden. Dies betrifft insbesondere die Eigenschaften, die direkt oder indirekt die Barrierewirksamkeit betreffen, wie z. B. die Permeabilität bzw. die Zunahme der Permeabilität in Folge von Festigkeitsverlust. Die Eigenschaften der geologischen Barriere gehen als wesentliche Größe in den Langzeitsicherheitsnachweis ein. Dabei ist die zukünftige Entwicklung der geologischen Barriere auf Grundlage einer geologischen Langzeitprognose im Langzeitsicherheitsnachweis ebenfalls zu berücksichtigen.

2.6.1.1 Wirtsgestein Salz

Die Erstellung von Lagerstättenmodellen für Salzlagerstätten ist auf Grund der großen bergbaulichen Erfahrung im Salzbergbau Stand der Technik. Die Lagerstättenmodelle enthalten nicht nur Angaben zur räumlichen Lage von Salzspiegel, den Salzstockflanken und zur Salzstockbasis sondern auch zu den stratigraphischen Einheiten, wobei Im Hinblick auf die Endlagerung radioaktiver Abfälle und der Langzeitsicherheit und auch der Betriebssicherheit die Unterscheidung folgender stratigrafischer Einheiten wesentlich ist:

- Steinsalz
- Kalisalz
- Anhydrit
- Salzton

Da ungestörtes Salz impermeabel und rissfrei ist und die Entstehung von Rissen von Spannungen bzw. Verformungen abhängt, ist die ingenieurgeologische Festlegung von Homogenbereichen mit der Zuordnung zu Kriechgesetzen und Kriechklassen, die das Spannungs-Verformungsverhalten beschreiben, wesentlich. Die Zuordnung und Zusammenfassung der o.g. stratigrafischen Einheiten zur ingenieurgeologischen Homogenbereichen, die durch Kriechgesetze und Kriechklassen charakterisiert sind, wurde im Falle des Endlagers für schwach und mittelradioaktive Abfälle (ERAM) durchgeführt und ist Stand der Technik /2-22/.

Das Kriechverhalten des Salzes hängt wesentlich von der Temperatur ab. Eine Zunahme der Permeabilität des Salzes erfolgt erst nach Überschreitung der Dilatanzgrenze, wobei konservativ die Dilatanzgrenze, die die Mikrorissgrenze beschreibt, herangezogen wird. Da für die geologische Barriere eine Zunahme der Permeabilität ausgeschlossen werden soll, ist im Fall des Salzes der geotechnische Nachweis zur Integrität der geologischen Barriere konzeptführend /2-23/. Der Nachweis der Wirksamkeit der geologischen Barriere wird deterministisch mit Hilfe geomechanischer Modellberechnungen unter Einbeziehung der Temperatur geführt /2-22/, /2-24/, /2-25/, /2-26/.

Im Rahmen der geomechanischen Modellberechnungen wird der zeitliche Verlauf der Hebung bzw. Senkung der Tagesoberfläche direkt ermittelt und damit eine quantitative Sicherheitsaussage bzgl. dieses Schutzziels vorgenommen. Hinsichtlich der Transportmodellierungen zur Radionuklidfreisetzung stellt eine wirksame Salzbarriere eine impermeable Modellgrenze in den Transportberechnungen dar und ist somit eine wesentliche Randbedingung für den Langzeitsicherheitsnachweis. Unter dem Aspekt des Langzeitsicherheitsnachweises wird deshalb der Bereich innerhalb des Salzstocks dem Endlagernahfeld bzw. dem einschlusswirksamen Gebirgsbereich zugeordnet.

2.6.1.2 Wirtsgestein Ton

Lagerstättenmodelle mit vergleichbarem Detaillierungsgrad wie im Wirtsgestein Salz sind nicht verfügbar, da die Notwendigkeit Ton in größeren Teufenlagen bergbaulich zu gewinnen, gering ist. Des Weiteren weist Ton eine höhere Vielfalt auf, was die Erstellung von Lagerstättenmodellen erschwert, da die Übertragung von Erfahrungen von einer Lagerstätte auf die andere mit deutlich höheren Schwierigkeiten verbunden ist.

Die Zuordnung stratigrafischer Einheiten zu Homogenbereichen ist derzeit Gegenstand der Forschung. Kriterien zur Bestimmung von Homogenbereichen sind nur eingeschränkt vorhanden, wie z. B. die Bestimmung von Homogenbereichen gleicher hydraulischer Leitfähigkeit. Eine solche Zusammenfassung erfolgte im Rahmen der Sicherheitsbewertung des Endlagers Konrad für schwach und mittelradioaktive Abfälle unter der Randbedingung, dass auf Grund der Lage des Endlagers unterhalb der Tonbarriere und der vernachlässigbaren Wärmeentwicklung der schwach- und mittelradioaktiven Abfälle kein Einfluss des Endlagers auf die hydraulische Leitfähigkeit vorhanden ist und die Wirksamkeit der geologischen Barriere nicht beeinträchtigt wird /2-27/. Abweichend davon ist für ein HAW/BE Endlager, das sich im Wirtsgestein Ton befindet, das THMC-Verhalten des Wirtsgesteins quantitativ zu beschreiben und Homogenbereiche abzuleiten. Das THMC-(Thermisch, Hydraulisch, Mechanisch- Chemisch) Verhalten von Ton ist derzeit Gegenstand intensiver Forschung in den Untertagelaboratorien Mont Terri (Schweiz), Bure (Frankreich) und Mol (Belgien). Es wird jedoch davon ausgegangen, dass im Falle des Wirtsgesteins Ton eine Entkopplung des Einlagebereiches vom Grundwasserfluss stattfindet. Das Wirtsgestein Ton wird deshalb analog zum Wirtsgestein Salz dem Endlagernahfeld bzw. dem einschlusswirksamen Gebirgsbereich zugeordnet.

2.6.2 Hydrogeologisches Modell

Die Kenntnis der Hydrogeologie des Standortes ist Voraussetzung für den Langzeitsicherheitsnachweis, da sie ebenfalls für die Ableitung von Randbedingungen für den Langzeitsicherheitsnachweis verwendet wird. Dies gilt unabhängig vom gewählten

Wirtsgestein. Dabei ist es nicht ausreichend, die Grenzen des Untersuchungsgebietes z. B. durch Verwendung von Wasserscheiden festzulegen, und die verschiedenen stratigraphischen Einheiten hinsichtlich ihrer geometrischen Eigenschaften und ihrer Gesteinsausbildung zu beschreiben, sondern auch ihnen müssen wieder quantifizierbare Eigenschaften in Form von Homogenbereichen zugeordnet werden. Dies betrifft insbesondere Eigenschaften, die direkt oder indirekt den potentiellen Radionuklidtransport und Schadstofftransport betreffen, wie die Durchlässigkeit (hydraulische Leitfähigkeit) und die (effektive) Porosität. Die Ableitung von hydrogeologischen Modellen ist Stand der Technik.

Für den Standort wird ein hydrogeologisches Modell erstellt, das die im folgenden ausgeführten, wesentlichen Angaben enthält. Die Lage der Modellränder des hydrogeologischen Modells muss bestimmt sein sowie die hydrogeologischen Einheiten des Modellgebietes. Die hydrogeologischen Einheiten werden mit Hilfe der Beschreibung der wesentlichen geologischen Schichten und ihrer Gesteinsausbildung aus den stratigraphischen Einheiten abgeleitet, indem angrenzende stratigrafische Einheiten mit gleicher Durchlässigkeit zu einem hydrogeologischen Homogenbereich zusammengefasst, oder gleiche stratigrafische Einheiten unterschiedlicher Gesteinsausbildung in verschiedene hydrogeologische Homogenbereiche aufgeteilt werden. Es erfolgt eine Einteilung in Grundwasserleiter und Grundwasserstauer, die nicht nur auf lokalen Messwerten beruht, sondern auch Durchlässigkeitskontraste in der Bewertung berücksichtigt. Abschließend wird ein numerisches Modell entwickelt, das mittels Modellrechnungen zur Grundwasserbewegung an Hand aller vorliegenden, zuverlässigen Daten kalibriert wird und für das Sensitivitätsbetrachtungen durchgeführt werden. Damit werden Ein- und Ausstrom aus dem Modellgebiet erfasst, sowie z. B. auch eine potentielle Grundwasserneubildung /2-28/.

Das hydrogeologische Modell im Deckgebirge wird dem Fernfeld zugeordnet. Es dient zur Bestimmung potentieller Freisetzungen von Radionukliden in die Biosphäre sowie zur Bestimmung von potentiellen Schadstoffkonzentrationen im oberflächennahen Grundwasser. Dabei spielen auf Grund des radioaktiven Zerfalls Grundwassertransportgeschwindigkeiten bzw. Verweilzeiten von Radionukliden eine wichtige Rolle.

Auch für die Ableitung von potentiellen Zuflussszenarien in das Nahfeld des Endlagers spielt die Lieferfähigkeit des Deck- und Nebengebirges für Wasser eine wesentliche Rolle.

Es sollte jedoch beachtet werden, dass das hydrogeologische Modell insbesondere für die Endlagerwirtsgesteine Salz und Ton in seiner Gültigkeit auf Grund der zu betrachtenden Freisetzungszeiträume aus diesen Wirtsgesteinen eingeschränkt ist, da es sich auf die heute vorhandene hydrogeologische Situation bezieht. Nachstehend sind weitere Erläuterungen dazu gegeben.

2.6.2.1 Wirtsgestein Salz

Im Wirtsgestein Salz wird der sichere Einschluss der radioaktiven Abfälle als ungestörte Entwicklung betrachtet, d.h. es kommt zu keiner Freisetzung von Radionukliden aus dem Endlagersystem. Dementsprechend ist für diese Entwicklung das hydrogeologische System im Detail ohne Bedeutung. Durch die Integrität der Salzbarriere und die Dichtwirkung zusätzlicher, geotechnischer Barrieren, insbesondere des Schachtverschlusses, ist das Endlagernahfeld vom Fernfeld entkoppelt.

Im Rahmen der gestörten Endlagerentwicklung wird im Falle des Wirtsgesteins Salz der Transport von Radionukliden in die Biosphäre betrachtet. Das hydrogeologische Modell spielt in diesem Fall eine Rolle bei der Ermittlung von potentieller Zuflussszenarien, z. B. Zuflusspfad, Zuflussmenge, Zuflussgeschwindigkeit sowie bei der Bestimmung der Freisetzungspfade und Transportzeiten in die Biosphäre. Auch die Verdünnung von mit Radionukliden kontaminierten gesättigten Salzlösungen im Deck- und Nebengebirge wird betrachtet.

Da eine Freisetzung in der Regel auch bei gestörter Endlagerentwicklung erst zu einem späten Zeitpunkt erfolgt, ist die Gültigkeit des hydrogeologischen Modells nicht gesichert, vgl. Kapitel 2.2.2 und Abbildung 2-1. Dennoch wird in der Regel das heutige hydrogeologische Modell als Referenzfall im Langzeitsicherheitsnachweis angesetzt. Da es aber nur im Sinne einer stylized situation zu bewerten ist, ist die Einführung der in Kapitel 2.3.3 benannten Sicherheitsindikatoren, die auf eine Detaillierung des hydrogeologischen Systems verzichten, durchaus diskussionswürdig.

2.6.2.2 Wirtsgestein Ton

Im Wirtsgestein Ton wird der diffusive Transport von Radionukliden als ungestörte Entwicklung betrachtet, d.h. es kommt erst zu einem sehr späten Zeitpunkt zur Freisetzung von Radionukliden aus dem Endlagersystem/Nahfeld. Dementsprechend ist für diese Entwicklung das derzeit vorhandene hydrogeologische System im Detail ohne Bedeutung. Durch den langsamen, diffusiven Transport von Radionukliden und konventionellen Schadstoffen in Folge der Integrität und der geochemisch bedingten Rückhalteeigenschaften der Tonbarriere und der Dichtwirkung zusätzlicher, geotechnischer Barrieren, ist das Endlagernahfeld vom Fernfeld entkoppelt.

Im Rahmen der gestörten Endlagerentwicklung wird in der Regel zusätzlich auch der advective Transport von Radionukliden durch Deck- und Nebengebirge in die Biosphäre betrachtet.

Allerdings erfolgt auch im Falle von Tonformationen eine Freisetzung in der Regel als Folge einer gestörten Endlagerentwicklung erst zu einem späten Zeitpunkt. Damit ist die Gültigkeit des hydrogeologischen Modells nicht gesichert, vgl. Kapitel 2.2.2 und

Abbildung 2-1, und nur als Referenzfall im Sinne einer stylized situation zu bewerten. Deshalb ist die Einführung der in Kapitel 2.3.3 benannten zusätzlichen Sicherheitsindikatoren im Falle des Wirtsgesteins Ton diskussionswürdig.

Bemerkung: Im Falle des genehmigten Endlagers Konrad, das sich allerdings nicht innerhalb sondern unterhalb einer Tonformation befindet, werden im Rahmen der ungestörten Entwicklung zwei Modelle betrachtet. Ein Modell beinhaltet den Transport durch die Tonbarriere und ist dem o. g. diffusiven Modell äquivalent, obwohl es konservativ als advektiver Transport behandelt wird. Ein weiteres Modell ist das Störzonenmodell, in dem auch Zonen erhöhter Durchlässigkeit, z. B. an tektonischen Störungen betrachtet werden, die von weit her unterhalb die Tonbarriere führen. Auf Grund des langen Transportweges und der geringen Transportgeschwindigkeiten führt auch das Störzonenmodell zu sehr langen Freisetzungszeiträumen mit Grundwasserlaufzeiten > 100.000 Jahre. In diesem Fall ist das hydrogeologische Modell von hoher Bedeutung für den Langzeitsicherheitsnachweis, da die potentielle Freisetzung von Radionukliden nicht nur durch die Tonbarriere erfolgt, sondern auch durch die großräumigen Störzonen. In diesem Fall behält das hydrogeologische System auf Grund der standortspezifischen Besonderheiten (z.B. die Teufenlage des Endlagers) auch langfristig seine Gültigkeit.

2.7 Technisches Endlagerkonzept

Vor der Planung eines Endlagers an einem konkreten Standort erfolgt die Untersuchung verschiedener technischer Endlagerkonzepte an generischen Standorten in vergleichbarem/ähnlichem Wirtsgestein /2-29/, /2-30/. Die Planung erfolgt in Form von Modulen, die später flexibel an die real vorgefundene Standortsituation angepasst werden können. In einem weiteren Schritt erfolgt der Test einzelner Komponenten, insbesondere auch von geotechnischen Barrieren, meistens standortunabhängig in Untertagelabors. So wurden Untersuchungen zur Endlagerung von HAW und BE im Salz im Forschungsbergwerk Asse durchgeführt, Untersuchungen zur Endlagerung von radioaktiven Abfällen im Opalinuston werden im Untertagelabor Mont Terri und zur Endlagerung im plastischen Ton (Boom Clay) im Untertagelabor Hades vorgenommen. Aus den bisherigen Untersuchungen zu Endlagerkonzepten und aus den Ergebnissen der bisher vorgenommenen Demonstrationsversuche ergeben sich wichtige Randbedingungen für den Langzeitsicherheitsnachweis. Wesentliche Unterschiede zwischen den Wirtsgesteinen Salz und Ton sind im Folgenden gegeben.

2.7.1 Salz

Salz ist bei ungestörter Entwicklung und in der Betriebsphase trocken.

Anforderungen an das Abfallgebinde ergeben sich aus der Handhabung der Gebinde in der Betriebsphase, den Anforderungen an den Strahlenschutz und der Kritikalitätssicherheit. Das Inventar der Abfallgebinde ist durch die Erfordernisse der Einhaltung von wirtgesteinsspezifischen Temperaturgrenzen beschränkt. Die Abfallgebindedaten (Inventar und Verpackung) sowie die Temperaturentwicklung im Endlager sind Eingangsgrößen für den Langzeitsicherheitsnachweis.

Bergbau im Salz ist ohne Ausbau möglich, dementsprechend braucht ein Ausbau im Langzeitsicherheitsnachweis im Sinne eines *pre-closure process* auch nicht berücksichtigt werden.

Durch die Zugänge in das Endlager werden planmäßig Wegsamkeiten hergestellt, die später wieder verschlossen werden müssen. Eine wesentliche Wegsamkeit stellt die Auflockerungszone im Salz dar, die als *pre-closure process* im Langzeitsicherheitsnachweis berücksichtigt werden muss. Dabei ist im Falle des Salzes nur eine mechanisch-hydraulische Veränderung der Auflockerungszone in Folge der Bergbautätigkeit zu berücksichtigen.

Das Endlager wird mittels geotechnischer Barrieren verschlossen. Diese werden unter Berücksichtigung ihrer technischen Realisierbarkeit und Nachweisbarkeit entsprechend den Anforderungen des Langzeitsicherheitsnachweises ausgelegt, mit dem Ziel Dichtigkeit herzustellen und den sicheren Einschluss der radioaktiven Abfälle sicherzustellen.

2.7.2 Ton

Ton wird auch bei ungestörter Entwicklung als feucht angenommen.

Daraus ergibt sich zusätzlich zu den Anforderungen an die Abfallgebinde, die für das Salz gelten, die Anforderung der Dichtheit der Behälter gegen Feuchtigkeit, um in der thermischen Phase des weitgehenden Zerfalls der Spaltprodukte die Bildung von Radiolysegas zu begrenzen. Die Abfallgebindedaten (Inventar und Verpackung) sowie die Temperaturentwicklung im Endlager sind auch im Falle eines Endlagers im Ton Eingangsgrößen für den Langzeitsicherheitsnachweis.

Bergbau im Ton ist in der Regel nicht ohne Ausbau möglich, insbesondere bei Berücksichtigung der Wetterfeuchte. Dementsprechend muss ein Ausbau im Langzeitsicherheitsnachweis ggf. im Sinne eines *pre-closure process* berücksichtigt zu werden.

Durch die Zugänge in das Endlager werden planmäßig Wegsamkeiten hergestellt, die später wieder verschlossen werden müssen. Eine wesentliche Wegsamkeit stellt die Auflockerungszone dar, die als *pre-closure process* im Langzeitsicherheitsnachweis berücksichtigt werden muss. Dabei ist im Falle des Tons eine mechanisch-hydraulische sowie eine mögliche geochemische Veränderung der Auflockerungszone z. B. in Folge von Oxidationsprozessen zu berücksichtigen.

Wie im Falle des Salzes wird das Endlager mittels geotechnischer Barrieren verschlossen. Diese werden unter Berücksichtigung ihrer technischen Realisierbarkeit und Nachweisbarkeit entsprechend den Anforderungen des Langzeitsicherheitsnachweises ausgelegt, mit dem Ziel, eine dem Wirtgestein Ton vergleichbare Barrierenwirkung zu erreichen.

2.8 Szenarienanalyse

Unter Szenarien werden die verschiedenen, zukünftigen Entwicklungsmöglichkeiten eines Endlagersystems verstanden.

Man unterscheidet folgende Szenariengruppen, Extraterrestrische Szenarien wie z. B. Meteoriteneinschlag, Klima-Szenarien, geologische Szenarien, hydrogeologische Szenarien, Bergbau-Szenarien und Szenarien auf Grund menschlicher Einwirkungen. Klima-Szenarien haben meistens globalen Charakter, geologische Szenarien sind regional durch den Standort dominiert, Bergbau-Szenarien durch die Lagerstätte und das technische Endlagerkonzept. Szenarien auf Grund menschlicher Einwirkungen können nicht ausgeschlossen werden, jedoch ist langfristig auch keine Prognostizierbarkeit gegeben. Sie werden deshalb regulativ vorgegeben.

Auf Basis der geologischen sowie der hydrogeologischen Standortdaten und der geologischen Langzeitprognose und des technischen Endlagerkonzeptes einschließlich der Verfüll- und Verschleißmaßnahmen wird eine standortspezifische Szenarienanalyse durchgeführt, um die konkreten Randbedingungen für den Langzeitsicherheitsnachweis zu präzisieren.

Es gibt Szenarien, die der ungestörten Entwicklung zuzuordnen sind, andere sind mit der gestörten Endlagerentwicklung verknüpft, wobei oft die Begrifflichkeiten Normalentwicklung (Referenzszenario) und alternative Entwicklungen gewählt werden. Eine Klassifizierung der alternativen Entwicklungen und der zugehörigen Szenarien im Hinblick auf die ungestörte oder gestörte Endlagerentwicklung ist bisher nicht verfügbar.

2.8.1 Salz

Da im Salz der dichte Einschluss das Ziel ist, sind alle Szenarien, die in der Konsequenz zu einer Freisetzung von Radionukliden in die Biosphäre führen, nach heutigem Kenntnisstand der gestörten Entwicklung zuzuordnen, auch wenn die Individualdosis unter dem Wert von 0,3 mSv pro Jahr bleibt. Die Einhaltung eines solch geringen Wertes im Falle der gestörten Entwicklung würde für die Robustheit des Systems sprechen und ist im Sinne einer Risikobetrachtung nicht zwingend.

2.8.1.1 Relevante Randbedingungen für die Entwicklung und Klassifizierung von Szenarien

Kriterien, deren Einhaltung die Integrität der geologischen Barriere gewährleisten, sind für das Endlagermedium Salz Stand der Technik und kommen im Fall der Stilllegung des Endlagers Morsleben z. B. für die Einlagerungsbereiche zur Anwendung /2-9/, /2-22/, /2-31/. Sie sind auch für den Nachweis der Sicherheit von Untertagedeponien anwendbar /2-32/. Bei Einhaltung dieser Kriterien kann ausgeschlossen werden, dass bergbauinduziert durch das Endlager Wegsamkeiten entstehen. Die Einhaltung der Kriterien ist im Rahmen der Endlagerplanung zu gewährleisten, so dass Wegsamkeiten, mit Ausnahme derer, die zum Betrieb des Endlagers erforderlich sind, vermieden werden. Z. B. werden potentielle Zutrittspfade über den Hauptanhydrit oder Kalilager durch Einhaltung von Sicherheitsabständen und eine geeignete Teufenlage des Endlagers verhindert /2-9/, /2-26/. Die theoretisch abgeleiteten Kriterien decken sich mit der empirischen Erfahrung aus dem Salzbergbau. So sind im bergrechtlichen Regelwerk /2-33/ Sicherheitsabstände festgelegt, die in der gleichen Größenordnung liegen, wie die theoretisch ermittelten Werte.

Für das Wirtgestein Salz ist bei der Bewertung der Barrierenintegrität auch der Einfluss der Subrosion (Ablaugung des Salzstocks) als wirtsgesteinsspezifische Besonderheit zu berücksichtigen.

Um den sicheren Einschluss der radioaktiven Abfälle im Salz auch durch die geotechnischen Barrierensysteme Schachtverschluss und Salzgrusversatz sicherzustellen wurden umfangreiche wissenschaftliche Untersuchungen durchgeführt /2-34/, /2-35/, /2-36/. Obwohl der abschließende ingenieurtechnische Nachweis noch aussteht, kann nach derzeitigem Stand des Wissens davon ausgegangen werden, dass der sichere Einschluss auch durch die geotechnischen Barrieren gegeben ist.

Bei intakten Barrieren wird in einem HAW/BE Endlager im Salz Gasbildung weitgehend vermieden, da Salz mit Ausnahme selten auftretender, kleiner, nicht detektierbarer Laugeneinschlüsse, trocken ist. In diesem Fall kommt es auch nicht zur Bildung relevanter Gasmengen in Folge Korrosion. Auch die Menge von Radiolysegas ist auf Grund der geringen Salzfeuchte klein und kann durch eine entsprechende Auslegung

der Behälter in Bezug auf ihre Abschirmwirkung während der thermischen Phase minimiert werden.

2.8.2 Ton

Da im Ton die langfristige Rückhaltung der Radionuklide das Ziel ist, sind alle Szenarien, die zu einer frühzeitigeren und höheren Freisetzung von Radionukliden in die Biosphäre führen, der gestörten Entwicklung zuzuordnen, auch wenn die Individualdosis unter dem Wert von 0,3 mSv pro Jahr bleibt. Die Einhaltung eines solch geringen Wertes im Falle der gestörten Entwicklung würde für die Robustheit des Systems sprechen und ist im Sinne einer Risikobetrachtung nicht zwingend.

2.8.2.1 Relevante Randbedingungen für die Entwicklung und Klassifizierung von Szenarien

Die Intaktheit der geologischen Barriere wird auch im Falle eines Endlagers im Ton unterstellt. Quantitative Kriterien zum Nachweis der Eigenschaften der geologischen Tonbarriere sind derzeit Gegenstand der Forschung.

Auch bei intakten Barrieren ist Ton feucht. Korrosionsgas fällt deshalb während des gesamten Zeitraums der Behälterkorrosion an. Dieser Sachverhalt ist im Rahmen des Langzeitsicherheitsnachweises zu bewerten. Die Entstehung von Radiolysegas wird durch die Anforderung der Wasserdichtigkeit an die Behälter, vgl. Kapitel 2.7.2, während der thermischen Phase minimiert.

2.9 Zusammenfassung zu den standortspezifischen Randbedingungen, dem technischen Endlagerkonzept und der Szenarienanalyse

Endlagerkonzepte in Salz und Ton weisen hinsichtlich der Langzeitsicherheit eine vergleichbare Sicherheitstrategie auf. Die Endlagerkonzepte basieren im Unterschied z. B. zu Endlagerkonzepten im Granit auf einer langfristig einschlusswirksamen geologischen Barriere.

Hinsichtlich des Transportes von Radionukliden und sonstigen Schadstoffen außerhalb des einschlusswirksamen Gebirgsbereiches sind Endlagerkonzepte im Salz und Ton methodisch in gleicher Weise zu behandeln. Sie werden an Hand von Modellrechnungen zur Grundwasserbewegung bewertet. Dominant für die Grundwasserbewegung sind dabei standortspezifische Unterschiede, die wirtsgesteinsspezifischen Unterschiede sind von geringerer Bedeutung.

Im Falle des Wirtsgesteins Salz findet zwangsläufig eine maßgebliche Verdünnung der radionuklidbelasteten Salzlösung statt, da diese bei Austritt aus dem Salzstock als gesättigte Salzlösung vorliegt. Gesättigte Salzlösungen werden von der Biosphäre unverdünnt nicht aufgenommen.

Bzgl. der Ausbreitung von Radionukliden in der Biosphäre ergeben sich keine Unterschiede für Endlagerkonzepte im Salz und Ton, da Biosphärenmodelle auf Grundlage der Nutzung von Wasser und Boden sowie Verzehrgewohnheiten regulativ festgelegt sind.

Die wesentlichen Unterschiede der Wirtsgesteine Salz und Ton beziehen sich auf das Nahfeld. Diesen unterschiedlichen Bedingungen wird durch entsprechend angepasste technische Endlagerkonzepte Rechnung getragen, so dass für beide Wirtsgesteine langfristig ein hinreichendes Sicherheitsniveau erreicht werden kann. Der Langzeitsicherheitsnachweis muss diese Unterschiede abbilden, wobei der derzeitige wissenschaftlich/technische Kenntnisstand im Ton deutlich weniger weit fortgeschritten ist als im Salz.

3 Vergleich der Kritikalitätssicherheit in der Nachbetriebsphase

Die Frage bezüglich einer Kritikalität muss in allen Sicherheitsanalysen für geologische Endlager behandelt werden /3-1/, /3-2/, /3-3/, /3-4/. Während des Betriebs eines Endlagers kann das Auftreten einer Kritikalität durch Einhaltung der Endlagerungsbedingungen (z. B. Begrenzung der Kernbrennstoffmenge in den Behältern etc.) ausgeschlossen werden. Die Frage der Kritikalität im Zusammenhang mit langfristigen Vorgängen in einem Endlager mit angereichertem Uran wurde in der Literatur ausführlich untersucht. Für die Endlagerung von MOX und UO₂ Kernbrennstoffen im Wirtsgestein Steinsalz wurden im Forschungszentrum Karlsruhe Arbeiten durchgeführt und die Ergebnisse publiziert /3-5/, /3-6/.

3.1 Methodik zur Bewertung der Kritikalitätssicherheit

Kritikalitätsrechnungen (k_{eff} bzw. k_{inf}) für die Nachbetriebsphase werden nicht durchgeführt, sondern ausgehend von publizierten Daten (z.B. Handbuch zur Kritikalität /3-5/, /3-6/, /3-7/) wurden die kritikalitätsrelevanten Größen festgestellt und ihre Veränderung im Salz- bzw. Ton-System bewertet.

3.1.1 Definitionen

Kritikalitäts-relevante Größen im Sinne dieser Studie zum Vergleich der Kritikalitätssicherheit in der Nachbetriebsphase bei der Endlagerung in Salz und Ton, erstrecken sich hauptsächlich auf die Eigenschaften des jeweils vorliegenden Stoffinventars bezüglich ihrer Wechselwirkungen mit Neutronen. Die Wechselwirkungen der Stoffe mit Neutronen beinhalten die Neutronenabsorptions-, die Neutronenmoderations- und die Neutronenreflexionseigenschaften.

Bei einer Spontanspaltung von höheren Actinidenelementen entstehen 2 bis 3 Neutronen im Energiebereich von einigen MeV. Diese energiereichen Neutronen zeigen kaum Wechselwirkungen mit der umgebenden Materie. Durch Stöße mit leichten Atomkernen wie z. B. Wasserstoffkernen, verlieren die Neutronen Energie und gelangen in Energiebereiche, in denen eine höhere Wahrscheinlichkeit existiert mit anderen Atomkernen zu reagieren. Der Energiebereich, in dem eine große Wahrscheinlichkeit des Einfangs und nachfolgender Spaltung bei ²³⁵U und ²³⁹Pu Kernbrennstoffen besteht, liegt bei 0.025 eV, d.h. bei thermischer Energie (bei 20°C). Treffen die Neutronen dann auf spaltbare Atomkerne, können diese wieder gespalten und neue Neutronen erzeugt werden. Werden mindestens so viele Kerne gespalten, dass die Anzahl von Neutronen konstant bleibt, spricht man von einer selbsterhaltenden Kettenreaktion bzw. Kritikalität.

Die Wahrscheinlichkeit der Wechselwirkung eines einzelnen Neutrons mit Materie ergibt sich aus dem Verhältnis der Zielfläche zur Gesamtfläche. Die Zielfläche ist gegeben durch die Anzahl von Atomen pro Flächeneinheit multipliziert mit einem Wirkungsquerschnitt, der für die verschiedenen Elemente und ihre jeweiligen Isotope unterschiedlich ist. Wirkungsquerschnitte werden in Flächeneinheiten angegeben, wobei die Dimension 1 barn = $1 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ ist. Wirkungsquerschnitte σ werden getrennt für verschiedene Neutronenwechselwirkungen bestimmt, i. A. werden mikroskopische Wirkungsquerschnitte für Absorption σ_a , Streuung σ_s und Spaltung σ_f tabelliert. Diese Wirkungsquerschnitte sind abhängig von der Neutronenenergie. Eine schematische Darstellung der Wechselwirkungen ist in Abbildung 3-1 gezeigt. Folgende Angaben zur Anzahl benötigter Stöße um Neutronen auf thermische Energien zu moderieren (Wasserstoff: 18, Sauerstoff: 152, Uran: 2167) finden sich in der entsprechenden Literatur [3-8]. Diese Angaben zeigen, dass bereits wenig Wasserstoffatome (Wasser) in der Umgebung des Kernbrennstoffs ausreichen um die Neutronen auf thermische Energien zu moderieren. Da in der Nachbetriebsphase eines Endlagers, eine Veränderung des Kernbrennstoffs oder seiner Umgebung bezüglich der Neutronenwechselwirkungen dann und nur dann auftreten kann, wenn wässrige Lösungen vorhanden sind, werden die Neutronen durch Stöße mit Wasserstoffkernen gebremst. Daher sind für die folgenden Betrachtungen nur die thermischen Wechselwirkungen relevant.

Folgende Definitionen werden für den Vergleich der kritikalitätsrelevante Größen bei der Endlagerung in Salz und Ton verwendet:

Neutronenabsorption Bei der Absorption von Neutronen in einem Atomkern ändert sich dessen Massenzahl, das Neutron verschwindet. I.A. wird dabei Energie in Form von β - oder γ -Strahlung frei. Charakteristische Größen zur Bewertung der Absorption sind die mikroskopischen Adsorptionsquerschnitte σ_a und die Anzahl der entsprechenden Atomkerne N_i (cm^{-3}). Der makroskopische Adsorptionsquerschnitt Σ_a beträgt

$$\Sigma_a = \sum_i \sigma_{a_i} \cdot N_i \quad (3.1)$$

N_i ergibt sich aus der Dichte ρ und der Anzahl der Mole M des Elements im absorbierenden Stoff ($N_0 = 6.022 \times 10^{23}$ Avogadro Zahl).

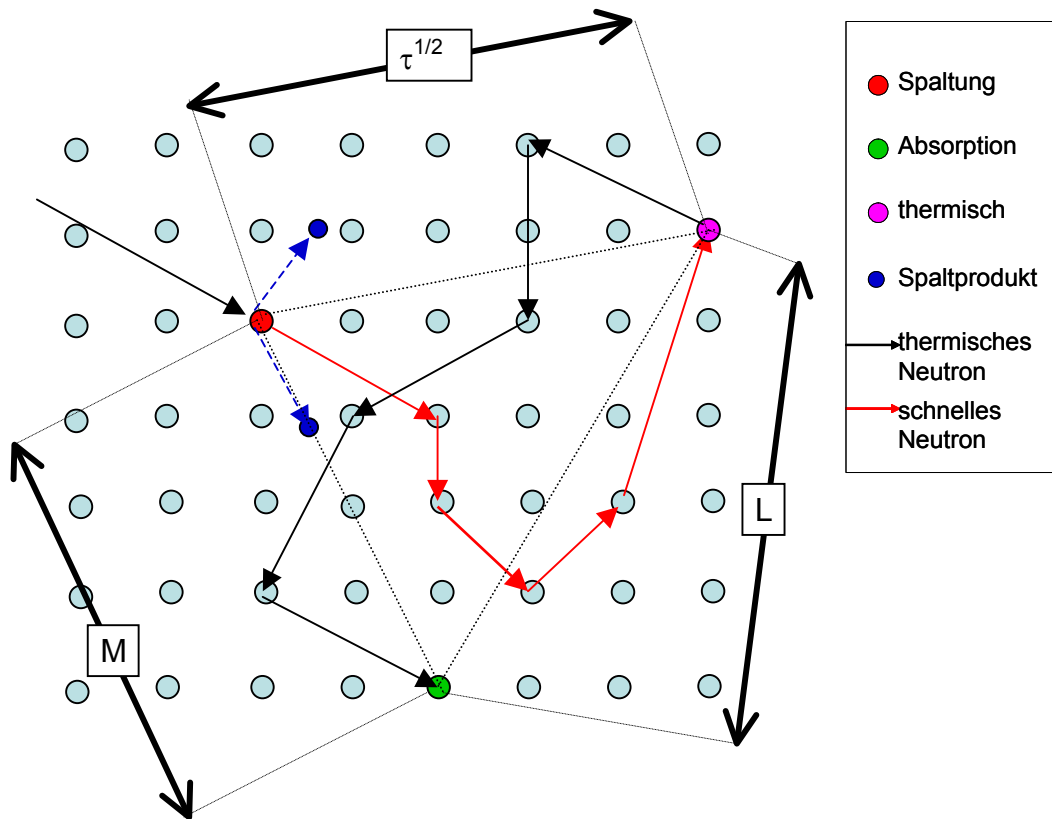


Abbildung 3-1: Schematische Darstellung der Wechselwirkungen von Neutronen mit Materie

M: Wanderlänge, Gl. (3.4)

L: Diffusionslänge, Gl. (3.5)

τ : Fermi-Alter, Gl. (3.7)

$$N_i = \frac{\rho \cdot N_0}{M} \quad (3.2)$$

Auch die neutroneninduzierte Spaltung von Kernen ist die Folge einer Absorptionsreaktion.

Neutronenmoderation Die Neutronenmoderation beschreibt die Abbremsung der Neutronen auf thermische Energien. Hierzu sind elastische und inelastische Streuprozesse erforderlich. Der Formalismus zur quantenmechanischen Beschreibung der Streuvorgänge, insbesondere der Resonanzstreuung ist in den verschiedenen Lehrbüchern der Kernphysik dargelegt. Als Maß für die Bewertung der Moderation in den Endlagersystemen wird das „Bremsvermögen“ des Stoffgemisches verwendet. Das Bremsvermögen $\xi \cdot \Sigma_s$ berechnet sich durch Summation der Produkte aus Anzahl der jeweiligen Atomkerne N_i multipliziert mit ihrem Streuquerschnitt σ_s und dem pro Stoß übertragenen Energiedekrement ξ .

$$\xi \cdot \Sigma_s = \sum \xi_i \cdot \sigma_{s_i} \cdot N_i \quad (3.3)$$

Neutronenreflexion Die Neutronenreflexion beschreibt die Möglichkeit für ein Neutron, dass es außerhalb eines kernbrennstoffhaltigen Stoffes moderiert und wieder zurück in den Kernbrennstoff gestreut wird. Als Größe wird in der Reaktorphysik die „Reflexionsersparnis δ “ verwendet, welche mit der „Wanderlänge“ M der Neutronen korreliert ist. Die Wanderlänge M ergibt sich aus der „Diffusionslänge“ L und dem „Fermi-Alter“ τ . Die Bremslänge $\tau^{1/2}$ beschreibt den mittleren Abstand zwischen dem Ort der Entstehung eines Spaltneutrons und den Ort, wo dieses auf thermische Energie abgebremst ist.

$$M = \sqrt{L^2 + \tau} \quad (3.4)$$

$$L = \sqrt{\frac{D}{\Sigma_a}} \quad (3.5)$$

mit D : Diffusionskonstante, μ_{0i} : Kosinus des Streuwinkels

$$D = \frac{1}{3 \cdot \sum_i N_i (\sigma_{a_i} + (1 - \mu_{0i}) \cdot \sigma_{s_i})} \quad (3.6)$$

$$\tau = \frac{D_1}{\Sigma_1} \text{ bzw. } \tau = L^2 \cdot \ln \frac{E_1}{E_{th}} \quad (3.7)$$

Beim Fermi-Alter weist der Index 1 auf die Diffusionskonstante bzw. Absorption bei den höheren Energien hin. Der Logarithmus gibt das mittlere Energiedekrement pro Streuung an. Für schwere Kerne (Massenzahl $A > 10$) kann die Näherung (3.8) verwendet werden.

$$\ln \frac{E_1}{E_{th}} = \frac{2}{A + \frac{2}{3}} \quad (3.8)$$

In die Beziehungen (3.4.4) und (3.4.7) gehen Neutronendiffusions- und Sorptionsdaten bei überthermischen Energien ein. Die Berücksichtigung des gesamten Energiespektrums der Neutronen erfordert einen erheblichen Aufwand. Aus diesem Grund werden für die folgenden Abschätzungen nur die thermischen Daten berücksichtigt. Der dadurch bedingte systematische Fehler wird im Zusammenhang mit den Ergebnissen diskutiert.

Als Maß zur Bewertung des Auftretens einer Kritikalität wird der Neutronenmultiplikationsfaktor für unendlich ausgedehnte homogene Systeme K_{inf} verwendet.

Multiplikationsfaktor k_{∞} : $k_{\text{inf}} = \cdot$ (3.9)

Thermischer Nutzfaktor f : $f = \frac{\text{therm. Absorption im Brennstoff}}{\text{therm. Absorption gesamt}}$

$$f = \frac{\sum \sigma_{U,Pu} \cdot N_{U,Pu}}{\sum \sigma_i \cdot N_i} \quad (3.9)$$

Neutronenausbeute je Absorption $\eta = \frac{\text{Neutronenausbeute durch therm. Spaltung}}{\text{Absorption von therm. Neutronen im Brennstoff}}$

$$\eta = \frac{\sum \nu_{U,Pu} \cdot \sigma_f^{U,Pu} \cdot N_{U,Pu}}{\sum \sigma_a^{U,Pu} \cdot N_{U,Pu}} \quad (3.11)$$

wobei für ^{235}U $\nu_{U-235} = 2.43$ und für ^{239}Pu $\nu_{Pu-239} = 2.88$ Neutronen pro Spaltung entstehen.

Das Resonanzintegral für ^{238}U -238 beträgt 280 barn, für Wasser gilt $\sigma_{\text{Streu}}^{\text{H}_2\text{O}} = 45$ barn. In einem reinen Plutonium-System ist die Bremsnutzung p definiert durch

$$p = \exp\left(-\frac{N_{U-238}}{\xi \cdot \sigma_{\text{Streu}}^{\text{H}_2\text{O}} \cdot N_{\text{H}_2\text{O}}} \cdot \int \frac{dE}{E} \sigma_a^{U-238}(E)\right) \quad (3.12)$$

und beträgt $p = 1$. Für den Schnellspaltfaktor ε wurde der Wert $\varepsilon = 1.04$ abgeleitet.

Die kritischen Massen und Volumina können mit Hilfe der stationären Lösung der thermischen Flussdichte-Gleichung bestimmt werden.

$$\Delta\Phi(r) + B_g^2 \cdot \Phi(r) = 0 \text{ mit} \quad (3.13)$$

Φ : Neutronenflussdichte

B_g : „geometrisches Buckling“

Die Eigenwerte des geometrischen Bucklings und des Flusses sind für verschiedene Geometrien tabelliert, z. B. /3-8/. Durch Gleichsetzen des geometrischen Bucklings B_g mit den sogenannten materiellen Buckling B_m für eine Kugelgeometrie erhält man einen Ausdruck für das kritische Volumen $V_{\text{krit.}}$, aus welchem die Massen $M_{\text{krit.}}$ berechnet werden können.

$$B_m^2 = \frac{k_{\text{inf}} - 1}{L^2} \quad \text{L: Diffusionslänge siehe Gl. (3.)} \quad (3.14)$$

$$V_{\text{krit.}} = \frac{4 \cdot \pi^4}{3 \cdot B_m^3} \quad (3.15)$$

3.1.2

3.1.3 Publierte Daten zur Kritikalitätssicherheit

Im Zusammenhang mit den Arbeiten zum Kernbrennstoffkreislauf wurden in den 80er Jahren von der GRS, Garching ein Handbuch zusammengestellt, das wesentliche für diese Studie benötigte Daten enthält /3-7/. In Tabelle 3-1 sind aus diesem Handbuch für verschiedene Anreicherungsfaktoren von ^{235}U in ^{238}U die kritischen Massen (in kg), die kritischen Volumina (Liter), kritische Zylinderdurchmesser bzw. Schichtdicken für unendliche ausgedehnte Schichten (cm) aufgelistet. Wesentlich hierbei ist, dass nur Wasser und die Uranisotope bei der Berechnung von k_{inf} berücksichtigt wurden.

Anreicherung % U-235	Masse kg	Volumen L	Zylinder Durchmesser cm	Schichtdicke (inf.) cm
1,17	5880,00	1710,00	110,00	67,00
1,30	2290,00	714,00	81,50	48,20
1,50	1037,00	358,00	64,30	37,10
2,00	303,00	129,00	47,60	25,00
3,00	102,00	55,30	33,20	17,00
4,00	55,80	36,60	28,60	14,00
5,00	37,70	28,90	26,10	12,40
7,00	22,00	22,00	23,00	10,70
10,00	13,00	16,00	20,50	9,30
20,00	5,00	10,80	17,80	7,50
30,00	3,20	9,20	16,70	6,80
40,00	2,35	8,50	16,00	6,30
50,00 ($\leq 1\text{g U mL}^{-1}$)	1,75	7,70	15,30	6,00
93,00 ($\leq 1\text{g U mL}^{-1}$)	0,85	5,80	14,20	5,20
100 ($\leq 1\text{g U mL}^{-1}$)	0,80	5,60	14,00	4,80
100 % ^{239}Pu (1g Pu mL $^{-1}$)	0,51	5,50	13,9	4,70

Tabelle 3-1: Kritische Parameter für homogene $\text{UO}_2\text{-H}_2\text{O}$ -Mischungen bei reaktivster Urankonzentration mit 30 cm Wasser als Reflektor nach Tabelle 1.B.A in /3-7/

Bei konstanter ^{235}U -Anreicherung zeigen die kritischen Massen eine ausgeprägte Abhängigkeit von der Kernbrennstoffkonzentration. Am Beispiel einer homogenen wässrigen U-Lösung ist in Abbildung 3-2 diese Abhängigkeit für drei verschiedene Anreicherungen dargestellt.

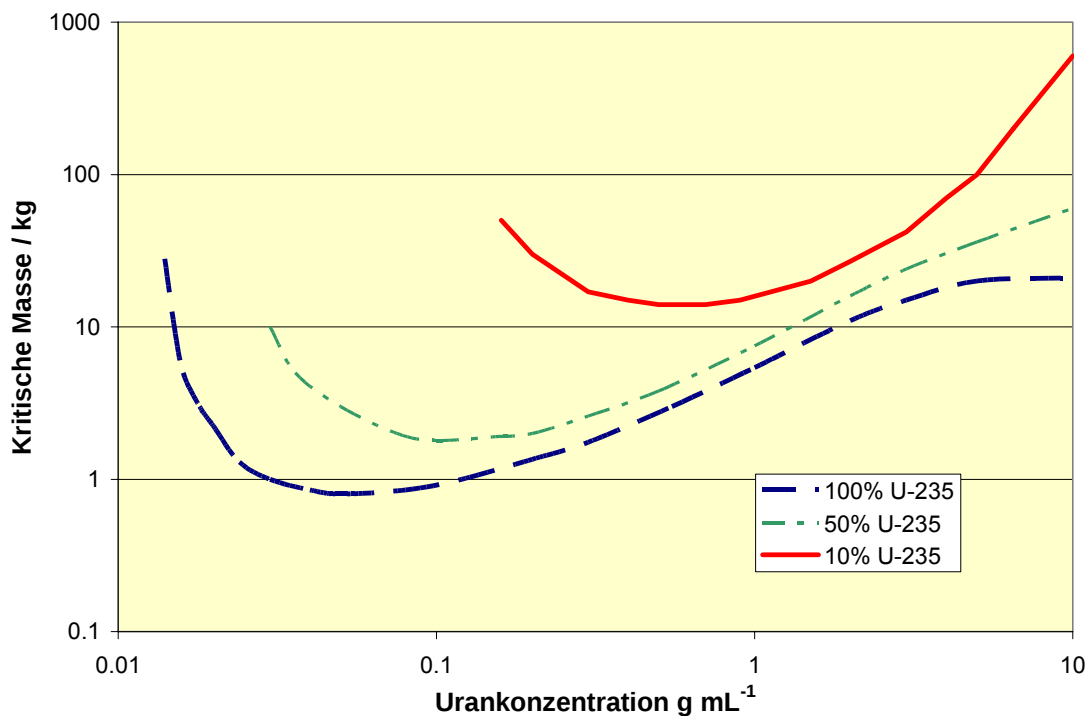


Abbildung 3-2: Kritische Massen als Funktion der gelösten Urankonzentration für verschiedene U-235 Anreicherungen nach /3-7/

3.1.4 Temperaturabhängigkeit des Multiplikationsfaktors

In die Berechnung der makroskopischen Wirkungsquerschnitte geht linear die Dichte der betrachteten Stoffe ein. Im Bereich zwischen 20 und 100°C ändert sich die Dichte des Wassers mit der Temperatur, die Dichte von Feststoffen und damit auch von Kernbrennstoffen ändert sich jedoch kaum. Zur Untersuchung des Temperatureinflusses in diesem Bereich auf den Neutronenmultiplikationsfaktor wird die Vier-Faktoren-Formel (Gl. 3.9) herangezogen. Der thermische Nutzfaktor f (Gl. 3.10) ist umgekehrt proportional zur Anzahl der neutronenabsorbierenden Atomkerne und damit zur Dichte. Da die Absorption in kernbrennstoffhaltigen Systemen durch die Absorption im Uran selbst dominiert wird, ist der Einfluss der geänderten Dichte des Wassers vernachlässigbar.

In die Bremsnutzung p (Gl. 3.12) geht im Zähler des Quotienten in der Exponentialfunktion die Anzahl von ^{238}U -Kernen und im Nenner die Dichte des Wassers ein. In Tabelle 3-2 ist der berechnete Verlauf von p als Funktion der Dichte von Wasser (Systemdruck 5 MPa) angegeben. Insgesamt zeigt sich, dass die Bremsnutzung p von der Temperatur abhängt, wobei p mit steigender Temperatur abnimmt. Der Absolutwert von p hängt von der ^{238}U -Konzentration im System ab. Für die k_{inf} Rechnungen wurde der Faktor $p = 1$ gesetzt, wie es für reine ^{235}U -, ^{239}Pu -Systeme erforderlich ist, da in diesen keine Resonanzabsorption stattfindet /3-8/.

Temperatur in °C	Dichte von H ₂ O / g dm ⁻³ unter 5 MPa	Bremsnutzung p	
		1 g dm ⁻³ U-238	10 g dm ⁻³ U-238
20	1000,5	0,917	0,420
50	990,2	0,917	0,420
100	960,5	0,914	0,405
150	919,4	0,910	0,389
Reaktor: 300°C/15 MPa	725,8	0,887	0,303

Tabelle 3-2: Dichte von Wasser als Funktion von Temperatur und Druck sowie der berechnete Bremsnutzungsfaktor p für verschiedene ²³⁸Uran-Konzentrationen

Sowohl der Schnellspaltfaktor ε und die Neutronenausbeute η (Gl. 3.11) sind unabhängig von der Temperatur. In die Formel der Neutronenausbeute η geht nur die Uran- bzw. Plutoniumkonzentration ein. Diese Größen sind im relevanten Bereich ebenfalls temperaturunabhängig.

Aus diesen Abhängigkeiten ergibt sich, dass die Änderung des Multiplikationsfaktors k_{inf} dem Temperaturverlauf der Bremsnutzung p folgt. Da für alle weiteren Betrachtungen im Rahmen des vorliegenden Berichts vom maximalen $p = 1$ ausgegangen wurde (reine ²³⁵U-, ²³⁹Pu-Systeme), wäre bei erhöhter Temperatur der Multiplikationsfaktor k_{inf} geringer, wobei das Maß der Verminderung von der ²³⁸U-Konzentration abhängt. Bei 10 g dm⁻³ ²³⁸U nimmt k_{inf} zwischen 20°C und 100°C um ca. 4% ab. Im Falle von Kochsalzsystemen erhöht sich die Chloridkonzentration in der Lösung zwischen 20° und 100°C um ca. 10%. Der Einfluss dieser Konzentrationserhöhung auf die Änderung der kritikalitätsrelevanten Größen des Systems kann vernachlässigt werden.

Fazit: Der Temperatureinfluss auf den Multiplikationsfaktor k_{inf} ist für die betrachteten Systeme und den relevanten Temperaturbereich vernachlässigbar.

3.2 Vorgaben für die Studie

3.2.1 Wirtsgesteine und Versatzstoffe

Im Rahmen dieser Studie werden als Wirtsgesteine Steinsalz und Opalinuston (Schweiz) verglichen. Bei den Einlagerungskonzepten für das Wirtsgestein Ton wird eine geotechnische Barriere aus MX 80 Bentonit berücksichtigt (siehe Kap. 3.2.4). Für die mittlere Zusammensetzung von Steinsalz werden folgende Angaben gemacht: 93 Gew.% NaCl (Halit), 5 Gew.% CaSO₄ (Anhydrit), 2% Polyhalit und < 0.5 Gew.% Wasser /3-9/.

Die mineralogische und chemische Zusammensetzung des Opalinustons aus dem Standort Mont Terri in der Schweiz sowie des MX 80 Referenzbentonits sind in Tabelle 3-3 und Tabelle 3-4 nach /3-10/ angegeben.

Mineral	Anteile (%)	Oxide	Anteile (%)
Illit / Smektit	Hauptphase 6-12	SiO ₂	60
Illit	Hauptphase 16-22	Al ₂ O ₃	14,1
Kaolinit	Hauptphase 26-32	TiO ₂	-
Chlorit	Hauptphase 5-9	Fe ₂ O ₃	4,8
Quarz	14	MnO	-
Cristobalit	n.d.	MgO	1,4
K-Feldspat	Spuren ~2	CaO	6,7
Plagioklas	Spuren	Na ₂ O	0,4
Calcit	Hauptphase 11	K ₂ O	2,8
Siderit	~4	P ₂ O ₅	-
Albit	2	SO ₂	0,1
Pyrit	1,7	Glühverlust ¹	9,3

¹ Glühverlust ist die Bezeichnung für die Massen-Differenz zwischen Abdampf- u. Glührückstand bzw. zwischen Trockengewicht und Gewicht des Glührückstandes, je nachdem, ob man von flüssigen oder von festen Stoffen ausgeht. (engl.: loss on ignition)

Tabelle 3-3: Mineralogische und chemische Zusammensetzung des Opalinustons, Schweiz

Mineral	Anteile (%)
Montmorillonite	75
Kaolinit	<1
Glimmer	<1
Quarz	15,2
K-Feldspat	5-8
Calcit	0,7
Siderit	0,7
Pyrit	0,3
Org. Kohlenstoff	0,4

Dichte	1,9 g ml ⁻¹
--------	------------------------

Oxide	Anteile (%)
SiO ₂	55,8
Al ₂ O ₃	18,0
TiO ₂	0,1
Fe ₂ O ₃	4,0
MnO	< 0,03
MgO	2,0
CaO	1,4
Na ₂ O	2,1
K ₂ O	0,6
P ₂ O ₅	0,25
SO ₂	n.d.
Glühverlust	15,4

Tabelle 3-4: Mineralogische und chemische Zusammensetzung des MX 80 in Gew. % (Wyoming Bentonit)

Die mineralogische Zusammensetzung des Versatzstoffes MX 80 ist in /3-11/ angegeben. Für höhere Dichten im kompaktierten Zustand ($\rho = 2,1 \text{ g ml}^{-1}$) ändert sich die Zusammensetzung des MX 80 geringfügig.

Ton und Tongesteine weisen eine charakteristische Partikelgröße von $< 2 \mu\text{m}$ und eine hohe spezifische Oberfläche von bis zu $750 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ auf. Ein gewisser Wassergehalt ist im Ton bzw. Tongestein prinzipiell vorhanden. Grundsätzlich müssen verschiedene Typen von Porenwasser im Tongestein unterschieden werden:

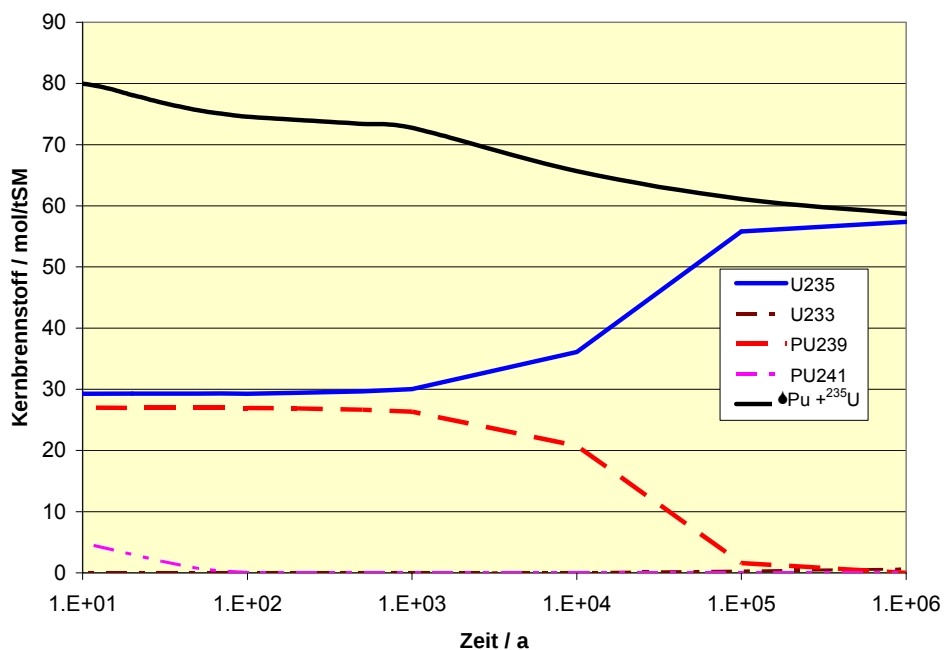
- I. Interlamellares Wasser: Wasser, das in der Zwischenschicht der Tonmineralstruktur adsorbiert ist. Bei extrem niedrigen Wassergehalten werden nur die hydrophilen Oberflächenplätze mit Wasser belegt. Bei Tonmineralen mit niedriger Oberflächenladung wird Wasser nur in der Zwischenschicht eingelagert. Bei Tonmineralen mit permanenter Schichtladung werden die zur Ladungskompensation adsorbierten Kationen hydratisiert.
- II. Intrapartikuläres Wasser: Wasser, das um primäre Tonpartikel adsorbiert ist.
- III. Freies Wasser, welches in Mikroporen kondensiert ist (Kapillarkondensation).

Die Quellfähigkeit von Ton als Versatzstoff wurde in zahlreichen Arbeiten für verschiedene Endlagerkonzepte untersucht. Die innerkristalline Quellung ist der Hauptvorgang, der zum Aufbau des makroskopisch beobachtbaren Quelldrucks von kompaktierten Bentoniten in Lösungen führt. Hierbei wird Wasser in die Zwischenschichten des Tons eingebaut und modifiziert die Hydrathülle der Zwischenschichtkationen. Die Anzahl der Wassermoleküle, die in die Zwischenschicht eingebaut werden können, hängt von der Art der Kationen (Ladungsdichte) ab. Die Zwischenschichtkationen bestimmen somit

den Wassergehalt in den Zwischenschichten und den Quelldruck. Einen guten Überblick über das Quellverhalten von Ton findet man in /3-12/.

3.2.2 Kernbrennstoff-Inventare

Als Vorgabe für die Studie wurden von DBE-TECHNOLOGY folgende Kernbrennstoffdaten festgelegt: DWR UO_2 Brennelemente des Gemeinschaftskraftwerks Neckar (18x18-24) mit 4% ^{235}U Anreicherung und einem Abbrand von 50 GWd/tSM. Die von DBE-TECHNOLOGY übergebenen Daten zeigen die in Abbildung 3-3 dargestellte Zeitabhängigkeit des Spaltstoffinventars.



Die Codes ORIGEN bzw. KORIGEN liefern auch Angaben in „Gramm-Atom“, d.h. Konzentrationen können auf Molmassen bzw. Anzahl von Atomen bezogen werden.

Abbildung 3-3: Zeitlicher Verlauf des Kernbrennstoffinventars für DWR Uran-Brennelemente des GKN (18x18-24) mit 4,0 % Anfangsanreicherung und 50GWd/tSM Abbrand.

ΣPu : Summe aller Plutonium-Isotope (238, 239, 240, 241, 242)

Durch thermische Neutronen spaltbare Isotope sind ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu und ^{241}Pu /3-8/. Die anderen Pu-Isotope ^{238}Pu , ^{240}Pu und ^{242}Pu sind Neutronenabsorber und können durch thermische Neutronen nicht gespalten werden. Die Konzentrationen in der Abbildung 3-3 sind in Mol pro Tonne Schwermetall angegeben. Nach ca. 100 Jahren bleibt die Summe der tatsächlich spaltbaren Elemente nahezu konstant. Das Verhältnis der Summe der Kernbrennstoffe zu ^{238}U liegt bei 100 Jahren bei 1,45 % und steigt bis 1 Mio. Jahre auf ca. 1,50 Atom % an.

3.2.3 Behälterkonzepte

Für die Endlagerung in Steinsalz sind zwei Verpackungskonzepte in der Diskussion /3-13/. Der dickwandige POLLUX Endlagerbehälter und die Brennstabkokille (BSK 3). Der POLLUX Endlagerbehälter ist ausgelegt für die Brennstäbe aus 10 DWR Brennelementen (BE) und besteht aus einem Abschirmbehälter mit geschraubtem Deckel und einem inneren Behälter mit verschraubtem Primär- und geschweißtem Sekundärdeckel. Der innere Behälter besteht aus Feinkornbaustahl 15 MnNi 6.3, die Wandstärke des Zylinders beträgt 160 mm. Der Innenbehälter ist für die mechanischen und abschirmtechnischen Anforderungen ausgelegt. Der äußere Behälter dient nur zur Abschirmung. Seine Wandstärke beträgt 265 mm und sie besteht aus Gusseisen EN-GJS-400 (alte Bezeichnung GGG 40). Das Gewicht des inneren Behälters (einschließlich abgebrannter Kernbrennstoff) beträgt 31 Mg, das Gewicht des äußeren Behälters beläuft sich auf 34 Mg.

Die BSK 3 sollte in vertikalen Bohrlöchern im Steinsalz eingelagert werden. Diese Kokille ist für die verdichtete Aufnahme von Brennstäben (ohne Abstandshalter, etc) bestimmt. Die Kapazität einer BSK 3 beläuft sich auf die Brennstäbe von 3 DWR oder 9 SWR Brennelementen. Der äußere Durchmesser der BSK 3 entspricht demjenigen einer HAW-Kokille der COGEMA (0,43 m), die Wandstärke 50 mm und die Länge 4,98 m, so dass die Brennstäbe unzerschnitten verpackt werden können (siehe Tabelle 3-5). Als Material ist 15 MnNi6-3 (alte Bezeichnung MnNi 6.3) (1.6210) Feinkorn-Baustahl vorgesehen. Neutronenabsorbierende Materialien (z. B. Gadolinium) sind in diesen Behältern nicht vorgesehen.

Als Behälter für die Endlagerung von Brennstäben im Tongestein wurde von DBE-TECHNOLOGY für diese Studie ein Behälter BSK 2 konzipiert (Tabelle 3-5). Der Durchmesser der BSK 2 ist mit 41 cm abgeschätzt. Enthalten sind 600 Brennstäbe (Brennstäbe von 2 DWR BE). Die Packungsdichte der Brennstäbe kann aus Abbildung 3-4 abgeleitet werden. Die Höhe inkl. Pilzkopf entspricht der BSK 3 mit 4,98 m. Für die Einlagerung in vertikale Bohrlöcher, soll die BSK 2 mit einem 30 cm starken Mantel aus MX 80 umgeben werden. Das gesamte Endlagergebäude befindet sich in einem gelochten Stahlkorb mit ca. 1 cm Wandstärke (Material noch unbestimmt). Das Bohrloch hat einen Durchmesser von ca. 1,03 m.

	BSK 3	BSK 2	
Durchmesser außen d_a	43	41	cm
Durchmesser innen d_i	35	33	cm
Hohlraum Länge des BSK 3 bzw. 2	480	480	cm
Anzahl Brennstäbe: $\varnothing$ 11 mm	666 - 818	600	
Leervolumen pro Behälter	158 - 89	136	dm ³

Tabelle 3-5: Charakteristika von BSK 3 und BSK 2 Behälter

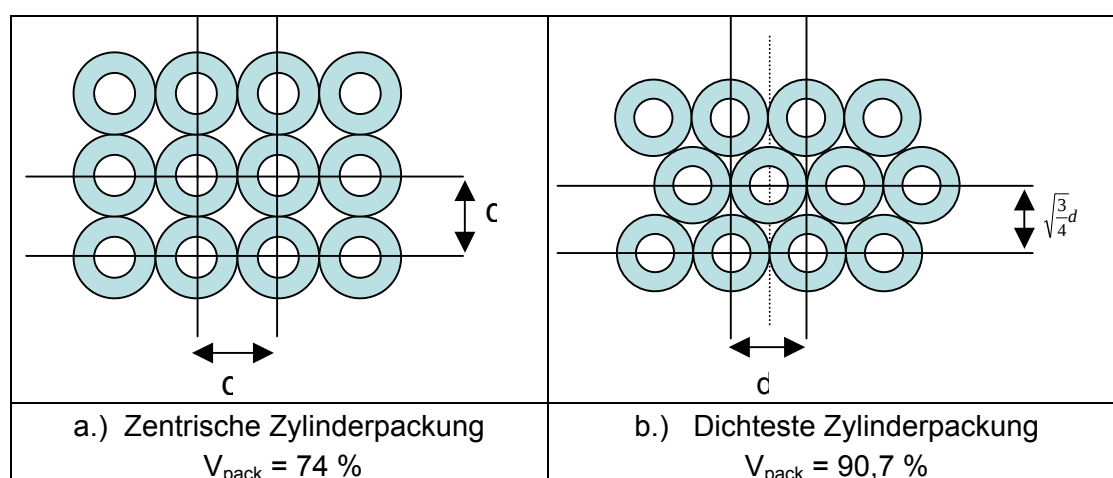
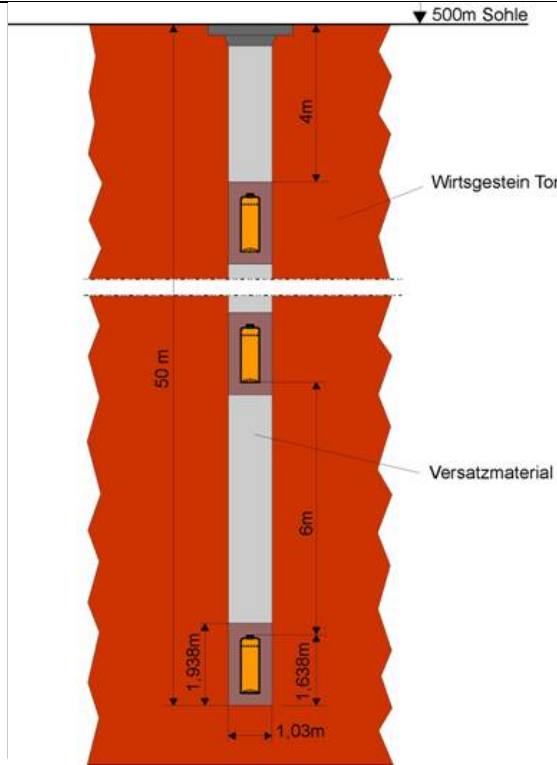


Abbildung 3-4: Mögliche Anordnungen von Brennstäben in den BSK 3 bzw. BSK 2 Behältern

3.2.4 Einlagerungskonzepte

Im Rahmen der GEIST Studie wurden von DBE-TECHNOLOGY Endlagerkonzepte festgelegt:

 Abbildung 3-5: Einlagerungskonzept für Glaskokillen / BSK 3 bzw. BSK 2 Behälter im Wirtsgestein Ton	Einlagerungsfeld Streckenlagerung 5523 POLLUX-3 – Startkonfiguration 31 Jahre Zwischenlagerzeit Streckenabstand: 30,0 m Behälterabstand: 20,0 m Behälter pro Feld: 128 Tabelle 3-6: Einlagerungskonzept für Polluxbehälter
--	--

Die Wärmeleistung der endzulagernden Abfälle beträgt nach 30 Jahren Zwischenlagerung ca. 1 kW pro Mg Brennstoff. Damit ist die Wärmeleistung eines BSK 2 Behälters vergleichbar mit derjenigen einer HAW-Kokille.

3.2.5 Thermische Leitfähigkeit von Bentonit und dem Opalinuston

Bei 2 % Anfangsfeuchte beträgt die thermische Leitfähigkeit für granularen Bentonit $0,39 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ /3-14/, für trocken kompaktierte Bentonit Blöcke mit 2 % Anfangsfeuchte wird ein Wert von $0,5 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ angegeben /3-15/. Im gesättigten Zustand gibt /3-16/ für den Bentonit-Versatz einen Wert von $1,35 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ an. Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit den Werten von Gray /3-14/ $1,4 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ und $1,7 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ /3-17/. Für granularen Bentonit wurden innerhalb des BACCHUS Tests Werte von 1,4 bis $2,5 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ ermittelt /3-18/.

Die thermische Leitfähigkeit des Opalinustones variiert mit dem Gehalt an Quarz. Je höher der Gehalt an Quarz, desto höher ist die thermische Leitfähigkeit. Eine weitere wichtige Rolle spielt die so genannte Schieferung. Die Schieferung im Opalinuston kommt durch tektonische Vorgänge zu Stande und ist parallel zu Schichtung. Die thermische Leitfähigkeit ist daher nicht isotrop sondern höher in Richtung parallel zur

Schichtung. Die thermische Leitfähigkeit für den Opalinuston innerhalb der EDZ wird mit $1,35 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ angegeben /3-19/. In der folgenden Tabelle 3-7 sind die Daten zur thermischen Leitfähigkeit des Opalinuston zusammengefasst.

	Thermische Leitfähigkeit $\text{W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$
Oberer Opalinuston (550 bis 670 m)	3,2 parallel zur Schichtung 1,8 senkrecht zur Schichtung
Unterer Opalinuston (670 bis 750 m)	2,0 parallel zur Schichtung 1,3 senkrecht zur Schichtung

Tabelle 3-7: Thermische Leitfähigkeit des Opalinustons

3.2.6 Strahlungsfeld

Ausgehend vom Isotopenvektor von abgebrannten LWR Brennstoff wurde mit den Code HGAM7 (Details siehe /3-20/, /3-21/) „Abschirmrechnungen“ für die γ -Strahlung durchgeführt. Neutronenstrahlung wurde für diese Abschätzungen nicht berücksichtigt. Der Verlauf der Energiedosis und der Dosisleistung DL als Funktion des Abstands vom Zentrum eine BSK 2-Kokille sind in Abbildung 3-6 für die oben angegebene Endlagerkonfiguration gezeigt. Die absorbierte Energiedosis in einem Medium wird in Gray (Gy) angegeben (in SI Einheiten ist $1 \text{ Gy} = 1 \text{ J kg}^{-1}$ und entspricht 100 rad).

Als Grundlage für die Berechnung wurden folgende Daten unterstellt: 2 Brennelemente mit 1 Mg Kernbrennstoff mit 4% ^{235}U Anfangsanreicherung, Abbrand 50 GWd/tSM, Wandstärke des BSK 2 Behälters 40 mm, Geometrie nach Tabelle 3-5, Berücksichtigung der wesentlichen γ -Strahler, 30 Jahre Zwischenlagerung des Brennstoff. Die Dosis D wird berechnet nach

$$D = \int_0^{\infty} DL \cdot dt \text{ mit DL: Dosisleistung}$$

Für Pollux Behälter liegt die Äquivalentdosisleistung an der Oberfläche unter 2 mSv h^{-1} , da diese Behälter den Transportbestimmungen genügen. Damit liegt auch die Energiedosis bei unter 2 mGy h^{-1} und ist daher nicht relevant für Veränderungen in der Tonstruktur.

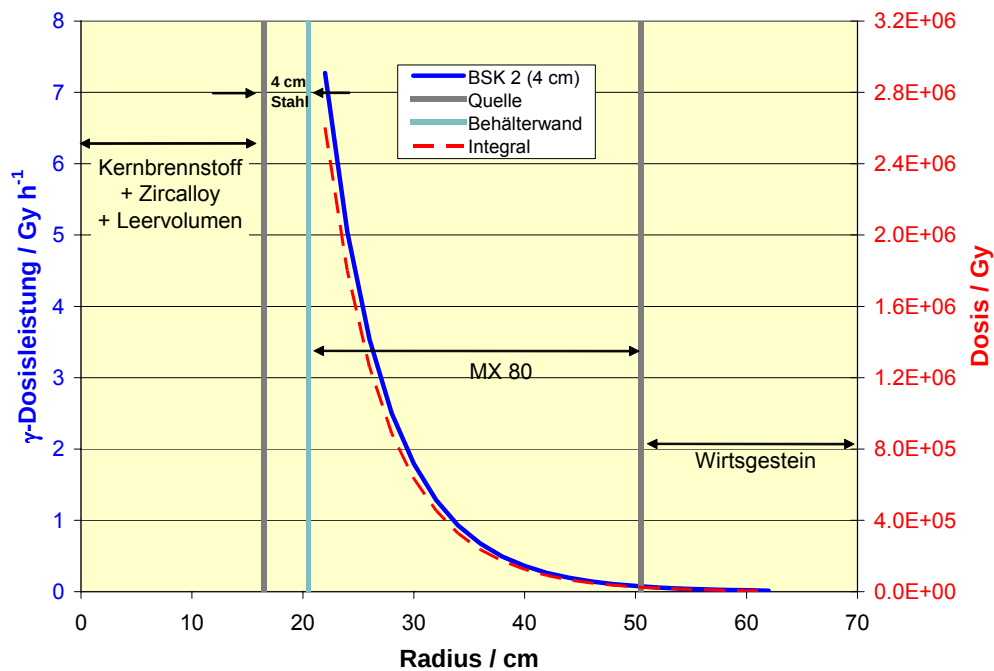


Abbildung 3-6: Dosis und der Dosisleistung als Funktion des Abstands vom Zentrum einer BSK 2-Kokille
Dosis($t=\infty$) : rechte Achse, gestrichelte Kurve

3.3 Charakteristika der Nachbetriebsphase

Die Abgrenzung der vorliegenden Studie zur Analyse der kritikalitätssicheren Lagerung in der Betriebsphase erfolgt auf Basis der Tatsache, dass an Hand der Angaben für Kernbrennstoffkonzentrationen, wie sie in dieser Studie betrachtet werden, innerhalb eines Lagerbehälters der minimale kritische Zylinderdurchmesser zwischen 64,30 cm bei 1,5 % Anreicherung und 47,60 cm bei 2 % Anreicherung liegt. Der Innendurchmesser eines BSK 3 und eines BSK 2 Behälters liegt bei 33 cm bzw. 31 cm, so dass der minimale kritische Zylinderdurchmesser um > 30 % unterschritten ist.

Fazit: Damit kann im Falle unveränderter Bedingungen gegenüber der Betriebsphase von Kritikalitätssicherheit sowohl für die Endlagerung in Ton als auch in Steinsalz ausgegangen werden.

Für die Nachbetriebsphase müssen Änderungen hinsichtlich der Geometrie der eingelagerten Abfallbehälter bzw. Aufkonzentrierungsprozesse unterstellt werden. Allein die Aufsättigung des umgebenden Gesteins bzw. Versatzstoffes mit wässrigen Lösungen reicht nicht aus, um eine Kritikalität zu ermöglichen, da für die Berechnung der Angaben in Tabelle 3-1 bereits eine 30 cm mächtige Wasserschicht als Reflektor unterstellt wurde.

3.3.1 Entwicklung der Temperatur innerhalb der Bentonit-Barriere und der Ton Endlagerformation

Die thermische Entwicklung ist ein wichtiger Faktor für das Systemverhalten eines Lagers für radioaktive Abfälle, weil Temperaturänderungen viele Prozesse beeinflussen, welche sich auf das Verhalten der technischen Barriere und des Wirtsgesteins auswirken. Die anfängliche Wärmeproduktion der Abfälle und deren Abnahme im Laufe der Zeit infolge radioaktiven Zerfalls hängen von der Beschaffenheit des Abfalls ab.

Die Temperaturen im Bentonit hängen stark vom zu Grunde gelegten Wassergehalt ab. Im Falle eines geringen Wasserzutritts aus dem Opalinuston in das Lager weist der Bentonit-Versatz eine geringe thermische Leitfähigkeit auf (siehe Kap. 3.2.5, /3-19/). Unter dieser Annahme beträgt die maximale Temperatur an der Behälter/Bentonit Grenzfläche im schweizerischen Konzept etwa $\sim 160^{\circ}\text{C}$. Diese Temperatur wird nach 10 Jahren erreicht. Die Temperaturen nehmen nach 1000 Jahren der Einlagerung auf ca. $\sim 85^{\circ}\text{C}$ ab. Im schweizerischen Konzept beträgt die Temperatur in dem mit Bentonitpellets versetzten Strecken zwischen den Brennelement-Behältern und dem Wirtsgestein maximal 110°C .

Die Temperaturen im **Wirtsgestein** bleiben für alle Zeiten unter $\sim 90^{\circ}\text{C}$. Im Falle eines erhöhten Wasserzutritts steigt die thermische Leitfähigkeit von Bentonit signifikant und die Temperaturen an der Behälteroberfläche und im Bentonit sind gegenüber dem trockenen Zustand deutlich vermindert.

3.3.2 Einflüsse der eingelagerten Abfälle auf die Stabilität der Bentonit-Barriere

Strahlenstabilität: /3-22/ untersuchten die Stabilität des Bentonit Standards SWy-1 unter Gamma-Bestrahlung. Die Dosis betrug bei den Versuchen 20 kGy. Diese Dosis führte zu keinerlei Veränderungen der Mineralogie, wie mittels NMR- und Infra-Rot-Spektroskopie nachgewiesen werden konnte. /3-23/ untersuchten den Einfluss deutlich höherer Strahlendosis (1,1 MGy) auf die Mineralogie, die Kationen-Austausch-Kapazität, die Schichtladung und die spezifische Oberfläche von verschiedenen Tonmineralien. Auch in dieser Studie stellten die Autoren, wenn überhaupt, nur einen schwachen Effekt auf die genannten Eigenschaften der Tone fest. So wurde in den Fe-haltigen Tonmineralien die Reduktion von Fe^{3+} beobachtet, was zu einer Verringerung der Kationen-Austausch-Kapazität und der Schichtladung führte. /3-23/ und /3-24/ beobachteten eine leichte Zunahme von paramagnetischen Defekten in Montmorillonit und eine stärkere Zunahme im Kaolinit mittels EPR-Spektroskopie unter dem Einfluss von Gamma-Strahlung. /3-25/ beschrieben den durch Gamma-Strahlung bedingten katalytische Austausch der schweren Isotope Deuterium und Tritium gegen Protonen und strukturelle OH-Gruppen. Es ist anzumerken, dass eine integrale Strahlendosis von 1,1 MGy für den hier betrachteten abgebrannten Brennstoff lediglich bis zu einem Abstand von ca. 10 cm von der Behälteroberfläche wirksam ist.

Durch die Strahlung des Abfalls kommt es zur Radiolyse des im und am Ton vorhandenen Wassers. Hauptradiolysespezies sind H_2O_2 , Wasserstoff, OH-Radikale und solvatisierte Elektronen. Die G-Werte für H_2 liegen bei 0,35, für H_2O_2 bei 0,46 /3-26/. Kohlendioxid kann aus dem im Ton meist vorhandenen Karbonaten entstehen /3-26/, /3-27/.

Fazit: Strahlenschäden sind zu erwarten, aber im Hinblick auf die Stabilität des Tones von vernachlässigbarer Bedeutung.

Wasserdampf-Stabilität: Oft wird davon ausgegangen, dass die thermische Stabilität der Bentonit-Barriere im direkten Kontakt zum Behälter die limitierende Größe bei der Planung des Endlagers sei. Die Austreibung von Wasserdampf aus am Ton adsorbiertem und dem interkaliertem Wasser bei Temperaturen über 100°C ist ein Prozess, welcher die Eigenschaften der Barriere negativ beeinflussen kann /3-28/, /3-29/. Beide Autoren stellten eine deutliche Reduzierung des spezifischen Volumens des wieder in Suspension gebrachten Smektit nach dem Kontakt mit Wasserdampf fest. Bei 160°C verringerte sich das spezifische Volumen des Smektit um einen Faktor 3-7. Während /3-28/ die Fällung von sekundären Si-Phasen für die Reduktion des spezifischen Volumens verantwortlich machte, konnten /3-29/ keinerlei solche Phasen finden. Beiden Autoren konnten ebenfalls zeigen, dass sowohl die Mineralogie als auch die Kationen-Austausch-Kapazität bis zu einer Temperatur von 210°C unverändert blieben. /3-29/ hingegen zeigte, dass im Falle von gepressten Bentonit-Pellets mit einer Reduzierung der Quellfähigkeit um einen Faktor 2 zu rechnen ist. Bei 125°C war in seinen Versuchen der Verlust an Quellvermögen hingegen minimal.

Fazit: Die Bentonit Barriere wird durch den Temperatureinfluss in unmittelbarer Nachbarschaft zum hochradioaktiven Abfall an Quellvermögen verlieren.

Änderung der Mineralogie: /3-31/ postulierte die Fällung von löslichen Salzen im Porenraum des Tons infolge von Migrationsprozessen im Temperaturgradient. Viele Arbeiten wurden in den letzten 40 Jahren zur Illitisierung von Bentoniten durchgeführt. Einen guten Überblick findet man in /3-32/. Auf Grund der geringen Konzentration von Kalium ($\geq 10^{-2}$ mol/L) im Porenwasser des Opalinustons und den Temperaturen von max. 160°C kann die Illitisierung der Bentonit-Barriere vernachlässigt werden.

Die Wechselwirkung zwischen Bentonit und dem Behälter-Material werden seit einigen Jahren intensiv untersucht. /3-33/ beschreibt die Umsetzung von dioktaedrischen Smektiten mit Fe^0 bei 80°C . Neben der Bildung von Magnetit und Si-Al-Fe Gelen kam es zur Neubildung einer nicht quellfähigen Tonmineral-Phase mit einem basalen Schichtabstand von 7 Å. /3-34/ beobachtete bei höheren Temperaturen (150°C - 200°C) und geringeren Eisen/Ton Verhältnis ebenfalls die Neubildung einer Phase bei 7 Å. /3-35/ führten ihre Experimente mit dem Bentonit MX 80 bei 80° und 300°C durch. Bei

300°C beobachteten die Autoren die Neubildung von Clorit, Quartz und Zeoliten, bei 80°C dagegen keinerlei Reaktion.

Fazit: Die zu erwartenden mineralogischen Änderungen führen nicht zu einer Veränderung der Eigenschaften des Versatzstoffes oder einer erhöhten Wegsamkeit für Lösungen.

3.3.3 Aufsättigung des Versatzstoffs in den Lagerstollen

Die Aufsättigung der Lagerstollen wird in erster Linie durch die hydraulischen Eigenschaften des Wirtsgesteins sowie die Geometrie der Tunnel und die Porosität des Verfüllmaterials bestimmt. Der Verlauf der Temperaturentwicklung und die maximale Temperatur beeinflussen die berechnete Aufsättigungsdauer wesentlich /3-36/. Ohne Berücksichtigung der Temperaturentwicklung wird erwartet, dass der Ton in einem Brennelement-Lagerstollen nach ca. 150-750 Jahren voll gesättigt ist. Die kapillare Saugwirkung der Bentonitbarriere verringert sich mit zunehmender Sättigung des Tons, so dass als treibende Kraft praktisch nur die Porenwasserdruckgradienten im Wirtsgestein wirken. Nach abgeschlossener Aufsättigung erfolgt die Rückkehr zu stationären hydraulischen Verhältnissen je nach hydraulischer Durchlässigkeit des Opalinustones innerhalb von mehreren 10^3 bis 10^4 Jahren.

Im Falle der Berücksichtigung der Wärmeentwicklung durch die Brennelemente ergaben die Simulationen deutlich geringere Aufsättigungszeiten von ca. 40 bzw. 150 Jahre bei einer hydraulischen Durchlässigkeit von 10^{-13} bzw. 10^{-14} m/s /3-36/. In diesem Modell hat die beschleunigte Aufsättigung zwei Ursachen: Einerseits bewirkt die mit dem Temperaturanstieg verbundene Verringerung der Viskosität des Porenwassers eine Erhöhung der hydraulischen Gebirgsdurchlässigkeit um einen Faktor 2-3. Andererseits erhöht sich der Porenwasserdruck im Wirtsgestein, da das Porenwasser einen höheren thermischen Expansions-Koeffizienten hat als das Gebirge. Der Vergleich der Geschwindigkeit der radialen Wärmeausbreitung mit der Ausbreitung der hydraulischen Störung zeigte, dass der thermisch bedingte Porenwasserdruckgradient zu den Lagerstollen hin gerichtet ist /3-36/. Aufgrund anderer Temperaturen im deutschen Konzept für Tongestein sind die Ergebnisse der NAGRA nicht 1:1 übertragbar.

Nach erfolgter thermischer Aufsättigung entwickeln sich in den Lagerstollen aufgrund der thermischen Expansion von Verfüllmaterial und Opalinuston erhebliche Porenwasserüberdrücke. Mit Abklingen des Temperaturpulses gehen die Porenwasserdrücke zurück und unterschreiten zwischenzeitlich die für den isothermen Fall postulierte Porenwasserdruckentwicklung (thermische Kontraktion), bis sie sich schließlich dem isothermen Fall annähern. Auch unter Berücksichtigung der thermischen Last werden je nach hydraulischen und thermischen Eigenschaften des Wirtsgesteins Druckabgleichsphasen von mehreren Tausend bis Zehntausend Jahren erwartet.

3.4 Kritikalitätsrelevante Szenarien in der Nachbetriebsphase

Kritikalitätsrelevante Szenarien in der Nachbetriebsphase leiten sich aus den in Kap. 3.2 beschriebenen Behälter- und Einlagerungskonzepten sowie aus einigen Prozessen ab, die im Ausschuss Ver- und Entsorgung (VE) der RSK diskutiert wurden. Es wurde von diesem Ausschuss, empfohlen folgende grundlegenden Langzeitszenarien zu berücksichtigen:

1. Mechanische Verformung von Endlagergebinden.
2. Leckage von Behältern, Eindringen von Wasser bzw. Lauge.
3. Korrosion und Auflösung der Behälterstruktur, Vermischen von Kernbrennstoff mit dem umgebendem Wirtsgestein und Wasser/Lauge.
4. Zusammenfließen des Kernbrennstoffs aus mehreren Behältern, durch Fließbewegung im Wirtsgestein.
5. Auflösung, Migration und Ablagerung von Kernbrennstoff nach dem Beispiel einer geologischen Lagerstättenbildung.
6. Trennung von Uran und Plutonium auf geochemischem Weg.

Diese Szenarien sind unabhängig vom Wirtsgestein und werden im Folgenden für Salz und Tongestein diskutiert. Für Kritikalitätsbetrachtungen können zylindrische Symmetrien angenommen werden.

3.4.1 Mechanische Verformung von Endlagergebinden

Mechanische Verformungen betreffen nur einzelne Gebinde. Folgende mechanische Verformungen von Endlagergebinden in Salz und Tongestein sind vorstellbar:

3.4.1.1 Verdichtung der Stababstände

Eine Verdichtung der Stababstände ist in einem POLLUX Behälter denkbar, wo ursprünglich ganze Brennelemente eingesetzt werden. Durch Korrosion und Verlust der mechanischen Festigkeit der Abstandshalter, könnten die Brennstäbe zu einer dichteren Anordnung gelangen. In der BSK 3 bzw. BSK 2 liegt die dichteste Stabpackungsdichte bereits vor (siehe Tabelle 3-5).

3.4.1.2 Aufweitung der Lagerungsabstände

In der Nachbetriebsphase eines Endlagers im Steinsalz laufen Konvergenzprozesse ab, die zur mechanischen Einspannung der Endlagerbehälter führen. Im Tongestein wirkt der kompaktierte und sich aufsättigende Bentonit ebenfalls zu Einspannung der Lagerbehälter. Durch den Einspannungszustand der Behälter ist kein Prozess vorstellbar, der zur Aufweitung der Stababstände führen könnte. Insbesondere weisen die

Korrosionsprodukte des Stahls ein höheres spezifisches Volumen auf als der ursprüngliche Stahl, so dass eher eine weitergehende Kompaktierung der Brennstäbe zu erwarten ist.

3.4.1.3 Spaltstoff in Pelletschüttung

Pelletschüttungen sind nur im POLLUX Behälter denkbar, wo ganze Brennelemente eingesetzt werden. Durch ungleichmäßige Korrosion der Abstandshalter, könnten die Zircaloy-Hüllrohre mechanisch verformt werden, dass Pellets nach unten fallen. Aufgrund der horizontalen Lagerung der POLLUX Behälter ist die maximale Schüttdichte begrenzt. Das Moderator zu Brennstoff Verhältnis bleibt konstant oder vermindert sich. Auch hierbei gibt es keinen Unterschied zwischen der Einlagerung im Ton und Steinsalz.

3.4.1.4 Spaltstoff in Partikelschüttung

Als Kernbrennstoffpartikel werden die gesinterten, keramischen Urandioxidkörner (UO_2) mit einer Korngröße von etwa 5-10 μm und eine Porosität bis etwa 5% angesehen. Damit diese Partikel aus den Brennstäben austreten können, ist eine weitgehende Zerstörung des Zircaloys erforderlich. Dies erscheint erst in einem Zeitbereich möglich, wenn bereits das Behältermaterial stark korrodiert ist. Die Bildung der Korrosionsprodukte mit einem höheren spezifischen Volumen führt zur Einspannung der Strukturen innerhalb der Behälter. In einem horizontal gelagerten POLLUX Behälter ist die maximale Schüttdichte begrenzt. In vertikal gelagerten BSK 3 bzw. BSK 2 Behältern könnte das Restvolumen zwischen den Brennstäben (siehe Tabelle 3-5) mit Brennstoffpartikeln ausgefüllt werden. Durch Vergleich mit den kritischen Daten aus Tabelle 3-1 zeigt sich, dass in Salz und Ton bei dem betrachteten U/Pu Inventar des abgebrannten Kernbrennstoffs eine kritische Anordnung ausgeschlossen ist.

3.4.2 Leckage von Behältern, Eindringen von Wasser bzw. Lauge

Wie in Kapitel 3.3 beschrieben, ist in der Nachbetriebsphase die Anwesenheit von wässrigen Lösungen eine Voraussetzung, damit kritikalitätsrelevante Prozesse möglich werden. In Ton führt die Anwesenheit von Lösungen - unabhängig von ihrer Herkunft - zunächst zur Aufsättigung des Tons im verfüllten Nahbereich bzw. im umgebenden Gestein. Dadurch werden Quellvorgänge ermöglicht.

Im Steinsalz treten prinzipiell nur gesättigte Salzlösungen auf. Durch deren Anwesenheit werden visko-plastische Kriechprozesse beschleunigt (Feuchte-Kriechen) und somit die Konvergenzrate erhöht.

Gelangt die Lösung an den metallischen Lagerbehälter, beginnen Korrosionsprozesse. Experimente bei FZK ergaben Flächenabtragsraten zwischen 30 und 100 $\mu\text{m a}^{-1}$ für

den Feinkornbaustahl 1.0566 in Q-Lauge bei 90°C, je nach Art an korrosionsfördernden Spezies in der Lösung. Bei 170°C stiegen die Korrosionsraten auf maximal $250 \mu\text{m a}^{-1}$ für alle Stähle an /3-37/. In NaCl-Lösung waren die Korrosionsraten um einen Faktor 2 niedriger. An Schweißnähten ist i. A. die Korrosionsgeschwindigkeit höher. Die Korrosionsgeschwindigkeit des 15 MnNi6-3 ist bei der gleichen Temperatur deutlich niedriger, jedoch zeigt dieser Stahl deutliche Korrosion durch Lochfraß in Tonumgebung /3-38/. Diese Befunde zeigen, dass die Einlagerungsbehälter innerhalb einiger Jahrhunderte durchlässig werden und Lösungen eindringen können. Die Korrosion eines Stahls bedeutet die Umwandlung eines thermodynamischen instabilen Stoffes (Metall) in eine thermodynamisch stabilere feste Phase. Die Menge an Eisen, Mn, Ni, ..., die dabei von der Oberfläche der korrodierenden Fläche in die Umgebung abtransportiert wird, hängt von gelösten Konzentration und der advektiven Strömungsgeschwindigkeit ab. Im kompaktierten Ton spielen nur diffusive Transportphänomene eine Rolle, in einem Bohrloch im Steinsalz sind nach wenigen Jahren ebenfalls nur diffusive Transportprozesse zu erwarten. Sowohl in Steinsalz als auch im Ton bleiben folglich die Korrosionsprodukte am Ort ihrer Entstehung. In beiden Wirtsgesteinen wurden oxidische bzw. hydroxidische Korrosionsprodukte wie Magnetit beobachtet /3-39/.

Von Bedeutung für Kritikalität ist das Eisenkorrosionsprodukt $\text{Fe}(\text{OH})_3$. Die Eisenkorrosionsprodukte weisen ein höheres spezifisches Volumen auf als der ursprüngliche Stahl ($\text{Fe}_{\text{metall}}$: $V_{\text{mol}} = 8 \text{ cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$, $\text{Fe}(\text{OH})_3$: $\rho = 3,12 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$, $V_{\text{mol}} = 34,3 \text{ cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$, Fe_3O_4 : $\rho = 5,17 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$, $V_{\text{mol}} = 44,8 \text{ cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$ /3-40/. Eisen reagiert in Salz und Ton unter den reduzierenden Bedingungen der Nachbetriebsphase über metastabile Phasen wie $\text{Fe}(\text{OH})_3$ fast vollständig zu Fe_3O_4 . Zur Ausfüllung des Leervolumens eines BSK 2 Behälters von 136 dm^3 müssen sich (theoretisch) 26 % der des Behälterstahls in Magnetit umsetzen (4 cm Wandstärke, $\rho = 7,0 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$, $M_{\text{BSK 2}} = 2 \text{ Mg} \sim 35000 \text{ mol}$).

Ein korrosionsbedingter Abtransport des Materials der Zircaloy Hüllrohre und Endlagerbehälters ist weder in einer Steinsalz- noch in einer Tonumgebung möglich. Zircaloy reagiert in Anwesenheit von Wasser zu geochemisch stabilem und kaum löslichem ZrO_2 /3-41/. Ebenfalls kann man mit Sicherheit unterstellen, dass die Korrosionsprodukte des Stahlbehälters am Ort verbleiben. Auflösung und Abtransport von Eisen ist unter den geochemischen Bedingungen und der beschränkten Menge an Lösung weder im Steinsalz noch in Ton zu erwarten.

3.4.3 Korrosion und Auflösung der Behälterstruktur, Vermischen von Kernbrennstoff mit dem umgebendem Wirtsgestein und Wasser/Lauge

Ist der Behälter durch Lösungen korrodiert, kommen die Brennstäbe in Kontakt mit der Lösung. Sind die Zircaloyhüllrohre beschädigt, wird der Kernbrennstoff selbst angegriffen. Zunächst wird die sogenannte „instant release fraction“ freigesetzt, d. h. der leicht lösliche Spaltproduktanteil (Cs, J,...) im Ringspalt und Plenum des Brennstabs, auf Bruchflächen und auf Korngrenzen /3-42/, /3-43/. Danach beginnt die Korrosion der UO_2 -Matrix, aus welcher Uran und Plutonium mobilisiert wird. Die Brennstoffkorrosion wird i. A. anhand der FIAP (fraction of inventory in aqueous phase) pro Zeiteinheit angegeben.

	Rate in FIAP d^{-1}		
	Pellet	Pulver	Ref.
Dest. Wasser	$10^{-6} - 10^{-8}$	-	/3-44/ /3-45/
Granit-Wasser	-	$10^{-6} - 10^{-8}$	/3-45/ /3-46/
Bentonit-Granit-Wasser		1×10^{-4}	/3-45/ /3-46/
Bentonit-Granit-Wasser	8×10^{-6}		/3-47/
5 m NaCl Lösung	5×10^{-7}	3×10^{-5}	/3-45/

Tabelle 3-8: Korrosionsraten von realen abgebrannten Kernbrennstoffen bezogen auf das in Lösung freigesetzte Strontium
Experimenten von FZK-INE über 400 - 1600 Tage

Es zeigt sich in Tabelle 3-8 die höchste Korrosionsgeschwindigkeit im Bentonit-Granit-Wasser-System. Auch intakte Pellets werden innerhalb von einigen Jahrhunderten im Bentonit-System korrodiert, dieser Prozess dauert im NaCl-System mehrere Jahrtausende. Dadurch werden nur leichtlösliche Elemente mobilisiert, die Lösungskonzentrationen von Uran und Plutonium sind aber durch Ausfällung neuer fester Phasen begrenzt. Zum Vergleich sind in Tabelle 3-9 gemessenen Konzentrationen von U und Pu angegeben.

Abfall	Lösung	PH	Uran	Plutonium
Abgebrannte Kernbrennstoffe			Oxidation des UO_2 im Brennstoffgitter durch Radiolyse zu U(VI)	
	Q-Lauge	pH ~ 7	10^{-5} m	$\sim 10^{-7}$ m
	NaCl-Lösung	pH ~ 9.5 Freisetzung von Cs von Korngrenzen	ox: 10^{-5} m red: 10^{-7} m	$\sim 10^{-9}$ m
	Granitwasser	pH ~ 7.0 - 8.4	ox.: 8×10^{-5} - 5×10^{-9} m red.: 2×10^{-7} - 5×10^{-9} m	$\sim 10^{-7}$ m
	Tonwasser	pH ~ 8.4 - 9.3	ox.: 8×10^{-7} - 5×10^{-7} m red.: 2×10^{-6} - 1×10^{-9} m	

Tabelle 3-9: Beobachtete Uran- und Plutoniumkonzentrationen in verschiedenen Medien

Quellen: /3-48/, /3-49/, /3-50/

Transportphänomene in Tongestein bzw. Bentonitversatz erfolgen durch Diffusion. Hierzu ist ein Konzentrationsgradient in der gelösten Phase erforderlich. Die Ausbreitung kann dann entsprechend der Fick'schen Gesetze berechnet werden /3-51/. Bei Vorliegen von Druckgradienten, z. B. durch Gasentwicklung oder für Durchflussszenarien, können advective Strömungsprozesse stattfinden. Im Steinsalz bzw. in mit Salzgrus verfüllten Strecken können ebenfalls Diffusion und advective Transportprozesse stattfinden. Dies gilt besonders solange der Salzgrus wenig kompaktiert ist. Der advective Transport kann längs der Einlagerungsstrecken/Bohrlöcher erfolgen.

Für beide Wirtsgesteine ist eine Kontamination des umgebenden Gesteins und des anstehenden Wassers bzw. der Salzlösung nicht ausgeschlossen. Allerdings sind die möglichen Lösungskonzentrationen in diesen Bereichen ($8 \times 10^{-5} \text{ mol L}^{-1}$ entspricht $0,02 \text{ g L}^{-1}$) weit unterhalb der Konzentration an Kernbrennstoffen, wie sie in Abbildung 3-2 angegeben sind ($> 10 \text{ g L}^{-1}$).

3.4.4 Zusammenfließen des Kernbrennstoffs aus mehreren Behältern durch Fließbewegung im Wirtsgestein

In den verschiedenen Performance Assessment Studien zur Endlagerung in Ton bzw. mit Bentonit-Barrieren werden folgende Daten verwendet, anhand deren man die Möglichkeiten des Transportes von Uran bzw. Plutonium abschätzen kann (Tabelle 3-10). Es muss jedoch darauf hingewiesen werden, dass diese Angaben nur für die jeweils unterstellten Bedingungen gelten und keinesfalls generell verwendet werden dürfen.

Parameter	Bezeichnung	Variationsbereich
Hydraulische Parameter im Bentonit		
Diffusionskoeffizient (speciesabhängig)		$10^{-13} - 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$
Löslichkeitsgrenze für U mol dm^{-3}		2×10^{-7} (pessimistisch) /3-52/ 3×10^{-9} (Referenz) /3-53/ 5×10^{-7} (pessimistisch) /3-53/
Porosität		$\sim 0,4$ /3-52/
Sorptionskoeffizient (Kd) für U(IV) $\text{m}^3 \text{ kg}^{-1}$		bis 1 /3-52/ 40 (Referenz) /3-53/

Der Variationsbereich wurde aus den maximalen und minimalen Werten aus der Literatur festgelegt.

Tabelle 3-10: Charakteristika für Transportprozesse im Wirtsgestein Ton

Die Bewertung der Transportprozesse ist im folgenden Kapitel dargestellt.

3.4.5 Auflösung, Migration und Ablagerung von Kernbrennstoff nach dem Beispiel einer geologischen Lagerstättenbildung

Diffusionsprozesse können nur stattfinden, wenn Konzentrationsgradienten vorliegen. Diese Gradienten liegen immer zwischen dem Abfallprodukt und dem umgebenden Versatzmaterial/Gestein vor oder werden durch chemische Reaktionen der gelösten Kernbrennstoffe in kleinen Dimensionen aufgebaut. Potentielle Reaktionen sind Sorptions- oder Redoxprozesse, bzw. Speziationsänderungen durch Änderungen der Lösungszusammensetzung. Die möglichen Anreicherungen von Kernbrennstoff durch Sorptionsprozesse an korrodierten Behältermaterialien wurden für das Wirtsgestein Steinsalz hinreichend diskutiert /3-5/, /3-6/ und k_{inf} Rechnungen durchgeführt. Es konnte selbst für MOX bei Unterstellung einer Pu Aufkonzentrierung keine Möglichkeit aufgezeigt werden, die zu Bildung einer kritischen Anordnung führte.

Diffusionsphänomene

Wie oben angegeben, kann die Umgebung eines BE Behälters nach Verlust seiner Integrität kontaminiert werden. Die Konzentration C in der Lösung diffundiert in Richtung des Gradienten, wobei die diffundierende Substanzmenge als Funktion vom Abstand L und der Zeit t nach der Gleichung (5.16) berechnet werden kann.

$$Q = \frac{D \cdot C}{L} \cdot \left(t - \frac{L^2}{6 \cdot D} \right) \quad (3.16)$$

Der Diffusionskoeffizient D in dieser Formel kann aus Tabelle 3-10 entnommen werden. In einem Meter Abstand von einer Quelle ist nach ca. 2000 Jahren die dort insgesamt angelangte Kernbrennstoffmenge proportional zur Zeit. Bei einer konstanten Konzentration $1 \times 10^{-5} \text{ mol dm}^{-3}$, sind dort nach 1 Mio Jahren knapp 10 g Kernbrennstoff pro m^2 angelangt. Diese Konzentration ist zwar radiologisch aber nicht bezüglich der Kritikalität relevant. Für größere Entfernungen ist die ankommende Menge geringer.

Advektiver Transport

Die Darcy Geschwindigkeiten in Nahfeld der Abfälle innerhalb einer Tonformation werden mit $\sim 10^{-14} \text{ m s}^{-1}$ für Opalinus Ton /3-36/ bis $10^{-12} \text{ m s}^{-1}$ für Boom Clay /3-54/ angegeben. Nach den Festlegungen des AkEnd /3-55/ darf die Gebirgsdurchlässigkeit des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs höchstens $10^{-10} \text{ m s}^{-1}$ und seine Mächtigkeit muss mindestens 100 m betragen. Mit einer Grundwasserfließgeschwindigkeit $10^{-10} \text{ m s}^{-1}$ entsprechend $3,15 \times 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{a}^{-1}$ betragen die maximal durch die Einlagerungsbehälter transportierten Lösungsvolumina

- POLLUX Behälter: $6,021 \text{ dm}^3 \cdot \text{a}^{-1}$
- BSK 3 Kokille: $0,300 \text{ dm}^3 \cdot \text{a}^{-1}$
- BSK 2 Kokille: $0,270 \text{ dm}^3 \cdot \text{a}^{-1}$

Mit den Lösungskonzentrationen von Plutonium ($10^{-7} \text{ mol dm}^{-3}$, Tabelle 3-9) können damit innerhalb eines Behälters (POLLUX) maximal $1,5 \times 10^{-4} \text{ g Pu}$ pro Jahr transportiert werden. Um 500 g Plutonium (kritische Masse siehe Tabelle 3-1) zu transportieren, sind ca. 3 Mio. Jahre, d. h. die 10 fache Halbwertszeit von ^{239}Pu erforderlich. Insofern ist damit eine Plutoniumaufkonzentrierung nicht möglich. Für Uran sind zum Ansammeln von 500 g im Steinsalz ($10^{-5} \text{ mol dm}^{-3}$) $3,5 \times 10^4$ Jahre erforderlich, im Ton-System ist der erforderliche Zeitraum deutlich länger. Bei diesen Abschätzungen wurde keinerlei Rückhaltung des Urans an anderen Stoffen unterstellt. Der Verzögerungsfaktor eines Radionuklids gegenüber dem Grundwasser infolge von Sorptionsvorgängen ergibt sich zu

$$R_d = \frac{1 - \varepsilon}{\varepsilon} \cdot \rho \cdot K_d \cdot f \quad (3.17)$$

mit: ε : Porosität ρ : Dichte K_d : Sorptionskoeffizient Gl. (3.18)
f: Anteil des den Sorptionskoeffizient bestimmenden Minerals

Im Rahmen des kanadischen Endlagerprogramms wurden Sorptionsdaten von Radionukliden unter anderem an verschiedenen Eisen und Tonphasen angegeben /3-56/, wobei die Grundwasserbedingungen von Whiteshell Research Area unterstellt wurden. Die Sorptionskoeffizienten in Tabelle 3-11 sind zur Orientierung angegeben. Unter Verwendung dieser Daten, der Dichte von $1,9 \text{ kg-dm}^{-3}$ und der Porosität von 40% sind advektive Transportgeschwindigkeiten der Actiniden im MX 80 Versatzmaterial um mehr als einen Faktor 1000 langsamer als die Grundwasserfließgeschwindigkeit. Im Steinsalzversatz ist besonders für Uran die Sorption gering, so dass kaum eine Verzögerung gegenüber der Lösung zu erwarten ist. Bei diesen Abschätzungen ist anzumerken, dass eine lineare Sorptionsisotherme unterstellt wurde und dass dabei die Desorption mit der gleichen Rate wie die Sorption erfolgt.

Man beachte, dass die Sorptionskoeffizienten für Uran unter reduzierenden Bedingungen nach Tabelle 3-10 und für U(IV) nach Tabelle 3-11 sich unterscheiden. Diese Tatsache zeigt, dass die jeweiligen Grundlagen der Experimente für die beabsichtigten Anwendungen nicht hinreichend berücksichtigt werden können.

3.4.6 Trennung von Uran und Plutonium auf geochemischem Weg

Die Gesamtmasse am Plutonium im BSK 2 Behälter beträgt ca. 11,4 kg bzw. 17,1 kg im BSK 3 und 57,0 kg im POLLUX Behälter mit 10 BE zum Einlagerungszeitpunkt (berechnet mit Code OREST). Eine Trennung von Uran und Plutonium auf geochemischem Weg ist auf der Basis des heutigen Kenntnisstandes kaum vorstellbar. Einige Möglichkeiten wurden für das Salzsystem diskutiert /3-5/, /3-6/.

Je nach Größe des chemischen Potentials der Ausgangsstoffe μ^{reactant} besteht aus thermodynamischer Sicht die Möglichkeit, dass Pu in einer festen Phase eingebaut werden kann. Am Beispiel von Sorptions- bzw. Redoxprozessen können die maximal möglichen Aufkonzentrierungen diskutiert werden. Als Sorbens für eine Aufkonzentrierung von Kernbrennstoffen werden die Korrosionsprodukte der Behälterwerkstoffe betrachtet, da diese im Nahbereich der Abfälle – dort, wo auch die höchsten Pu-Konzentrationen auftreten können – hinreichend verfügbar sind. Messungen im INE ergaben eine spezifische N_2 BET-Oberfläche der Stahl-Korrosionsprodukten von $10 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ /3-57/.

	oxidierende Bedingungen		reduzierende Bedingungen		
Minerale	U	Pu	U	Pu	Ref.
Biotit	16	24	66	1600	/3-56/
Calcit	26	105	83	85	“
Chlorit	100	370	60	160	“
Epidot	3,1	200	76	54	“
Gips	2	160	55	100	“
Goethit	1600	330	600	100	“
Hämatit	1600	1200	1000	1400	“
Illit	77	1900	260	1800	“
Kaolinit	1600	850	1000	2900	“
Mikroclin	2	10	2	600	“
Muscovit	124	70	470	38	“
Plagioklas	2	10	2	10	“
Quarz	4,5	11	60	14	“
Halit	0	20-300			/3-58/
Anhydrit	0,5	361			/3-59/
Callovo- Oxford Ton				600-1100	/3-60/

Tabelle 3-11: Sorptionskoeffizienten für Uran und Plutonium an relevanten Mineralphasen in ml g⁻¹

Sorption:

Angaben zu Sorptionskoeffizienten von Plutonium auf Eisenkorrosionsprodukten hängen naturgemäß stark von dem jeweiligen Oxid/Hydroxid, dem pH und der Größe der Oberfläche ab. In der Literatur werden K_d-Werte für Plutonium angegeben (Tabelle 3-11).

Unter Verwendung des K_d-Ansatzes für konstante geochemische Bedingungen hängt die maximale Pu-Beladung auf den Korrosionsprodukten von der Pu-Konzentration in der Lösung ab (siehe Gl. (3.18)).

$$K_d(\text{ml} \cdot \text{g}^{-1}) = \frac{S(\text{mol} \cdot \text{g}^{-1})}{C(\text{mol} \cdot \text{mL}^{-1})} \quad (3.18)$$

S: sorbierte Menge

C: gelöste Menge

Mit einem K_d -Wert für Goethit (1600 ml g^{-1}) und der Pu-Konzentration von $1 \times 10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{dm}^{-3}$, ergibt sich eine Pu-Beladung der Korrosionsprodukte von 0.4 g kg^{-1} . Nach Tabelle 3-1 ist die erforderliche Konzentration, um mit reinem ^{239}Pu eine Kritikalität zu erreichen, um den Faktor 250 höher.

Die Sorptionsplätze des korrodierten Behältermaterials sind nicht spezifisch für Plutonium, sondern es können auch andere Elemente – insbesondere Uran – sorbiert werden. Literaturwerte (Tabelle 3-11) zu Sorptionskoeffizienten von U und Pu auf Eisenoxiden deuten keine bevorzugte Sorption von U gegenüber Pu an, das maximale Verhältnis der K_d -Werte der beiden Elemente liegt für Goethit unter reduzierenden Bedingungen bei 6. Bei einigen anderen Mineralen sind die Unterschiede deutlich größer (z. B. Illit, NaCl und Anhydrit), jedoch sind die absoluten Sorptionsdaten wesentlich niedriger als in Falle der Eisenphasen.

Oberflächenausfällung/Redoxphänomene:

Als Sorbens wird auch hier ein korrodiertes Stahl (Polluxbehälter) betrachtet. Die Korrosion führt zur Oxidation des Eisen und zur Bildung von komplexen Eisenhydroxiden ($\text{Fe}(\text{OH})_x$), welche sich in kristalline Korrosionsprodukte Magnetit umwandeln können. Geht man davon aus, dass die Eisenkorrosionsprodukte – ähnlich wie andere sorbierende Stoffe – eine Dichte der Sorptionsplätze von etwa $5 \text{ Sites} \cdot \text{nm}^{-2}$ aufweisen, an denen eine Sorption bzw. andere Reaktionen stattfinden können, ergibt sich mit der Dichte von $\text{Fe}(\text{OH})_3$ eine maximale Belegungsdichte von $5 \times 10^{19} \text{ Sites} \cdot \text{g}^{-1}$ entsprechend $1,6 \times 10^{20} \text{ Sites} \cdot \text{cm}^{-3}$ (dies entspricht $2,6 \times 10^{-4} \text{ mol} \cdot \text{cm}^{-3}$ bzw. $8,3 \times 10^{-5} \text{ Sites} \cdot \text{g}^{-1}$). Experimentelle Daten für amorphes $\text{Fe}(\text{OH})_3$ ergeben eine vergleichbare Größenordnung /3-61/. Damit würde bei selektiver reduktiver Plutoniumsorption auf den korrodierten Behältermaterialien die Plutoniumkonzentration in den Korrosionsprodukte bei $0,06 \text{ g cm}^{-3}$ liegen. Nach /3-61/ ist die erforderliche Konzentration um mit reinem ^{239}Pu eine Kritikalität zu erreichen um etwa vier Größenordnungen höher.

Geochemische Gradienten:

Nach Zutritt von Lösungen in die Endlagerbehälter können durch Diffusionsprozesse aufgrund von chemischen Potentialunterschieden Umverteilungen der Elemente innerhalb des jeweiligen Endlagerbehälters stattfinden. Als Konsequenz dieser Prozesse können feste Mineralphasen entstehen. Die Art dieser Phasen hängt von den jeweiligen geochemischen Bedingungen und dem Vorhandensein von entsprechenden Grundwasserinhaltsstoffen ab. Besonders großes Potential hierfür bieten Oxide, Hydroxide und Carbonate. Besonders wichtig für Kritikalitätsbetrachtungen sind jene

Phasen, die Kristallwasser in ihre Struktur eingebaut haben. Die folgende Tabelle 3-12 zeigt einige wesentliche Uranphasen und ihre Eigenschaften.

Die höchsten Moderationsverhältnisse findet man für einige U(VI)-Phosphat und -Sulfatphasen. Kristallwasserhaltige U(IV)-Phasen, wie sie unter den reduzierenden Bedingungen in Tongestein zu erwarten sind, weisen deutlich weniger Kristallwasser und somit ein schlechteres Moderationsverhältnis auf.

Formel	Name	$\rho_{\text{theor.}}$ [g·ml ⁻¹]	$\rho_{\text{exp.}}$ [g·ml ⁻¹]	Molmasse [g·mol ⁻¹]	H/U
UO ₃ · 2H ₂ O	Metaschoepite	4,998	---	322	4
Mg(UO ₂) ₂ (PO ₄) ₂ · 8H ₂ O	Metasaleeite	3,288	---	898	8
Ca(UO ₂) ₂ (PO ₄) ₂ · 10H ₂ O	Autunite	3,098	3,15	950	10
MgUO ₂ (SO ₄) ₂ · 11H ₂ O		2,478	---	684	22
UH ₆ (UO ₂ SiO ₄) ₆ · 30H ₂ O	Swamboite	4,064	4,03	2956	10
MgUO ₂ (SO ₄) ₂ · 10H ₂ O		2,384	2,37	666	20
Mg(UO ₂) ₂ (PO ₄) ₂ · 9H ₂ O	Saleeite	3,119	3,2	916	9
CaU ₂ O ₇ · 11H ₂ O	Meta-calciouranoite	---	4,62	826	11
Na ₂ Ca(UO ₂)(CO ₃) ₃ · 6H ₂ O	Andersonite	2,876	2,8	644	12
Ca ₂ (UO ₂)Si ₅ O ₁₆ · 9H ₂ O	Haiweeite	3,317	3,034	908	18
UO ₄ · 4H ₂ O	Studtite	3,647	3,58	374	8
Ca ₃ (UO ₂) ₄ Si ₁₀ O ₃₅ · 24H ₂ O	Haiweeite	3,096	---	2472	12
Ca ₃ Mg ₃ (UO ₂) ₂ (CO ₃) ₆ (OH) ₄ · 18H ₂ O	Rabbittite	2,692	2,6	1484	18

Tabelle 3-12: Uranphasen, Dichten, Molmassen und Moderationsverhältnisse

Formel	$\rho_{\text{theor.}}$ [g·ml ⁻¹]	$\rho_{\text{exp.}}$ [g·ml ⁻¹]	Molmasse [g·mol ⁻¹]	H/Pu
Pu(OH)CO ₃ · xH ₂ O	---	---	339	5
Pu(SO ₄) ₂ · 4H ₂ O	3,759	---	508	8
HPuO ₂ PO ₄ · xH ₂ O	---	---	390	5

Tabelle 3-13: Kristallwasserhaltige anorganische Plutoniumphasen, Dichten, Molmassen und Moderationsverhältnisse

Eine kristallwasserhaltige Pu(III)-Phase, wie sie unter den stark reduzierenden Bedingungen in Tongestein vorstellbar ist, ist Pu(OH)CO₃·xH₂O, wobei x=2 angenommen wurde. Phosphate und Sulfate scheinen in den beiden betrachteten Endlagerwirsgesteinen weniger relevant.

3.5 Kritikalitätsanalysen

Kritikalitätsanalysen für die Endlagerung von BSK 3 Behälter mit MOX Brennelementen in Steinsalz wurden durchgeführt und publiziert /3-5/, /3-6/. Für diese Rechnungen wurde von folgenden Konzentrationen ausgegangen:

	U Konzentration	Pu Konzentration	Anreicherung gemäß Kap. 3.2
Verglaste HAW Konzentrate ^a	12,5 g kg ⁻¹	0,3 g kg ⁻¹	1,5 %
Abgebrannter UOX LWR Brennstoff ^b	936 g kg ⁻¹	11,2 g kg ⁻¹	1,5 %
Abgebrannter MOX LWR Brennstoff ^c	926 g kg ⁻¹	40,3 g kg ⁻¹	4,2 - 2,3 %
Lagerstäbe ^d	-	27 g kg ⁻¹	3,4 %

^a COGEMA Spezifikation

^b Biblis Reaktor, Anfangsanreicherung: 4% ²³⁵U, Abbrand: 50 GWd/t

^c Biblis Reaktor, Anfangsanreicherung: 0,7% ²³⁵U und 3,5% ²³⁹Pu, Abbrand: 50 GWd/t

^d Unqualifizierte MOX Brennelemente als Lagerstäbe /3-62/

Tabelle 3-14: Konzentrationen an spaltbarem Material in verschiedenen Abfällen

Bei den zitierten Rechnungen wurden alle Pu-Isotope wie ²³⁹Pu behandelt. Damit ergeben sich folgende Anreicherungs-faktoren /3-14/:

Zeit / Jahren	Anreicherungs-faktor (²³⁵ U+Pu _{tot})/(U+Pu _{tot})
10 ¹	4,2
10 ³	3,6
10 ⁴	2,9
10 ⁵	2,3

Tabelle 3-15: Anreicherungs-faktoren für MOX

Die Anreicherungs-faktoren der Kernbrennstoffe des MOX sind nach 10000 Jahren doppelt so hoch wie die Werte, die im Rahmen dieser Studie verwendet werden. Zusätzlich wurde die Auswirkung von bis zur 10-fach höheren Anreicherungen von Pu in der U-Matrix diskutiert. Aus diesem Grunde ergaben sich in den beiden genannten Publikationen für einige Rechenfälle k_{inf} -Werte ≥ 1 .

Als Beispiel für die Multigruppenrechnung ist in Tabelle 3-14 der Multiplikationsfaktor k_{inf} als Funktion der Beladung der Korrosionsprodukte des Stahlbehälters mit Uran und Plutonium für MOX unterschiedlichen Alters aufgetragen. Bei diesen Rechnungen wurde keine Anwesenheit von Chlorid-Ionen unterstellt.

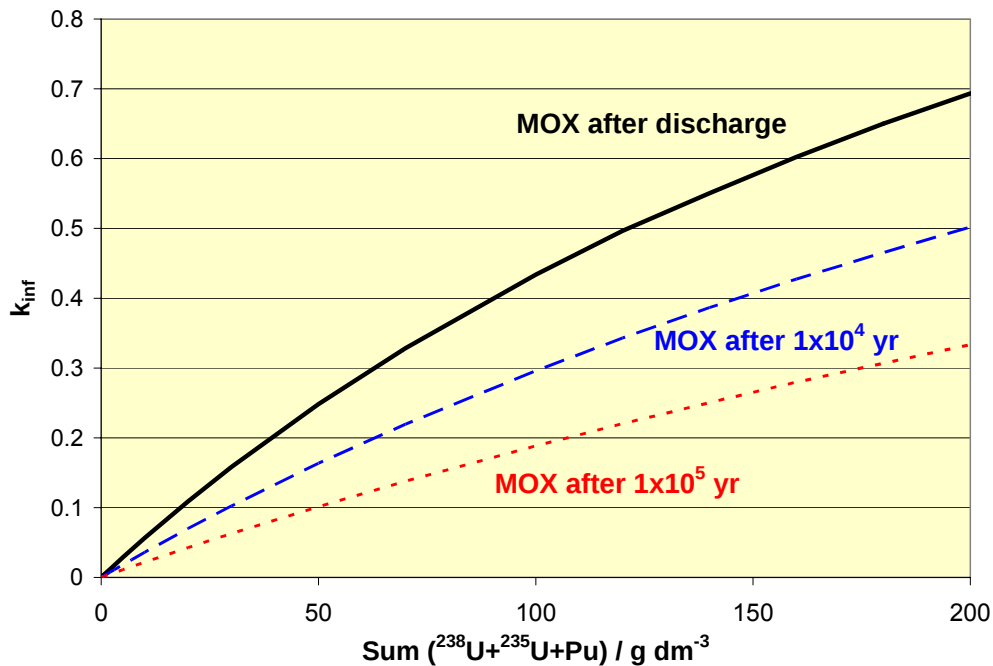


Abbildung 3-7: k_{inf} als Funktion der Kernbrennstoffbeladung der Eisenkorrosionsprodukte ohne Anwesenheit von Chlorid-Ionen.

Die Kurven basieren auf 172-Gruppenrechnungen mit der Isotopenzusammensetzung von MOX (siehe Abbildung 3-7).

Man entnimmt Abbildung 3-7, dass trotz des höheren Anreicherungsgrades an Kernbrennstoff bei Anwesenheit von korrodiertem Behältermaterial, die Neutronenabsorption so hoch ist, dass k_{inf} immer deutlich unter eins bleibt. k_{inf} -Werte ≥ 1 ergaben sich nur für Aufkonzentrierung des Plutoniums gegenüber MOX ($t = 0$) um etwa einen Faktor 5. Da für diese Abbildung kein Chlorid berücksichtigt wurde, gelten diese Daten auch für die Endlagerung in Ton. Bei Anwesenheit von Chlorid in Lösungen oder als Bestandteil der festen Phasen (Einbau in Fe-Korrosionsprodukte), sind verschiedene Rechenfälle in den genannten Arbeiten dargestellt.

3.5.1 Ergebnisse von Kritikalitätsanalysen im Steinsalz-System

Kritikalitätsanalysen für MOX in Steinsalz erstreckten sich auf unterschiedliche Fälle: Für Lösungszutritte (min. 6 mol NaCl-Lösung) in die BSK 3 bzw. Pollux Behälter, wird die ursprüngliche Geometrie der Brennstäbe und das maximale Leervolumen, beibehalten. In diesem Fall ist Kritikalität für relevante Chloridkonzentrationen der Salzlösung nicht möglich. Werden nach langen Zeiten Spaltstoffe in gesättigter NaCl Lösung aufgelöst, kann eine Kritikalität unter den geochemisch relevanten Bedingungen ebenfalls nicht auftreten.

Gelöstes Uran/Plutonium kann an Oberflächen sorbiert werden: Als Sorbens für Spaltmaterial werden die Korrosionsprodukte der Stahlbehälter betrachtet. Diese Korrosionsprodukte sorbieren Actinidenelemente sehr effektiv. Für unterschiedliche Beladungen der Sorptionplätze dieser Produkte wurde k_{inf} berechnet. Nur im extrem unrealistischen Fall von nahezu ausschließlicher Sorption von ^{239}Pu , ergibt sich $k_{\text{inf}} \geq 1$.

Unterschiedliche Sorptions- und Ausfällungs-Prozesse wurden diskutiert: In der Natur werden reine Phasen selten beobachtet. Man kann davon ausgehen, dass Pu in Mischphasen bzw. in feste Lösungen zusammen mit Uran und anderen Schwermetallen eingebaut wird. Unter stagnierenden Bedingungen sind die Lösungen in Bezug auf U und Pu gesättigt und Co-Präzipitation wird erwartet. Wegen des hohen Neutronenabsorptionsquerschnitts von Uran ist eine Kritikalität nicht möglich, solange Uran und Plutonium im gleichen Massenverhältnis wie im MOX vorliegen.

Nur im Fall nicht-stagnierender Lösungsbewegungen, könnten untersättigte Lösungen in Bezug auf die spaltbaren Elemente entstehen. Aufgelöstes U bzw. Pu könnte auf verschiedenen Substraten sorbiert werden und so zu einer Aufkonzentrierung des Pu gegenüber Uran führen. Dieser Prozess ist aber nur solange möglich, als ^{239}Pu noch nicht zu ^{235}U zerfallen ist. Nur im Fall von extrem hohen Pu Akkumulationen (Pu-Konzentration um ca. Faktor 5 höher als im MOX) und ohne Chlorverbindung in den Sorbentien, könnte $k_{\text{inf}} \geq 1$ eintreten. Hierbei wurde aber weder die erforderlichen kritischen Massen noch Geometrien betrachtet.

Es wurde gezeigt, dass das Auftreten einer Kritikalität in einer salinaren Umgebung für MOX-Brennelemente zu einem hohen Grad an Sicherheit ausgeschlossen werden kann, da keine Möglichkeiten der selektiven Anreicherung von spaltbarem U und Pu existieren.

3.5.2 Ergebnisse von Kritikalitätsanalysen im Ton/Bentonit-System

Kritikalitätsanalysen für die im Rahmen dieser Studie vorgegebenen Kernbrennstoffkonzentrationen im Abfall erfordern, wie eingangs gezeigt, keine detaillierten k_{inf} oder k_{eff} Rechnungen. Zum Vergleich des Einflusses der verschiedenen Wirtsgesteine/Versatzstoffe werden die makroskopischen Absorptions- und Streuwirkungsquerschnitte für die relevanten Systeme herangezogen. Zusätzlich zu den Tonsystemen werden einige weitere relevante Systeme analysiert:

NaCl:	Reines NaCl, mit Dichte $2,17 \text{ g ml}^{-1}$. Der Unterschied bei Verwendung der Zusammensetzung wie in 3.2 angegeben liegt im Prozentbereich.
NaCl mit 30% Wasser:	Dieses System wird zur Beschreibung eines porösen (30 Vol.%) Salzversatzes verwendet. (Dichte $1,83 \text{ g ml}^{-1}$)

Fe:	Stellvertretend für den Stahlbehälter wird reines Eisen betrachtet. (Dichte $7,0 \text{ g ml}^{-1}$)
Fe_3O_4 :	Magnetit ist das sowohl in Steinsalz- als auch in Tonumgebung zu erwartende thermodynamisch stabile Korrosionsprodukt. (Dichte $5,17 \text{ g ml}^{-1}$)
$\text{Fe}(\text{OH})_3$:	Hydroxidische Eisenkorrosionsprodukte (Dichte $3,12 \text{ g ml}^{-1}$)
H_2O :	Wasser als Vergleich (Dichte $1,0 \text{ g ml}^{-1}$)
Behälter ohne:	Gesamter Materialbestand inklusive UO_2 , Zircaloy, etc. im Innern einer BSK 2-Behälters in Ton-Umgebung
Behälter NaCl:	Gesamter Materialbestand im Innern einer BSK 2-Behälters in Steinsalzumgebung
MX 80 1,9:	MX 80 nach Tabelle 3-4, Dichte $1,9 \text{ g cm}^{-3}$
MX 80 20% H_2O :	MX 80 nach Tabelle 3-4 wobei 20 % Wasseraufnahme unterstellt wurde.

Die Ergebnisse dieses Vergleichs sind in Abbildung 3-8 gezeigt.

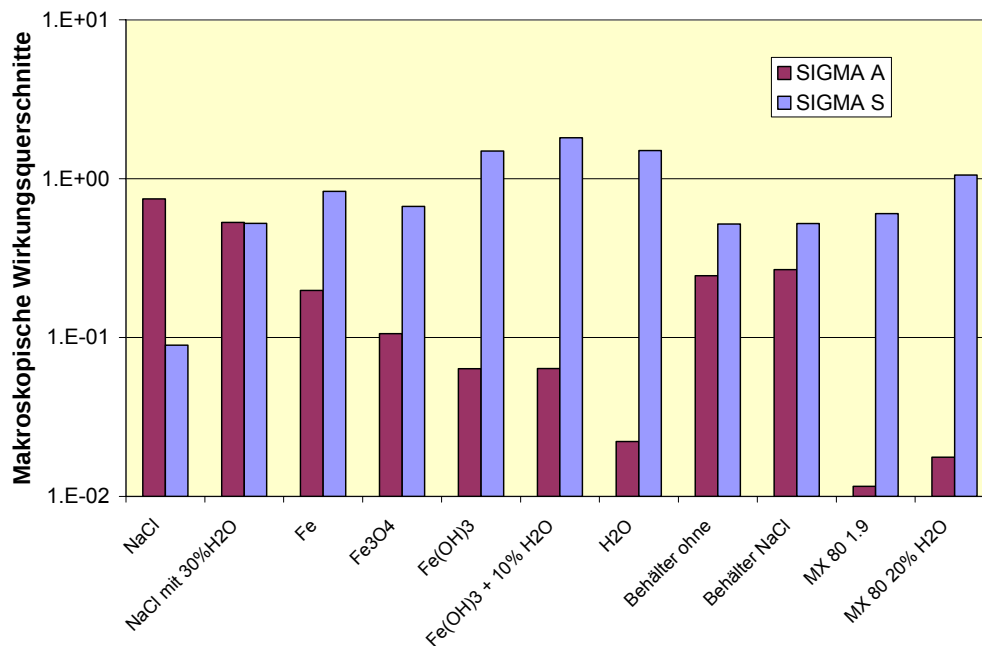


Abbildung 3-8: Makroskopische Absorptions- (A) und Streuwirkungsquerschnitte (S) für relevante Systeme (Dimension: cm^{-1})

Zahlenwerte sind in Tabelle 3-16 aufgelistet. Die Ergebnisse der Rechnungen in Abbildung 3-8 lassen sich folgendermaßen interpretieren:

Das reine NaCl-System hat einen makroskopischen Absorptionsquerschnitt für Neutronen von $0,75 \text{ cm}^{-1}$ und einen Streuquerschnitt von ca. $0,09 \text{ cm}^{-1}$. Im System NaCl mit 30% Wasser bleibt der Absorptionsquerschnitt ebenfalls hoch bei $0,5 \text{ cm}^{-1}$, der Streuquerschnitt steigt auf $0,5 \text{ cm}^{-1}$, wodurch dieses System besser moderiert als reines NaCl. Eisen und seine Korrosionsprodukte zeigen hohe Streuquerschnitte, wobei $\text{Fe}(\text{OH})_3$ bzw. $\text{Fe}(\text{OH})_3$ mit einem Gehalt an 10 % Wasser Streuquerschnitte höher als Wasser aufweisen. Dies liegt darin begründet, dass pro Volumeneinheit in diesen Verbindungen mehr Protonen verfügbar sind als in Wasser. Die Absorptionsquerschnitte sind um den Faktor 3 höher als im Wasser. Die Ton-Systeme MX 80 1.9 und MX 80 mit Wasser sind bezüglich der Neutronenabsorption und Streuung vergleichbar mit reinem Wasser, während die Inhaltstoffe der Behälter durch das Uran hohe Neutronenabsorptionsquerschnitte aufweisen.

	Dichte ρ g ml^{-1}	$\Sigma\sigma_a$ (3.1) cm^{-1}	$\Sigma\sigma_s$ cm^{-1}	Diffusions konstante D Gl. (3.6) cm	Diffu- sions- länge L Gl. (3.5) Cm	$\sqrt{\tau}$ Gl. (3.7) cm
NaCl	2,17	7,46E-01	8,94E-02	2,41E-01	0,568	0,008
NaCl mit 30%H ₂ O	1,83	5,29E-01	5,23E-01	2,60E-01	0,700	0,428
Fe	7,00	1,98E-01	8,30E-01	1,97E-01	0,998	0,029
Fe ₃ O ₄	5,17	1,06E-01	6,70E-01 1,49E+0	2,64E-01	1,580	0,043
Fe(OH) ₃	3,12	6,36E-02	0 1,81E+0	2,41E-01	1,948	1,109
Fe(OH) ₃ + 10% H ₂ O	3,12	6,37E-02	0 1,50E+0	2,14E-01	1,831	1,430
H ₂ O	1,00	2,22E-02	0	3,25E-01	3,826	1,380
Behälter ohne	9,16	2,45E-01	5,19E-01	2,98E-01	1,102	0,147
Behälter NaCl	9,16	2,67E-01	5,22E-01	2,87E-01	1,036	0,148
MX 80 1,9	1,89	1,16E-02	6,04E-01 1,06E+0	5,84E-01	7,110	0,421
MX 80 20% H ₂ O	1,89	1,77E-02	0	3,93E-01	4,716	0,862

Tabelle 3-16: Berechnete Neutronenabsorptions-, Streu- und Moderationseigenschaften für die untersuchten Systeme

3.6 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

In Tabelle 3-17 und Tabelle 3-18 sind die in der vorliegenden Studie durchgeführten Kritikalitätsanalysen für die Endlagerung in Steinsalz bzw. in Tongestein zusammengestellt. Es zeigte sich, dass für das vorgegebene Kernbrennstoffinventar auch unter Annahme von sehr unwahrscheinlichen Szenarien eine Kritikalität in beiden Wirtsgesteinen und für alle bisherigen Einlagerungskonzepte ausgeschlossen werden kann.

Völlig verschieden stellt sich die Situation dar, wenn abgebrannte Kernbrennstoffe mit höheren Konzentrationen an ^{235}U und ^{239}Pu betrachtet werden. Als Beispiel wurde ein Vergleich eines Brennstoffs der Zusammensetzung 3,0% ^{239}Pu , 0,8% ^{235}U , ^{238}U Rest auf der Basis der vereinfachenden Gleichungen (3.9) –(3.15) herangezogen. Deshalb sollen die Zahlen in der Tabelle 3-19 nur als relative Werte angesehen werden.

Konzept	Steinsalz /3-5/, /3-6/		Tongestein	
Szenario	POLLUX Streckenlage- rung	BSK 3 Bohrloch (300 m)	POLLUX Streckenlagerung	BSK 2 Tiefe 50 m
Mechanische Veränderungen in den Endlagergebunden	nicht relevant	nicht relevant	nicht relevant siehe Kap. 3.4.1	nicht relevant siehe Kap. 3.4.1
Leckage von Behältern, Eindringen von Wasser bzw. Lauge	Voraussetzung für Kritikalität keine Kritikalität möglich, da hohe Cl-Konzentration	Voraussetzung für Kritikalität keine Kritikalität möglich, da hohe Cl-Konzentration	Voraussetzung für Kritikalität geringe Cl-Konzentration keine Kritikalität möglich, siehe Kap. 3.4.2	Voraussetzung für Kritikalität geringe Cl-Konzentration keine Kritikalität möglich, siehe Kap. 3.4.2
Korrosion und Auflösung der Behälterstruktur, Vermischen von Kernbrennstoff mit dem Wirtsgestein	Bildung von Cl-haltigen Korrosionsprodukten K_{inf} Berechnungen durchgeführt	Bildung von Cl-haltigen Korrosionsprodukten	Eisenphasen mit unterschiedlichem Wassergehalt, siehe Kap.3.4.3	Eisenphasen mit unterschiedlichem Wassergehalt, siehe Kap.3.4.3

Tabelle 3-17: Zusammenfassung der Kritikalitätsanalysen für die Endlagerung in Steinsalz bzw. in Tongestein (Teil 1)

Konzept	Steinsalz /3-5/, /3-6/		Tongestein	
Zusammenfließen des Kernbrennstoffs aus mehreren Behältern durch Fließbewegung	Advektive Transportprozesse als Funktion der Zeit Zusammenfließen des Kernbrennstoffs aus mehreren Behältern nicht vorstellbar	Diffusion und advektive Transportprozesse zu langsam Zusammenfließen des Kernbrennstoffs aus mehreren Behältern nicht vorstellbar	Diffusion und advektive Transportprozesse zu langsam siehe Kap. 3.4.5 Sorption, Ausfällung/Redoxreaktionen und Phasenbildung siehe Kap. 3.4.6	Diffusion und advektive Transportprozesse zu langsam siehe Kap. 3.4.5 Sorption, Ausfällung/Redoxreaktionen und Phasenbildung siehe Kap. 3.4.6
Auflösung, Migration und Ablagerung von Kernbrennstoff nach dem Beispiel einer geologischen Lagerstättenbildung	nicht relevant	nicht relevant	Für Kernbrennstoffinventar nach 3.2.2 nicht relevant. Bei MOX durch Bildung von kristallwasserhaltigen Phasen	Für Kernbrennstoffinventar nach 3.2.2 nicht relevant.
Trennung von Uran und Plutonium auf geochemischem Weg sowie Anreicherung von Plutonium	Kein Prozess vorstellbar, der zur Trennung von Uran und Plutonium auf geochemischem Weg führt. Isotopentrennung nicht möglich.	Kein Prozess vorstellbar, der zur Trennung von Uran und Plutonium auf geochemischem Weg führt. Isotopentrennung nicht möglich.	Kein Prozess vorstellbar, der zur Trennung von Uran und Plutonium auf geochemischem Weg führt. Isotopentrennung nicht möglich. Günstige Moderationsverhältnisse für einige U(VI)- und Pu-Phasen	Kein Prozess vorstellbar, der zur Trennung von Uran und Plutonium auf geochemischem Weg führt. Isotopentrennung nicht möglich. Günstige Moderationsverhältnisse für einige U(VI)- und Pu-Phasen
Moderationseigenschaften	Neutronenabsorption durch Stahl und Cl	Neutronenabsorption durch Chlorid	Neutronenabsorption durch Stahlbehälter Tabelle 3-16	Tabelle 3-16 Ton entspricht Wasser
Einlagerung von MOX	keine Kritikalität möglich, da hohe Cl-Konzentration	keine Kritikalität möglich, da hohe Cl-Konzentration	Günstige Moderationsverhältnisse für einige U(VI)- und Pu-Phasen	

Tabelle 3-18: Zusammenfassung der Kritikalitätsanalysen für die Endlagerung in Steinsalz bzw. in Tongestein (Teil 2)

MOX-Konzentration g dm ⁻³	Wasser + MOX 3,0% ²³⁹ Pu, 0,8% ²³⁵ U, ²³⁸ U Rest		MX 80 + MOX 3,0% ²³⁹ Pu, 0,8% ²³⁵ U, ²³⁸ U Rest	
	V _{krit.} / dm ³	M _{krit.} / kg	V _{krit.} / dm ³	M _{krit.} / kg
115			-	-
120			1000	120
125			340	43
130			180	23
150			48	7,2
170			24	3,1
200	-	-	12	2,4
225	400	90		
230	140	32		
240	47	11		
250	25	6.3		
270	12	3.2		

Tabelle 3-19: Vergleich der kritischen Volumina und kritischen Massen für MOX im homogenen Wasser- bzw. Ton-System (MX 80)

Die Tabelle 3-19 zeigt, wie im Kapitel „Ergebnisse von Kritikalitätsanalysen im Ton/Bentonit-System“ dargestellt, dass die Absorptions- und Moderationseigenschaften von Ton die Neutronenmoderationsbedingungen begünstigen. Allerdings sind für das Eintreten einer Kritikalität (unter Verwendung des vereinfachten Rechenverfahrens) MOX-Konzentrationen von mindestens 120 Gramm pro Liter erforderlich. Unterstellt man eine Konzentration von ca. 2 Gew. % Pyrit im Ton (Tabelle 3-3) und unterstellt weiter, dass dieses Pyrit Uran und Plutonium aus dem MOX durch reduktive Ausfällung homogen in das Gestein einbaut, kann die maximale MOX-Konzentration ca. 103 g dm⁻³ betragen. Diese Konzentration liegt ca. 16 % unterhalb der Konzentration, bei welcher nach der Rechnung mit den einfachen Formeln eine Kritikalität nicht ausgeschlossen werden kann. Für Tongestein ist allerdings kein Mechanismus ersichtlich, wie der hierzu nötige Transportprozess ablaufen könnte. In Steinsalz-Systemen sind keine derartigen Kernbrennstoff-Akkumulationen möglich.

4 Safeguardsaspekte

Der für das Endlagerkonzept angenommene Tonstein verhält sich hinsichtlich seiner Verformungseigenschaften ähnlich wie Steinsalz. Damit zeigt auch dieses Wirtsgestein langfristig starkes Konvergenzverhalten. Nach einer sofortigen Verfüllung der Einlagerungshohlräume um oder über den Endlagergebinden in Strecken und Bohrlöchern, sorgt die natürliche Konvergenz dafür, dass das Versatzmaterial kompaktiert und die Gebinde eingeschlossen werden. Es wird davon ausgegangen, dass in einem Endlager in Tongestein wie im Salz ein vollständiger Einschluss der Endlagergebinde möglich ist. Somit kann wie für ein Endlager im Salz die Überwachung in der Nachbetriebsphase auf eine Überwachung der Erdoberfläche über dem verfüllten und geschlossenen Endlager beschränkt werden. Dazu zählen Luftbildaufnahmen, Satellitenbilder oder örtliche Begehungen. Im Rahmen weiterführender Forschungen ist dabei zu untersuchen, ob neue geophysikalische Methoden zur Überwachung des Endlagers von über Tage weiterführende Ergebnisse liefern können. Durch Studien könnte dies analysiert werden und, falls diese zu positiven Ergebnissen führen, durch in-situ Versuche auf ihre Anwendungsfähigkeit überprüft werden.

Die nicht geplante aber denkbare Rückholung eingelagerter Endlagerbehälter ist sowohl im Salz als auch im Ton aufgrund des genannten Konvergenzverhaltens des Gesteins sehr aufwändig und würde nicht unbemerkt erfolgen können. Dazu wäre nach Beendigung des Endlagerbetriebes die Wiederauffahrung des Grubengebäudes oder die Errichtung eines neuen Endlagerbergwerkes erforderlich.

5 Literaturverzeichnis

- /1-1/ Engelmann, H.-J. et al: Direkte Endlagerung ausgedienter Brennelemente, Systemanalyse Mischkonzept, Abschlussbericht, DEAB T30, Peine, Januar 1990
- /1-2/ Engelmann, H.-J. et al: Direkte Endlagerung ausgedienter Brennelemente, DEAB (02 E 8201), Systemanalyse Endlagerkonzepte, Abschlussbericht, Hauptband, DEAB, T59, DBE, Peine, 1995
- /1-3/ Filbert, W.; Engelmann, H.-J.: Aktualisierung des Konzeptes Endlager Gorleben; Abschlussbericht, Rev. 01, Peine, 1998
- /1-4/ Filbert, W.; et al, Gegenüberstellung von Endlagerkonzepten im Salz und Tongestein (FKZ 02E9511), Hauptband, DBE TECHNOLOGY GmbH, Peine, Dezember 2004
- /1-5/ Filbert, W.; et al, Gegenüberstellung von Endlagerkonzepten im Salz und Tongestein (FKZ 02E9511), Anlagenband 1, Internationale Endlagerkonzepte im Wirtsgestein Ton, DBE TECHNOLOGY GmbH, Peine, Dezember 2004
- /1-6/ Filbert, W.; et al, Gegenüberstellung von Endlagerkonzepten im Salz und Tongestein (FKZ 02E9511), Anlagenband 2, Vergleich der technischen Endlagerkonzepte im Wirtsgestein Salz und Ton, DBE TECHNOLOGY GmbH, Peine, Dezember 2004
- /1-7/ Filbert, W.; et al, Gegenüberstellung von Endlagerkonzepten im Salz und Tongestein (FKZ 02E9511), Anlagenband 3, Sicherheit in der Betriebsphase, DBE TECHNOLOGY GmbH, Peine, Dezember 2004
- /1-8/ Amelung, P., Kutowski, J.; Gegenüberstellung von Endlagerkonzepten im Salz und Tongestein (FKZ 02E9511), Anlagenband 5, Vergleich der Wirtsgesteine Ton-/Tonstein und Steinsalz in den Ablagerungsräumen der Norddeutschen Senke und des Süddeutschen Molassebeckens, DBE TECHNOLOGY GmbH, Peine, Dezember 2004
- /1-9/ Engelhardt, J., Amelung, P.; Gegenüberstellung von Endlagerkonzepten im Salz und Tongestein (FKZ 02E9511), Anlagenband 6, Sicherheit in der Nachbetriebsphase Geochemie, DBE TECHNOLOGY GmbH, Peine, Dezember 2004

- /2-1/ Ranft, M; Wollrath, J.: Timescales in the long-term safety assessment of the Morsleben repository, Germany, in: The Handling of Timescales in Assessing Post-Closure Safety of Deep Geological Repositories, OECD/NEA Workshop Proc., Paris, France, 16-18. April 2002
- /2-2/ Ehrlich, D.; Schulze, H.: Vergleich der Endlagerung radioaktiver und chemotoxischer Abfälle in tiefen geologischen Schichten, Strahlenschutzpraxis 4, 2003
- /2-3/ Pieper et al.: Vergleich Untertagedeponien – Endlager Vergleichende Untersuchungen zu Gefährdungspotential, Deponiesicherheit und regulatorischen Anforderungen bei der Endlagerung radioaktiver und chemotoxischer Abfälle, Schriftenreihe Reaktorsicherheit und Strahlenschutz, BMU-2002-599, März 2002
- /2-4/ IAEA, Joint Convention on the Safety of Spent Fuel Management and on the Safety of Radioactive Waste Management, 10. October 1997, PR 97/29
- /2-5/ OECD/NEA, The Handling of Timescales in Assessing Post-Closure Safety of Deep Geological Repositories, OECD/NEA Workshop Proc., Paris, France, 16-18. April 2002
- /2-6/ Chapman, N. A.: Long timescales, low risks: rational containment objectives that account for ethics, resources, feasibility and public expectations – some thoughts to provoke discussion, in: The Handling of Timescales in Assessing Post-Closure Safety of Deep Geological Repositories, OECD/NEA Workshop Proc., Paris, France, 16-18. April 2002
- /2-7/ Verordnung über die Umweltverträglichkeitsprüfung bergbaulicher Vorhaben (UVP-V Bergbau) vom 13.07.1990, in der derzeit gültigen Fassung
- /2-8/ DIN 1054, Beiblatt Baugrund, zulässige Belastungen des Baugrunds, Erläuterungen, November 1976
- /2-9/ Preuss, J. et al.: Post Closure Safety of the Morsleben Repository, Proc. WM'02 Conf., Feb. 24-28, Tucson, AZ

- /2-10/ Verordnung zur Umsetzung der Richtlinie 80/68/EWG des Rates vom 17. Dezember 1979 über den Schutz des Grundwassers gegen Verschmutzung durch bestimmte gefährliche Stoffe (Grundwasserverordnung), vom 18. März 1997, BGBl. I S.542
- /2-11/ Brennecke, P.: Endlagerung: Grundwasserrelevante Aspekte, atw, 43. Jahrgang, Heft 12, Dezember 1998
- /2-12/ Lawa-Arbeitsgruppe, Grundwasserschutz bei Abfallverwertung und Produkteinsatz: Aktualisierte Prüfwerte der Lawa-Empfehlungen für die Erkundung, Bewertung und Behandlung von Grundwasserschäden, Stand 2.12.1996
- /2-13/ Bekanntmachung der Neufassung der Trinkwasserverordnung vom 5.12.90, Bundesgesetzblatt, Jahrgang 1990, Teil I, Nr. 66, s.2612.2629
- /2-14/ Deutscher Verein des Gas- und Wasserfaches e.V., Eignung von Fließgewässern für die Trinkwasserversorgung, DVGW-Regelwerk, Technische Mitteilung Merkblatt W251, Stand August 1996
- /2-15/ Länderarbeitsgemeinschaft Wasser, Empfehlungen für die Erkundung, Bewertung und Behandlung von Grundwasserschäden, Stand Oktober 1993
- /2-16/ Verordnung über den Schutz von Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung – StrlSchV) vom 20.07.2001 (BGBL. I, S. 1714 ber. 2002, S. 1459) zuletzt geändert durch Artikel 2 der Verordnung vom 18.06.2002 (BGBl. I, S. 1869, 1903)
- /2-17/ ICRP, Radiation Protection Principles for the Disposal of Solid Radioactive Waste, Publication 46, 1985
- /2-18/ GRS, Sicherheitskriterien für die Endlagerung in einem Bergwerk – überarbeitete Diskussionsgrundlage – GRS – A – 2990, Januar 2002
- /2-19/ Gemeinsame Stellungnahme der RSK und der SSK betreffend BMU-Fragen zur Fortschreibung der Endlagersicherheitskriterien, 5.-6.12.2002

- /2-20/ Storck, R.; Becker, D. A.: The SPIN project: Safety and performance indicators in different time frames, in: The Handling of Timescales in Assessing Post-Closure Safety of Deep Geological Repositories, OECD/NEA Workshop Proc., Paris, France, 16-18. April 2002

- /2-21/ AkEnd: Auswahlverfahren für Endlagerstandorte, Empfehlungen des AKEnd – Arbeitskreis Auswahlverfahren Endlagerstandorte, W&S Druck, Köln, 2002

- /2-22/ Heusermann, S.; Preuss, J. : Geomechanische Modellberechnungen zur Beurteilung der Integrität der Salzbarriere im Zentralteil der Schachanlage Bartensleben, Z. Angew. Geol. 2, 2002

- /2-23/ Papp, R.: Geisha – Gegenüberstellung von Endlagerkonzepten in Salz und Hartgestein, Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Wissenschaftliche Berichte FZKA-PTE Nr. 3, Karlsruhe, 1997

- /2-24/ Schulze, O.; Popp, T.: Untersuchungen zum Dilatanzkriterium und zum laugendruckkriterium für die Beurteilung der Integrität eines Endlagerbergwerkes in einer Salzformation, Z. Angew. Geol. 2, 2002

- /2-25/ Cristescu, N.D.; Hunsche, U.: Time Effects in Rock Mechanics;, John Wiley & Sons, Chichester, 1998

- /2-26/ Müller-Hoepe, N.; Krone, J.: Ein neuer Ansatz zur Bewertung der Wirksamkeit von Barrieren im Endlager (02 E 9087), Abschlussbericht, Hauptband, DBE, Juni 1999

- /2-27/ Bundesamt für Strahlenschutz: Plan Endlager für radioaktive Abfälle Schachanlage Konrad Salzgitter, Kurzfassung, Stand 9/86 in der Fassung 4/90

- /2-28/ OECD/NEA: An International Peer Review of the Yucca Mountain Project TSPA-SR, Total System Performance Assessment for the Site Recommendation (TSPA-SR), 2002

- /2-29/ Engelmann, H.-J. et al: Direkte Endlagerung ausgedienter Brennelemente DEAB (02E 8201), Systemanalyse Endlagerkonzepte, Abschlussbericht, Hauptband, DEAB, T59, DBE, Peine 1995

- /2-30/ Systemanalyse Mischkonzept, Abschlussbericht Hauptband, KWA Nr. 2190A1, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, 1989

- /2-31/ Preuss, J.; Müller-Hoepe, N.; Schrimpf, C.: The Interaction of the Evidence of Post Closure Safety and Requirements to Backfill Mate-

rials for the Morsleben Repository, DisTec 2000, International Conference on Radioactive Waste Disposal, 4.-6. September 2000

- /2-32/ Salzer, K. et al: Untersuchungen zur Langzeitsicherheit von UTD in Salzformationen der flachen Lagerung in Zusammenhang mit dem Verformungs- und Bruchverhalten (Phase III) Abschlussbericht im Auftrag des BMBF, BMBF-FB (02 C 0649/1) 30.06.2003
- /2-33/ Allgemeine Bergverordnung über Untertagebetriebe, Tagebaue und Salinen im Oberbergamtsbezirk Clausthal-Zellerfeld (ABVO), 1996, § 224
- /2-34/ Bechthold, W. et al: Backfilling and sealing of underground repositories for radioactive waste in Salt, Final Report, EU 20621
- /2-35/ Sitz, P.; Gruner, M.; Rumphorst, K.: Bentonitdichtelemente für Langzeitsichere Schachtverschlüsse im Salinar, Kali und Steinsalz 03/2003
- /2-36/ Gläß, F.; Mauke, R.; Müller-Hoeppe, N.: Investigations on the „Asse-Vordamm“ to prove tightness of the contact zone of the sealing constructions for the Morsleben Repository for Radioactive Waste (Endlager für radioactive Abfälle Morsleben, ERAM), European Commission CLUSTER Conference “Impact of the Excavation Disturbed or Damaged Zone (EDZ) on the performance of radioactive waste geological repositories”, Luxemburg, 3.-5. November 2003
- /3-1/ Closs, K.-D.: Anforderungen an Plutonium-Abfallprodukte aus der Sicht der Endlagerung, Physiker Tagung, Dresden, 2000
- /3-2/ Greenspan, E., Vujic, J. and Burch, J.: Neutronic analysis of critical configurations in geologic repositories: I - Weapons-grade plutonium. Nuclear Science and Engineering, 127: 262-297, 1997
- /3-3/ Kastenbergh, W.E., Peterson, P.F., Ahn, J. and al, e.: Considerations of autocatalytic criticality of fissile materials in geologic repositories. Nuclear-Technology, 115(3): 298-310, 1996
- /3-4/ Vujic, J. and Greenspan, E.: Neutronic analysis of critical configurations in geologic repositories: II - Highly Enriched Uranium. Nuclear Science and Engineering, 129: 1-14, 1998

- /3-5/ Kienzler, B., Loida, A., Maschek, W., Rineiski, A. Is Criticality a Matter of Concern for Gorleben? 10th IHLRWM Conference, Las Vegas, March 30-April 3, 2003
- /3-6/ Kienzler, B., Loida, A., Maschek, W. and Rineiski, A.: Mobility and criticality of plutonium in a repository. Nuclear Technology, 143(9): 309-321, 2003
- /3-7/ Heinicke, W., Krug, H., Thomas, W., Weber, W. and GMAL, B.: Handbuch zur Kritikalität, GRS, Garching, 1985
- /3-8/ Oldekop, W.: Einführung in die Kernreaktor- und Kernkraftwerkstechnik, I: Kernphysikalische Grundlagen, Reaktorphysik, Reaktordynamik. Verlag Karl Thiemig, München, 1975
- /3-9/ Kienzler, B. and Loida, A.: Endlagerrelevante Eigenschaften von hochradioaktiven Abfallprodukten. Charakterisierung und Bewertung. Empfehlung des Arbeitskreises HAW-Produkte. FZKA-6651, Forschungszentrum Karlsruhe, 2001
- /3-10/ Taubald, H. et al.: Experimental investigations of the effect of high-pH solutions on the Opalinus Shale and the Hammerschmiede Smectite. Clay Minerals, 35: 515-524, 2000
- /3-11/ Pusch, R.: On the effect of hot vapor on MX80 clay. Technical Report TR-00-16, SKB, Stockholm, 2000b
- /3-12/ Jasmund, K. and Lagaly, G.: Tonminerale und Tone. Struktur, Eigenschaften, Anwendung und Einsatz in Industrie und Umwelt. Steinkopff Verlag, 490 pp, 1993
- /3-13/ Spilker, H.: Status of the development of disposal casks and prospects in Germany, Proc. DisTec'98, September 9-11, 1998, Kontec Hamburg, pp. 301-302, 1998
- /3-14/ Gray, M.N.: International Stripa Project, Overview Volume 3, Engineered Barriers, 1993
- /3-15/ NAGRA: Project Gewähr 1985. Nuclear waste management in Switzerland: Feasibility studies and analysis. NGB 85-09, NAGRA Project Report, 1985
- /3-16/ Börgesson, L., Fredrikson, A. and Johanneson, L.E.: Heat conductivity of buffer materials. 94-29, SKB Technical Report, 1994

- /3-17/ PNC: Research and development on geological disposal of high-level radioactive waste. TN 93-059, PNC Technical report, Tokyo, 1992
- /3-18/ Volckaert, G., Bernier, F. and Dardaine, M.: Demonstration of the in situ application of an industrial clay-based backfill material (BAC-CHUS 2). 16860, 1996
- /3-19/ Johnson, L.H., Niemeyer, M., Klubertanz, G., Siegel, P. and Gribi, P.: Calculations of the temperature evolution of a repository for spent fuel, vitrified high-level waste and Intermediate level waste in Opalinus Clay., NAGRA, Wettingen, 2002
- /3-20/ Hauser, W.: Optimierung der Aktivitätsbeladung von schwach- und mittelaktiven Abfallgebinden. Beschreibung des Programmpakets PROMAX mit Anwendungsrechnungen. KfK-3825, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1985
- /3-21/ Hauser, W., Wenzel, W. and Müller, R.: PROMAX/PC - computer code for computing the maximum activity of radioactive waste packages and design of gamma-shielding. Nuclear Engineering and Design, 159: 233-38, 1995
- /3-22/ Negron, A., Ramos, S., Blumenfeld, A.L., Pacheco, G. and Fripiat, J.J.: On the structural stability of montmorillonite submitted to heavy gamma-irradiation. Clays and Clay Minerals, 50(1): 35-37, 2002
- /3-23/ Plotze, M., Kahr, G. and Stengele, R.H.: Alteration of clay minerals - gamma-irradiation effects on physicochemical properties. Applied Clay Science, 23(1-4): 195-202, 2003
- /3-24/ Clozel, B., Allard, T. and Muller, J.P.: Nature and Stability of Radiation-Induced Defects in Natural Kaolinites - New Results and a Reappraisal of Published Works. Clays and Clay Minerals, 42(6): 657-666, 1994
- /3-25/ Pushkareva, R. et al.: Irradiation effect on physico-chemical properties of clay minerals. Applied Clay Science, 21(1-2): 117-123, 2002

- /3-26/ Reed, D.T., Scott, D.D. and Weiner, M.F.: Gamma and alpha radiation levels in a basalt high-level waste repository: Potential impact on container corrosion and packing properties. In: C. Tsang (Editor), Coupled Processes associated with nuclear waste repositories. Academic Press, Orlando, pp. 325-338, 1987
- /3-27/ McKinley, I.G.: The geochemistry of the Near-Field. NTB 84-48, 1985
- /3-28/ Couture, R.A.: Steam rapidly reduces the swelling capacity of bentonite. Nature, 381: 50-52, 1985
- /3-29/ Oscarson, D.W. and Dixon, D.A.: The effect of steam on montmorillonite. Applied Clay Science, 4: 279-292, 1989
- /3-30/ Pusch, R.: On the effect of hot vapor on MX80 clay, SKB, Stockholm, 2000
- /3-31/ Pusch, R., Karnland, O., Lajudie, A. and Atabek, R.: Hydrothermal field experiment simulating steel canister embedded in expansive clay - Physical behaviour of the clay. Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 257: 547-556, 1992
- /3-32/ Meunier, A. and Velde, B.: Illite. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York, 286 pp, 2004
- /3-33/ Lantenois, S.: Réactivité fer métal/smectites en milieu hydraté à 80 °C., Thèse de l'Université d'Orléans, 188 pp, 2003
- /3-34/ Habert, B.: Réactivité du fer dans les gels et les smectites., spécialité. Thèse de doctorat de l'université Paris 6, 227 pp, 2000
- /3-35/ Guillaume, D. et al.: Experimental synthesis of chlorite from smectite at 300 degrees C in the presence of metallic Fe. Clay Minerals, 38(3): 281-302, 2003
- /3-36/ NAGRA: Projekt Opalinuston: Synthese der geowissenschaftlichen Untersuchungsergebnisse Entsorgungsnachweis für abgebrannte Brennelemente, verglaste hochaktive sowie langlebige mittelaktive Abfälle. NTB 02-03, Nagra, Wettingen, Switzerland, 2000

- /3-37/ Smailos, E., Martínez-Esparza, A., Kursten, B., Marx, G. and Azkarate, I.: Corrosion evaluation of metallic materials for long-lived HLW/spent fuel disposal containers. FZKA 6285, Forschungszentrum Karlsruhe, 1999
- /3-38/ Smailos, E. et al.: Corrosion on metallic HLW container materials. In: T. McMenamin (Editor), Fourth European Conference on Management and Disposal of Radioactive Waste, pp. 209-223, 1997
- /3-39/ McMenamin, T., Iseghem, P.v. and Wicks, G.G.: In-situ testing of radioactive waste forms and engineered barriers. EUR 15629EN, 1993
- /3-40/ CRC: Handbook of Chemistry and Physics, 77th Edition. CRC Press, Boca Raton, New York, London, Tokyo, 1997
- /3-41/ Bailly, H., Ménessier, D. and Prunier, C.: The nuclear fuel of pressurized water reactors and fast neutron reactors: Design and behaviour. Lavoisier Publishing, Paris, 1999
- /3-42/ Johnson, L. and Shoesmith, D.W.: Spent Fuel. In: W. Lutze, Ewing, R., (Editor), Radioactive Waste Forms for the Future. Elsevier North Holland, Amsterdam, 1988
- /3-43/ Shoesmith, D.W.: Review: Fuel corrosion processes under waste disposal conditions. Journal of Nuclear Materials, 282: 1-31, 2000
- /3-44/ Grambow, B. et al.: Long-term safety of radioactive waste disposal: Chemical reaction of fabricated and high burnup spent UO₂ fuel with saline brines. Final Report. FZKA 5702, Forschungszentrum Karlsruhe, 1996a
- /3-45/ Grambow, B. et al.: Long-term safety of radioactive waste disposal: Source term for performance assessment of spent fuel as a waste form. Final Report. FZKA 6420, Forschungszentrum Karlsruhe, 2000
- /3-46/ Loida, A., Grambow, B. and Geckeis, H.: Congruent and incongruent radionuclide release during matrix dissolution of partial oxidized high burnup spent fuel, Mat. Res. Symp. Proc. Vol. 663, pp. 414 - 426, 2001
- /3-47/ Loida, A: personal communication, 2004

- /3-48/ Grambow, B.; et al; Long-term safety of radioactive waste disposal : Source term for performance assessment of spent fuel as a waste form. Final Report Forschungszentrum Karlsruhe, FZKA 6420, 2000

- /3-49/ Andriambololona, Z., Martínéz-Esparza, A. and Cera, E.: D13. Mathematical model development and experiments. Integration in the MAM (WP4: Matrix Model Construction), ENRESA / ENVIROS, Madrid, 2004

- /3-50/ ENRESA: Workshop on modelling the behaviour of spent fuel under repository conditions, Avila, Spain June 5 - 7, 2002

- /3-51/ CRANK, J.: The mathematics of diffusion. Clarendon Press, Oxford, UK, 1978

- /3-52/ SKB: Processes in the repository evolution. TR-99-07, SKB, Stockholm, 1999

- /3-53/ NAGRA: The long-term safety of a repository for spent fuel, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level waste sited in the Opalinus Clay of the Zürcher Weinland - Main Report. NTB 02-05, Nagra, Wettingen, Switzerland, 2002a

- /3-54/ ONDRAF/NIRAS: Technical overview of the SAFIR 2 report. NIROND 2001-05 E, Brussels, Belgium, 2001

- /3-55/ Arbeitskreis Auswahlverfahren Endlagerstandorte: Auswahlverfahren für Endlagerstandorte: Empfehlungen des AkEnd, 2002

- /3-56/ Vandergraaf, T.T., Ticknor, K.V. and Melnyk, T.W.: The selection of a Sorption Data Base for the Geosphere Model in the Canadian Nuclear Fuel Waste Management Program. Journal of Contaminant Hydrology, 13: 327-345, 1993

- /3-57/ Grambow, B., Smailos, E., Geckeis, H., Müller, R. and Hentschel, H.: Sorption and reduction of uranium(VI) on iron corrosion products under reducing saline conditions. Radiochimica Acta, 74: 149-154, 1996b

- /3-58/ INE: unveröffentlichter Bericht, 1998

- /3-59/ Bode, W.: Untersuchungen zur Bestimmung der Rückhalteeigenschaften von Gesteinen über der Schachanlage Asse II gegenüber gelösten Radionukliden Bericht 16/89. TL 28/89, GSF, 1989

- /3-60/ Latrille, C. and Ly, J.: Évaluation de la sorption de l'étain(IV) et de plutonium(IV) sur les argilites du callovo-Oxfordien dans des eaux sédimentaires équilibrées, ANDRA, Paris, 2004
- /3-61/ Hsi, C.K.D. and Langmuir, D.: Adsorption of uranyl onto ferric oxyhydroxides: application of the surface complexation site-binding model. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 49(9): 1931-41, 1985
- /3-62/ Küppers, C., Liebert, W. and Sailer, M.: Alternative Wege zur Behandlung von Plutonium, Forschungszentrum Jülich, January 14-14, 2000

6 **Abbildungsverzeichnis**

Abbildung 2-1:	Prognostizierbarkeit relevanter Teilsysteme /2-5/	6
Abbildung 3-1:	Schematische Darstellung der Wechselwirkungen von Neutronen mit Materie	27
Abbildung 3-2:	Kritische Massen als Funktion der gelösten Urankonzentration für verschiedene U-235 Anreicherungen nach /3-7/	31
Abbildung 3-3:	Zeitlicher Verlauf des Kernbrennstoffinventars für DWR Uran-Brennelemente des GKN (18x18-24) mit 4,0 % Anfangsanreicherung und 50GWd/tSM Abbrand.	35
Abbildung 3-4:	Mögliche Anordnungen von Brennstäben in den BSK 3 bzw. BSK 2 Behältern	37
Abbildung 3-5:	Einlagerungskonzept für Glaskokillen / BSK 3 bzw. BSK 2 Behälter im Wirtsgestein Ton	38
Abbildung 3-6:	Dosis und der Dosisleistung als Funktion des Abstands vom Zentrum einer BSK 2-Kokille	40
Abbildung 3-7:	k_{inf} als Funktion der Kernbrennstoffbeladung der Eisenkorrosionsprodukte ohne Anwesenheit von Chlorid-Ionen.	56
Abbildung 3-8:	Makroskopische Absorptions- (A) und Streuwirkungsquerschnitte (S) für relevante Systeme (Dimension: cm^{-1})	58

7 Tabellenverzeichnis

Tabelle 2-1:	Stoffe/Verbindungen und zugehörige Prüfwerte/Grenzkonzentrationen [g/l]	11
Tabelle 3-1:	Kritische Parameter für homogene $\text{UO}_2\text{-H}_2\text{O}$ -Mischungen bei reaktivster Urankonzentration mit 30 cm Wasser als Reflektor nach Tabelle 1.B.A in /3-7/	30
Tabelle 3-2:	Dichte von Wasser als Funktion von Temperatur und Druck sowie der berechnete Bremsnutzungsfaktor p für verschiedene $^{238}\text{Uran}$ -Konzentrationen	32
Tabelle 3-3:	Mineralogische und chemische Zusammensetzung des Opalinustons, Schweiz	33
Tabelle 3-4:	Mineralogische und chemische Zusammensetzung des MX 80 in Gew. % (Wyoming Bentonit)	34
Tabelle 3-5:	Charakteristika von BSK 3 und BSK 2 Behälter	37
Tabelle 3-6:	Einlagerungskonzept für Polluxbehälter	38
Tabelle 3-7:	Thermische Leitfähigkeit des Opalinustons	39
Tabelle 3-8:	Korrosionsraten von realen abgebrannten Kernbrennstoffen bezogen auf das in Lösung freigesetzte Strontium	47
Tabelle 3-9:	Beobachtete Uran- und Plutoniumkonzentrationen in verschiedenen Medien	48
Tabelle 3-10:	Charakteristika für Transportprozesse im Wirtsgestein Ton	49
Tabelle 3-11:	Sorptionskoeffizienten für Uran und Plutonium an relevanten Mineralphasen in ml g^{-1}	52
Tabelle 3-12:	Uranphasen, Dichten, Molmassen und Moderationsverhältnisse	54
Tabelle 3-13:	Kristallwasserhaltige anorganische Plutoniumphasen, Dichten, Molmassen und Moderationsverhältnisse	54
Tabelle 3-14:	Konzentrationen an spaltbarem Material in verschiedenen Abfällen	55
Tabelle 3-15:	Anreicherungs faktoren für MOX	55
Tabelle 3-16:	Berechnete Neutronenabsorptions-, Streu- und Moderationseigenschaften für die untersuchten Systeme	59
Tabelle 3-17:	Zusammenfassung der Kritikalitätsanalysen für die Endlagerung in Steinsalz bzw. in Tongestein (Teil 1)	60
Tabelle 3-18:	Zusammenfassung der Kritikalitätsanalysen für die Endlagerung in Steinsalz bzw. in Tongestein (Teil 2)	61

Tabelle 3-19: Vergleich der kritischen Volumina und kritischen Massen für
MOX im homogenen Wasser- bzw. Ton-System (MX 80) 62

8 Abkürzungsverzeichnis

AKEnd	Arbeitskreis Auswahlverfahren Endlagerstandorte
BE	Brennelement
BSK	Brennstabkokille
COGEMA	Compagnie Générale de Matières Nucléaires
DWR	Druckwasser-Reaktor
FIAP	Fraction of inventory in aqueous phase
HAW	High Active Waste
LWR	Leichtwasser-Reaktor
MOX	Mischoxid
NMR	nuclear magnetic resonance
RSK	Reaktor-Sicherheitskommission
SAM	Systemanalyse Mischkonzept
SEK	Systemanalyse Endlagerkonzepte
UOX	Uranoxid
VE	Ausschuss Ver- und Entsorgung der RSK

9 Verzeichnis der Anlagenbände

- A1 Internationale Endlagerkonzepte im Wirtsgestein Ton
- A2 Vergleich der technischen Endlagerkonzepte im Wirtsgestein Salz und Ton
- A3 Sicherheit in der Betriebsphase
- A4 Sicherheit in der Nachbetriebsphase
- A5 Vergleich der Wirtsgesteine Ton-/Tonstein und Steinsalz in den Ablagerungsräumen der Norddeutschen Senke und des Süddeutschen Molassebeckens
- A6 Sicherheit in der Nachbetriebsphase - Geochemie -