
Gesellschaft für
Reaktorsicherheit (GRS) mbH

Entsorgung radioaktiver Abfälle

Verwaiform hochaktiver Abfälle
aus der Wiederaufarbeitung

E. Merz und R. Nowak



Gesellschaft für
Reaktorsicherheit (GRS) mbH

Entsorgung radioaktiver Abfälle

Verwehrform hochaktiver Abfälle
aus der Wiederaufarbeitung

Erich Merz (KFA) und
Renate Nowak (GRS)

GRS-66 (Oktober 1987)
ISBN 3-923875-16-9

Anmerkung

Dieser Bericht ist von der GRS im Auftrag des Bundesministers für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit erstellt worden. Mit dem Erarbeiten eines Manuskriptes hatte die GRS Prof. Dr. Erich Merz, Direktor des Instituts für Chemische Technologie der Nuklearen Entsorgung, Kernforschungsanlage Jülich, beauftragt. Von seiten der GRS waren U. Holzhauser (Projektleitung), R. Nowak und W. Thomas am Zustandekommen des Berichtes beteiligt.

Deskriptoren

Abfall, Abfallbehandlung, Entsorgung, hochaktiver Abfall

Kurzfassung

Der Bericht behandelt den technisch-wissenschaftlichen Stand der Entsorgung hochaktiver Abfalllösungen aus der Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente. Nach einigen allgemeinen Informationen über radioaktive Abfälle, wie Abfallentstehung, Klasseneinteilung, Zwischenlagerung und Transport, sowie über das Konzept der Mehrfachbarrieren wird schwerpunktmäßig auf die international bevorzugte Methode der Verglasung hochaktiver Abfälle eingegangen. Dabei werden insbesondere die sicherheitstechnischen Anforderungen und physikalisch-chemischen Eigenschaften der Abfallgebinde beschrieben und die verschiedenen Herstellungsverfahren für Glasprodukte dargestellt. Darüber hinaus werden alternative Verfestigungsprodukte wie Glaskeramiken und synthetische Gesteine diskutiert und bewertet. Eine Darstellung der technischen Konzepte für die Abfallbehandlung und Endlagerung hochaktiver Abfälle im In- und Ausland rundet den Bericht ab.

Abstract

This report deals with the scientific and technical state for the treatment of high active waste from reprocessing plants. First, some general information are given about radioactive waste, e.g. arising of waste, classification, intermediate deposition and transport, as well as about the multi-barrier concept. Then, emphasis is laid on the internationally favoured vitrification of high active waste. Safety requirements and the physical-chemical characteristics of the waste forms are described as are the different technical vitrification processes. Moreover, alternative solidification products such as ceramic materials and synthetic rocks were discussed. In addition, the worldwide technical concepts for the management and final disposal of radioactive waste are summarized.

INHALT

	Seite
1. EINFÜHRUNG	1
2. ABFALLARTEN	3
2.1 Abfallentstehung	3
2.1.1 Radioaktiver Abfall beim Betrieb von Leichtwasser- reaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen	3
2.1.2 Gebräuchliche Klasseneinteilung	5
2.1.3 Radioaktivität und Wärmeentwicklung	6
2.2 Entsorgung abgebrannter Brennelemente	7
2.2.1 Zwischenlagerung abgebrannter Brennelemente	10
2.2.2 Zwischenlagerung der Abfälle aus der Wiederaufar- beitung	12
2.2.3 Transport radioaktiver Materialien	15
2.3 Abfallaufkommen in der Wiederaufarbeitung	16
2.4 Der hochaktive Abfallstrom	20
3. DAS MEHRFACHBARRIERENKONZEPT	23
3.1 Grundsätze der Abfallbehandlung	23
3.2 Prinzip der Mehrfachbarrieren	24
3.3 Zusammenwirken der Mehrfachbarrieren	25
4. HAW-VERWAHRFORM UND -GEBINDE	29
4.1 Anforderungen an HAW-Behälter (Kokillen)	29
4.2 Werkstoffauswahl für HAW-Kokillen	31
4.3 Anforderungen an die HAW-Matrix	33
4.4 Eigenschaften von HAW-Glasprodukten	34
4.4.1 Auswahl der Glassorte	35
4.4.2 Struktur der Glasprodukte	37
4.4.3 Auflösemechanismus von Gläsern	40
4.4.4 Langzeitverhalten von Glasprodukten	46
4.5 Herstellungsverfahren für HAW-Glasprodukte	47
4.5.1 Das Pot-Verfahren	49
4.5.2 Das PAMELA-Verfahren	51
4.5.3 Das AVM-Verfahren	55
4.5.4 Das FIPS-Verfahren	57

	Seite	
4.6	Eigenschaften alternativer HAW-Verfestigungs- produkte	58
4.6.1	Allgemeine Gesichtspunkte	58
4.6.2	Auswahl der Mineralform	60
4.6.3	Auslaugmechanismus keramischer Produkte	63
4.6.4	Herstellung keramischer Produkte	64
4.7	Zusammenfassende Bewertung der HAW-Ver- festigungsprodukte	67
5.	TECHNISCHE KONZEPTE FÜR DIE ABFALL- KONDITIONIERUNG UND HAW-ENDLAGERUNG IM IN- UND AUSLAND	69
5.1	Endlagerung von HAW-Gebinden in der Bundes- republik Deutschland	70
5.2	Ausländische Konzepte für die Beseitigung radioaktiver Abfälle	75
5.3	Schlußfolgerungen	87
	LITERATUR	89

ANHANG

- Verwendete Abkürzungen
- Das Periodensystem der Elemente
- Erläuterung von Fachbegriffen

1. EINFÜHRUNG

Die Entsorgung der mit dem Betrieb von Kernkraftwerken entstehenden radioaktiven Abfälle ist Voraussetzung für die friedliche Nutzung der Kernenergie. Zur Entsorgung der Kernkraftwerke gehört maßgeblich die langfristig sichere Beseitigung solcher Abfälle. Diese Aufgabe läßt sich dadurch lösen, daß die radioaktiven Abfälle in geeigneten geologischen Formationen verwahrt werden. Nachdem die Einlagerung beendet ist, wird das Endlager verfüllt und versiegelt, damit eine Wartung und Kontrolle für alle Zeiten entbehrlich bleibt. Dabei muß der Schutz des Menschen und seiner Umwelt vor der Schädigung durch ionisierende Strahlung sowohl für die gegenwärtige als auch für alle künftigen Generationen gewährleistet sein /ICRP 77/.

Um diesem Schutzziel Rechnung zu tragen, wird das in der Technik bewährte Konzept der Mehrfachbarrieren zugrunde gelegt. Bei einem Endlager wird zum sicheren Abschluß gegen die Biosphäre eine Kombination folgender möglicher technischer und natürlicher Barrieren betrachtet: Abfallform, Verpackung, Versatz, Endlagerformation, Deckgebirge und Nebengestein. Durch einzelne oder die Summe dieser unabhängigen Barrieren muß sichergestellt sein, daß nach menschlichem Ermessen keine unzulässige Freisetzung von radioaktiven Stoffen in die Biosphäre erfolgt.

In der Bundesrepublik Deutschland sollen die wärmeproduzierenden hochaktiven Abfälle in einer Steinsalzformation endgelagert werden. Entsprechend den Sicherheitskriterien des BMI /BMI 83/ müssen die radioaktiven Abfälle in eine ausreichend korrosions- und auslaugungsresistente Form überführt werden. Die Wärmeproduktion und deren mögliche Einflüsse auf die Integrität des Abfallgebundes, d.h. Behälter, Verpackung und die darin befindlichen Abfälle, sind zu berücksichtigen. Die erforderliche Sicherheit eines Endlagers ist durch eine standortspezifische Sicherheitsanalyse nachzuweisen. Gegenstand der Analyse sind die geologischen Verhältnisse, das eigentliche Endlager und die Abfallgebände, die durch ihr Zusammenwirken als Gesamtsystem betrachtet werden müssen.

In den letzten Jahren hat die Suche nach der besten Verwahrform für hochaktive Abfälle einen breiten Raum eingenommen, sowohl in theore-

tischen Forschungsarbeiten als auch bei der Durchführung von experimentellen Programmen. Sie haben zu dem Ergebnis geführt, daß geeignete Produktformen für hochaktive Spaltproduktlösungen aus der Wiederaufarbeitung sowohl für die Handhabung als auch für die Endlagerung verfügbar sind.

Die zur Endlagerung gelangenden Abfallgebinde müssen den standortspezifisch erlassenen Endlagerungsbedingungen genügen. Mit Hilfe der Produktkontrolle wird die Einhaltung dieser Bedingungen geprüft. Dabei wird angestrebt, die Produktqualität vorrangig durch eine Konditionierung des radioaktiven Abfalls mit qualifizierten Verfahren zu gewährleisten.

Im internationalen Vergleich sind die Konzepte für die Endlagerung radioaktiver Abfälle sehr unterschiedlich. In mehreren Ländern werden Abfallgebinde oberflächennah endgelagert. In der Bundesrepublik Deutschland sollen nach den bisherigen Konzepten alle radioaktiven Abfälle in tiefen geologischen Formationen endgelagert werden /BMI 80/.

Der vorliegende Bericht befaßt sich mit der Behandlung hochaktiver Spaltproduktlösungen aus der Wiederaufarbeitung, einem wesentlichen Teilaspekt der Entsorgung.

2. ABFALLARTEN

2.1 Abfallentstehung

Als Nebenprodukt der Kernenergienutzung fallen radioaktive Abfälle unterschiedlicher Art und Stärke an, die ohne Umweltgefährdung beseitigt werden müssen. Kernkraftwerksabfälle werden im wesentlichen auf drei Reaktionswegen erzeugt:

- Durch Kernspaltung im Brennstoff entstehen pro gespaltenem Uran- oder Plutoniumatom im allgemeinen zwei Spaltprodukte.
- Durch Neutroneneinfang im Brenn- und Brutstoff sowie durch den Beta-Zerfall instabiler Nuklide bilden sich Transurane.
- Durch Neutroneneinfang werden Hüll- und Strukturmaterialien aktiviert, es bilden sich verschiedene Radioisotope.

Der größte Teil der erzeugten Aktivität befindet sich in den gebrauchten Brennelementen. Werden diese Brennelemente wiederaufgearbeitet, was dem deutschen Referenzkonzept entspricht, so gelangen über 99 % der Aktivität in den hochaktiven Raffinat-Abfallstrom des PUREX-Wiederaufarbeitungsprozesses. Dies gilt allerdings nur unter der Voraussetzung, daß der Brennstoff praktisch hundertprozentig gelöst wird. Bei sehr hohen Abbränden verbleibt ein zunehmend größerer Rückstand, der bei kurzen Kühlzeiten eine sehr hohe Aktivität aufweist.

2.1.1 Radioaktiver Abfall beim Betrieb von Leichtwasserreaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen

In der Diskussion um die Endlagerung muß das Mengenproblem richtig eingeschätzt werden. Die pro Energieeinheit erzeugte Abfallmenge ist bei Abfällen aus der Kerntechnik sehr klein. Hier wirkt sich die Besonderheit der Kernspaltung aus: Pro 24 000 kWh erzeugter Wärmeleistung entstehen nur 1 Gramm Spaltprodukte, die den eigentlichen Abfall darstellen. Die vergleichbare Wärmemenge steckt in 2,9 Tonnen Steinkohle.

Ausschlaggebend sowohl für eine ökologische als auch ökonomische Bewertung sind allerdings die zur Endlagerung gelangenden Gebinde. Einen Vergleich der verschiedenen Abfallsorten aus Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungsanlagen mit den wichtigsten Daten zeigt Bild 1.

Hinsichtlich der verschiedenen Rohabfallsorten fallen bei der Wiederaufarbeitung die schwach- und mittelaktiven Abwässer mengenmäßig am meisten ins Gewicht. Wird dagegen die Verteilung der Aktivität auf die einzelnen Abfallströme betrachtet, so enthalten die radioaktiven Spaltproduktlösungen einschließlich der Rückstände rund 99 % der insgesamt vorhandenen β/γ -Aktivität, machen aber bezüglich des Endabfallvolumens nur ungefähr 1 % aus. Das verbleibende eine Prozent an Aktivität verteilt sich auf alle übrigen Abfallströme.

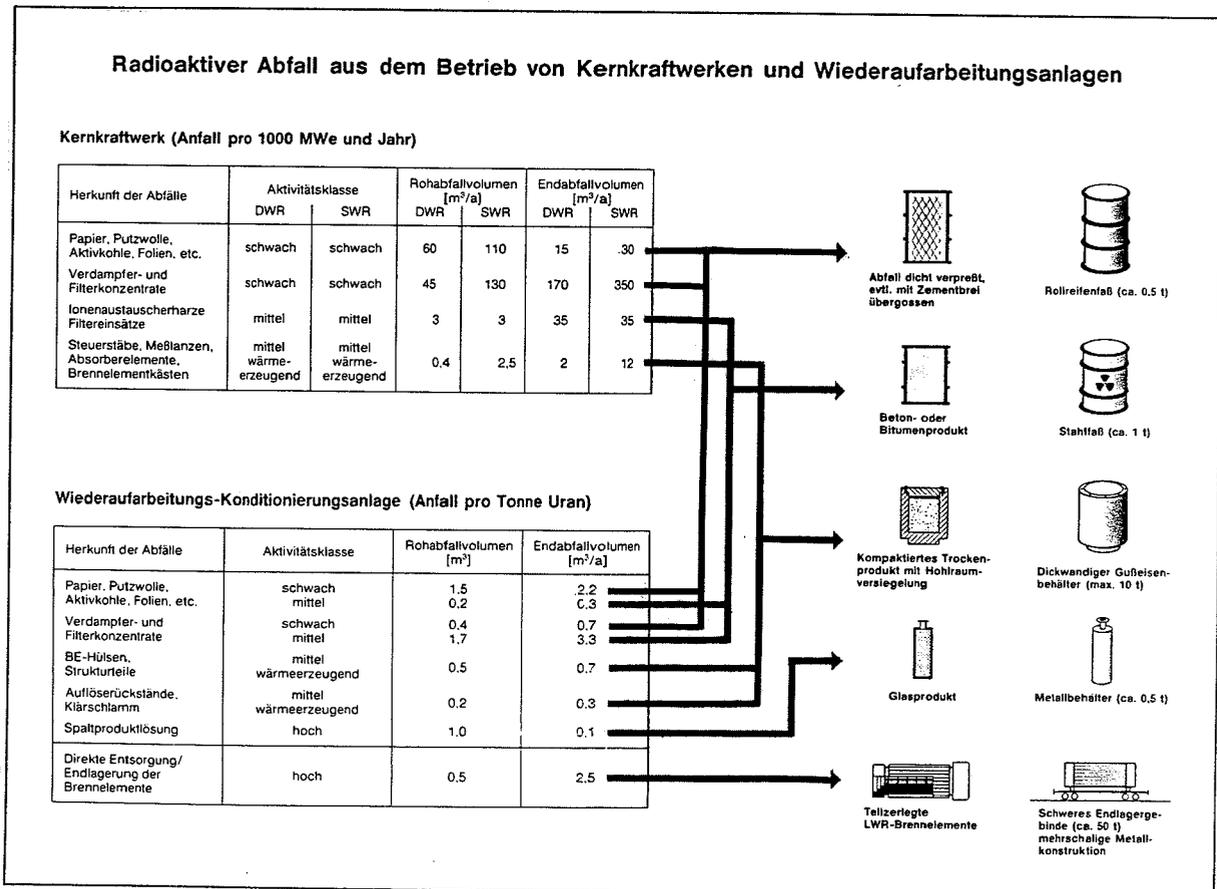


Bild 1:

Zusammenstellung der verschiedenen in Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungsanlagen anfallenden radioaktiven Abfallsorten

Bei Kernkraftwerksabfällen bilden hinsichtlich des Rohabfallvolumens vor allem die brennbaren Festabfälle den Hauptanteil. Hier gelingt aber eine starke Volumenreduktion durch entsprechende Konditionierungsmaßnahmen, die zu dem für die Endlagerung maßgeblichen Endabfallvolumen führen. Was das endlagerfähig konditionierte Abfallvolumen betrifft, so beläuft sich - bezogen auf die gleiche Menge erzeugter Energie - der Betriebsabfall eines Kernkraftwerks auf 25 % derjenigen Menge aus der Wiederaufarbeitung.

Entscheidend ist der Unterschied bei den in den Abfallströmen vorhandenen Aktivitäten, denn in den Kernkraftwerksabfällen befindet sich lediglich rund der 10^{-5} te Teil des in den abgebrannten Brennelementen enthaltenen Aktivitätsinventars. Der Vergleich bezieht sich allerdings nur auf die aus defekten Brennelementen in das Reaktorkühlsystem freigesetzten Aktivitäten; Aktivierungsprodukte bleiben dabei unberücksichtigt. Aber auch sie liegen in ihren absoluten Beträgen vergleichsweise sehr niedrig.

2.1.2 Gebräuchliche Klasseneinteilung

Radioaktive Abfälle werden je nach ihrer Aktivität, Halbwertszeit und Strahlungsart der darin enthaltenen Radionuklide sowie dem physikalisch-chemischen Zustand in unterschiedliche Klassen eingeteilt.

Die gängige Einteilung in schwach-, mittel- und hochaktive Abfälle (LAW, MAW und HAW) erfolgt überwiegend vor dem Hintergrund der Abfallbehandlung und -verarbeitung. Die Grenzziehung zwischen den einzelnen Klassen ist unterschiedlich und richtet sich nach den jeweiligen individuellen Bedürfnissen der Abfallverursacher bzw. -konditionierer. Dabei sind die notwendigen Maßnahmen zum Schutz gegen die ionisierende Strahlung ausschlaggebend. Die Maßstäbe variieren von Land zu Land und selbst innerhalb eines Landes für verschiedene Anlagen.

Als hochaktiven Abfall (HAW) bezeichnet man im allgemeinen das wäßrige Raffinat des ersten Extraktionszyklusses der chemischen Trennung bei der Wiederaufarbeitung. Hinzu kommen noch der Rückstand, der beim Auflösen des Brennstoffs in Salpetersäure zurückbleibt sowie feine

Zircaloy-Späne aus der Bündelschere, die beim Zerschneiden der Brennstäbe anfallen. Beide Feststoffanteile werden gemeinsam in einer Klärzentrifuge abgetrennt und als Feedklärschlamm bezeichnet. Charakteristisch für die stoffliche Zusammensetzung der beiden Fraktionen sind folgende Werte, bezogen auf eine Tonne LWR-UO₂-Brennstoff nach einer Kühlzeit von 7 Jahren:

Konzentrat aus dem

Zentrifugierschritt: 136 l

Zusammensetzung
des Trockenproduktes: 3,5 kg Spaltprodukte
0,01 kg Uran
0,005 kg Plutonium
2,5 kg Zircaloy-Späne

Aktivität: rd. $1,85 \cdot 10^{14}$ Bq Gesamt- β/γ
rd. $7,4 \cdot 10^{10}$ Bq Gesamt- α

Da der Hauptteil der Aktivität von Ru/Rh-106 herrührt (Halbwertszeit 368 Tage bzw. 30 Sekunden), nimmt die Strahlungsintensität jedoch ziemlich rasch ab, so daß der Feedklärschlamm bei Abklingzeiten von etwa 10 Jahren nicht mehr als hochaktiv bezeichnet werden muß. Für seine Konditionierung gibt es zwei Wege: Die Verglasung zusammen mit den hochaktiven Spaltproduktlösungen und die Einbettung in eine Zementmatrix nach einer angemessenen Verdünnung mit einem inerten Zuschlagstoff, z.B. Sand.

2.1.3 Radioaktivität und Wärmeentwicklung

Instabile, d.h. radioaktive Nuklide geben beim Zerfall Energie an ihre Umgebung ab, wodurch sich diese erwärmt. Insbesondere in hochkonzentrierten Spaltproduktlösungen muß darauf geachtet werden, daß die Lösungen nicht zu heiß werden. Sie können sich selbst bis zum Sieden erhitzen, wodurch Radionuklide in deutlich verstärktem Maße in die Abgasstrecke ausgetragen würden.

Bild 2 zeigt die von einer Tonne abgebranntem UO_2 -Brennstoff ausgehende Wärmeentwicklung in Abhängigkeit von der Zerfallszeit seit der Entnahme der Brennelemente aus dem Reaktor.

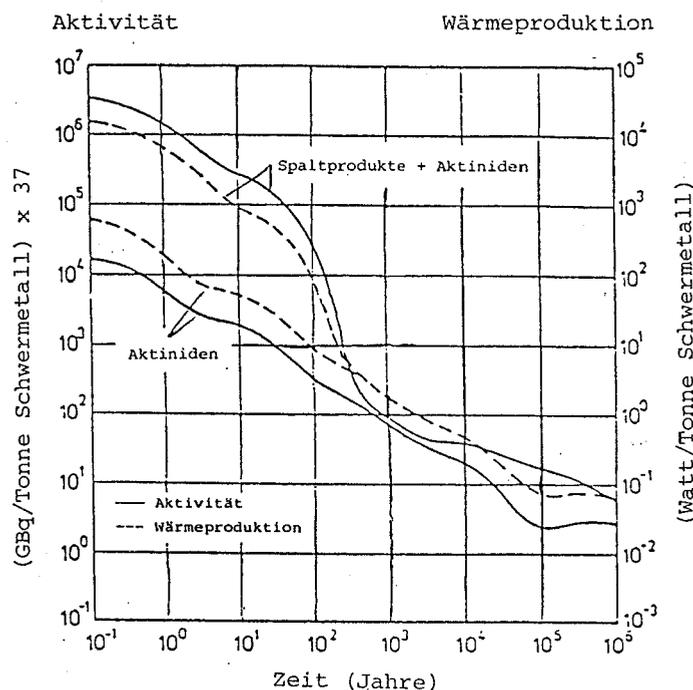


Bild 2:

Aktivität und Wärmeproduktion von LWR-Abfall
Abbrand 30 000 MWd/t U (U- bzw. Pu-Verluste je 0,5 %)

Ebenso wie die Aktivität nimmt die Wärmeproduktion im Laufe der Zeit kontinuierlich ab. Innerhalb der ersten zweihundert Jahre sind für die Wärmeproduktion die Spaltprodukte dominierend. Danach tritt der Beitrag durch die Alphastrahler (Aktiniden) mehr und mehr in Erscheinung.

2.2 Entsorgung abgebrannter Brennelemente

In der Bundesrepublik Deutschland gründet sich die Entsorgung auf mehrere voneinander unabhängige Alternativen, die alle in eine Endlagerung der konditionierten Abfälle im geologischen Untergrund einmünden. Sie sind in Bild 3 veranschaulicht.

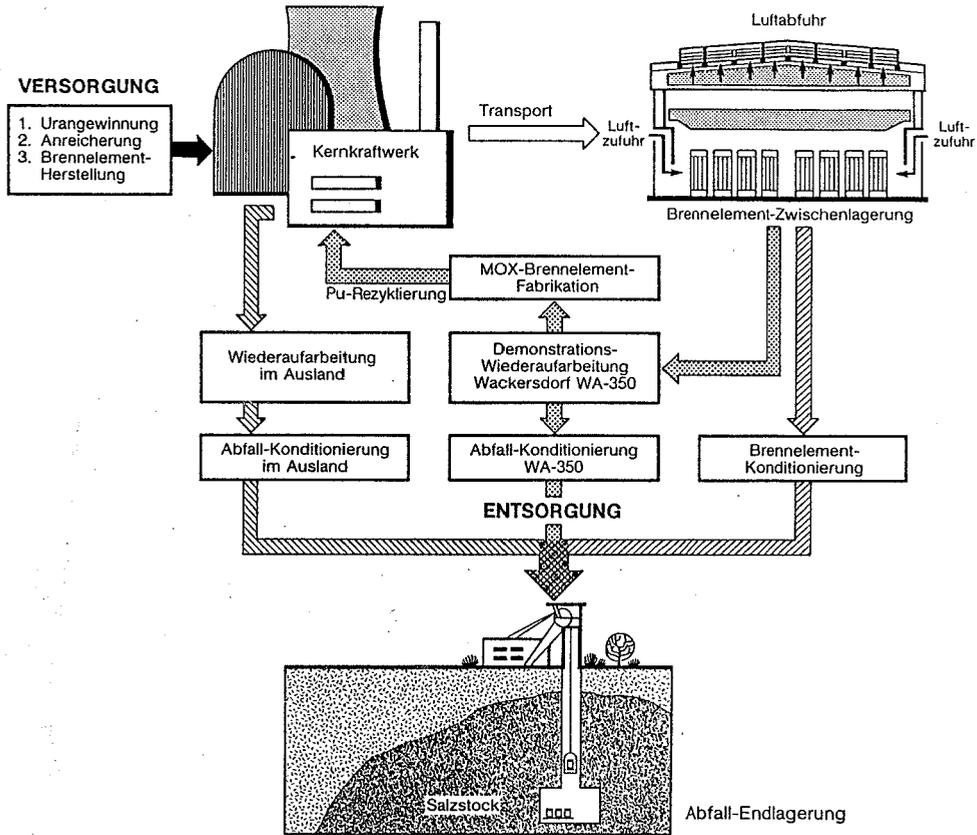


Bild 3:

Alternative Entsorgungsmöglichkeiten für Kernkraftwerke in der Bundesrepublik Deutschland

- Entsorgung über ausländische Wiederaufarbeitungsanlagen

Zur Zeit bestehen Verträge mit der COGEMA in Frankreich und der BNFL in Großbritannien über die Wiederaufarbeitung von insgesamt rund 4000 Tonnen Uranoxid. Dieser Weg erfordert keine längere Zwischenlagerung in der Bundesrepublik Deutschland; die abgebrannten Brennelemente können nach einer ein- bis zweijährigen Abkühlzeit im Lagerbecken des Kernkraftwerkes unmittelbar zur ausländischen Anlage abtransportiert werden. Sämtliche Abfälle werden in konditionierter Form zur Endlagerung zurückgenommen.

- Entsorgung über eine Wiederaufarbeitung im eigenen Land

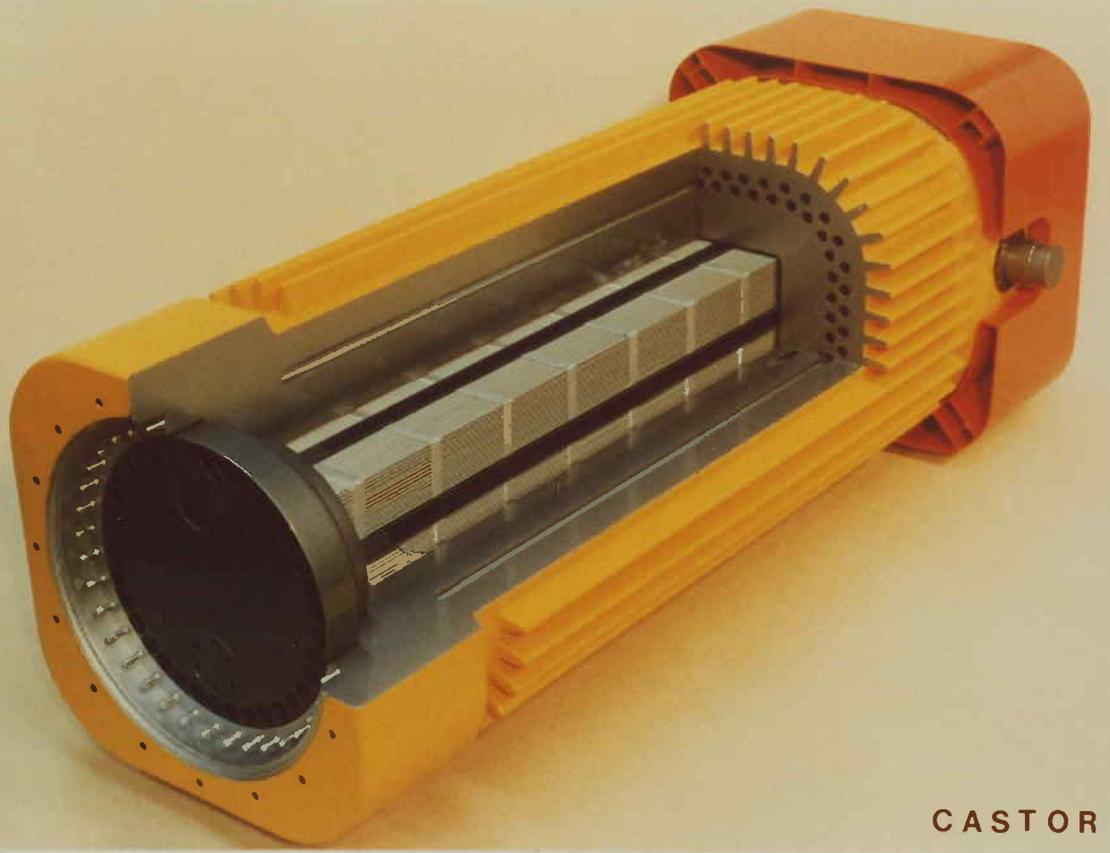
Vorrangiges Ziel der Wiederaufarbeitung ist die Rückgewinnung des in den abgebrannten Brennelementen noch vorhandenen Urans und Plutoniums für die Herstellung neuer Brennelemente. Mit dem Bau einer eigenen

Wiederaufarbeitungsanlage - wie es das Entsorgungskonzept der Bundesregierung vorsieht - läßt sich der Kernbrennstoffkreislauf schließen. Rechtsgrundlage für die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen bildet § 9a, Abs. 1 des Atomgesetzes, wonach radioaktive Reststoffe schadlos zu verwerten oder, falls dies nach dem Stand von Wissenschaft und Technik nicht möglich oder wirtschaftlich vertretbar ist, als radioaktive Abfälle geordnet zu beseitigen sind.

Die Deutsche Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen (DWK) hat am Standort Wackersdorf in der Oberpfalz den Bau einer Wiederaufarbeitungsanlage mit einem jährlichen Durchsatz von 350 Tonnen (350 t/a) eingeleitet. Die erste Teilerrichtungsgenehmigung für die Erschließung des Geländes und die Errichtung eines Brennelement-Zwischenlagers wurde im Frühjahr 1986 erteilt. Mit dem Bau des Hauptprozeßgebäudes soll Anfang 1989 begonnen werden. Es wird mit einer etwa 8jährigen Bauzeit gerechnet, so daß die Anlage voraussichtlich 1997 ihren Betrieb aufnehmen wird. Die 25 t/a-Versuchsanlage WAK in Karlsruhe wird spätestens zu diesem Zeitpunkt stillgelegt.

- Direkte Endlagerung abgebrannter Brennelemente nach geeigneter Konditionierung

Aufgrund einer Entscheidung der Bundesregierung vom Januar 1985 kommt die direkte Endlagerung zunächst nur für solche Brennelemente in Betracht, für die die Entwicklung einer eigenen Wiederaufarbeitungstechnik wirtschaftlich nicht vertretbar ist. Dies trifft zur Zeit zu für Hochtemperaturreaktor-Brennelemente des AVR und des THTR sowie für gewisse Versuchschargen aus Leistungsreaktoren. Für abgebrannte Brennelemente aus Leichtwasserreaktoren konnte im Rahmen des "Projektes Andere Entsorgungstechniken" /PAE 85/ der Nachweis erbracht werden, daß die direkte Endlagerung keine entscheidenden sicherheitsmäßigen Vorteile hat gegenüber dem Entsorgungsweg mit Wiederaufarbeitung. Um die Technik der direkten Endlagerung abgebrannter Brennelemente zu demonstrieren, beabsichtigt die DWK, am Standort Gorleben eine Pilotanlage mit einer Jahreskapazität von 35 Tonnen LWR-Brennelemente zur endlagerechten Konditionierung zu errichten. Ein Genehmigungsantrag wurde kürzlich gestellt.



CASTOR

S. 10

2.2.1 Zwischenlagerung abgebrannter Brennelemente

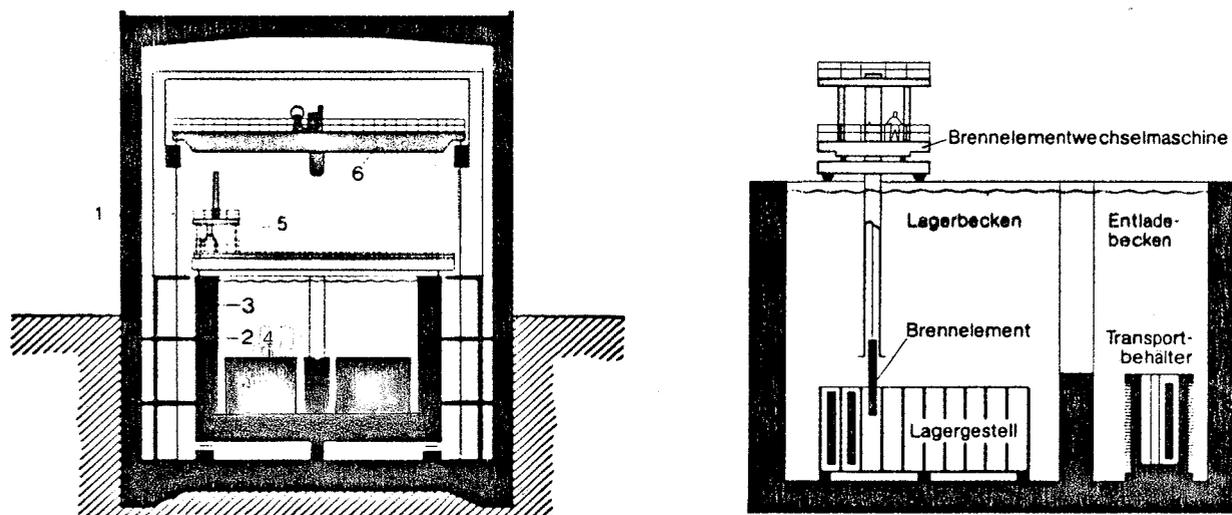
Nach einer Abklingzeit von ein bis zwei Jahren in den zwangsgekühlten Wasserbecken der Kernkraftwerke werden die abgebrannten Brennelemente über Zeiträume bis zu 30 Jahren in Spezialbehältern aufbewahrt, die sich gleichermaßen für den sicheren Transport wie für die Zwischenlagerung eignen. Es handelt sich um dickwandige Gußeisenbehälter, die vor allem unter dem Namen CASTOR (Hersteller: Gesellschaft für Nuklear-Service mbH, Essen) bekanntgeworden sind (Bild 4). Vergleichbare Transport- und Lagerbehälter hat die Firma Transnuklear, Hanau, bis zur Marktreife entwickelt. Heute steht eine ganze Gruppe solcher Behälter mit unterschiedlicher Aufnahmekapazität von 2 bis 6 Tonnen abgebrannten Kernbrennstoffs zur Verfügung.

Bild 4:

Modell des CASTOR-Brennelementbehälters

Dieses Trockenlagerverfahren in Spezialbehältern weist gegenüber der vor allem im Ausland eingesetzten Naßlagerung, deren Prinzip in Bild 5 veranschaulicht ist, einige sicherheitstechnisch vorteilhafte Eigenschaften auf:

- Gebäude, die widerstandsfähig gegen besondere Einwirkungen von außen sind, erübrigen sich, da der Behälter selbst die Sicherheitsfunktionen gegenüber Druckwellen, Flugzeugabsturz etc. übernimmt.
- Der gußeiserne Behälter schirmt durch seine Wandstärke von etwa 40 cm gegen die radioaktive Strahlung der Brennelemente ab.
- Kühlsysteme sind nicht erforderlich, da die Nachzerfallswärme der Brennelemente von der mit Rippen versehenen Außenoberfläche der Behälter an die vorbeistreichende Luft abgegeben wird.



1 Brennelement-Lagergebäude	4 Lagergestell
2 Lagerbecken	5 Brennelementwechsellmaschine
3 Edelstahlauskleidung	6 Gebäudekran

Bild 5:

Schema der Brennelementzwischenlagerung in Wasserbecken mit Beladevorgang

- Die radioaktiven Stoffe in den Brennelementen bleiben durch den Behälter stets sicher eingeschlossen. Eine Ableitung von flüssigen oder gasförmigen Stoffen findet nicht statt, da die Behälter während der gesamten Lagerzeit fest verschlossen bleiben.
- Die Kapazität eines Trockenbehälterlagers kann wegen der kleinen Lagereinheiten flexibel am Bedarf orientiert werden; die Behälter lassen sich jederzeit abtransportieren.

2.2.2 Zwischenlagerung der Abfälle aus der Wiederaufarbeitung

Die verschiedenen endlagergerecht konditionierten Abfallgebände werden in betrieblichen Pufferlagern bis zum Abtransport in ein Endlager für unterschiedlich lange Zeiträume aufbewahrt. Am längsten ist die vorgesehene Lagerzeit für die Glaskokillen. Ein in Bild 6 skizziertes und für die Wiederaufarbeitungsanlage Wackersdorf vorgesehenes modulartig aufgebautes Glaskokillenlager kann den Produktionsanfall aus 20 Betriebsjahren aufnehmen. Für alle übrigen MAW- und LAW-Gebäude wird die Pufferkapazität für 2 bis maximal 10 Jahre ausgelegt.

Ein vergleichbar gutes Alternativkonzept zur Glaskokillen-Zwischenlagerung verwendet entsprechend konstruierte Gußeisen-Transport- und Lagerbehälter, analog denjenigen für die Brennelementzwischenlagerung.

Als Aufstellungsort für eine Zwischenlagerung können die externen Brennelement-Zwischenlager benutzt werden. Zur sicheren Positionierung und Halterung der Glaskokillen wird in den Innenraum des Behälters ein Lagergestell eingebaut.

Eine Lagerkapazität von 30 Jahren für die Glaskokillen trägt der Forderung einer mindestens 25jährigen Abklingzeit Rechnung, die eingehalten werden sollte, um unter Berücksichtigung des Nachzerfallswärmeintrags in das Salzgebirge die Endlagerung raumsparend zu optimieren.

Die ins Auge gefaßte Zwischenlagerzeit stellt darüber hinaus sicher, daß bis zur Inbetriebnahme eines Bundesendlagers für hochaktive Ab-

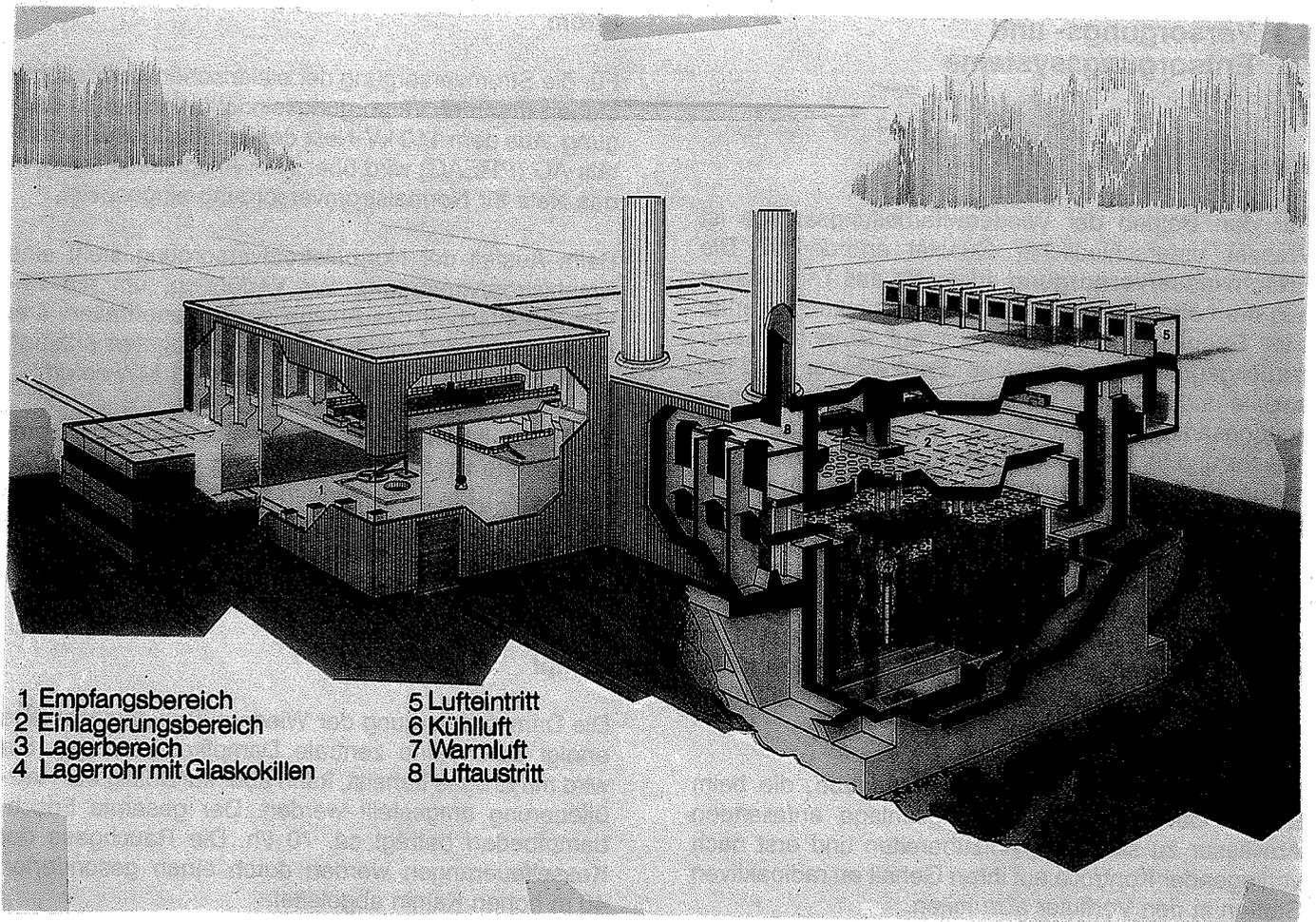


Bild 6:

Perspektivische Darstellung des Glaskokillenlagers

fälle um die Jahrhundertwende die bis dahin bereits produzierten HAW-Glaskokillen sicher untergebracht werden können. Mit der Einlagerung der in der französischen Wiederaufarbeitungsanlage La Hague bzw. der britischen, in Sellafield hergestellten Glaskokillen kann sofort nach der Fertigstellung des Endlagers begonnen werden.

Die Verglasung radioaktiver Spaltprodukte in industriellem Maßstab sowie eine luftgekühlte Zwischenlagerung der in Edelstahlkokillen gasdicht eingeschweißten Glasblöcke in betonabgeschirmten Absenkschächten wird in Marcoule (Frankreich) bereits seit Jahren betrieben. Bild 7 zeigt einen Blick in dieses Glasblock-Zwischenlager. Zu sehen sind die Verschlussstopfen der einzelnen Absenkschächte sowie die strahlenabgeschirmte Be- und Entlademaschine.

Mit den heute zur Verfügung stehenden technischen Konzepten zur Zwischenlagerung sowohl der abgebrannten Brennelemente als auch der konditionierten HAW- und MAW-Abfallgebinde ist sichergestellt, daß keine zeitlichen Engpässe im Entsorgungskonzept auftreten können. Die gefahrlose Zwischenlagerung der HAW-Glaskokillen in luftgekühlten und gegen äußere Einwirkungen geschützten übertägigen Lagern wurde in der französischen Anlage in Marcoule demonstriert. In der langjährigen Erprobungszeit sind keine Probleme aufgetreten. Weitere Erfahrungen werden jetzt in der PAMELA-Anlage in Mol/Belgien gesammelt. Die dort hergestellten HAW-Glaskokillen werden ebenfalls unter sorgfältiger Beobachtung unter Luftkühlung zwischengelagert.

Bild 7:

Blick in das französische Glasblock-Zwischenlager in Marcoule mit Belademaschine. Die einzelnen zylindrischen Lagerschächte sind mit Abschirmstopfen versehen.

Die gutachterliche Prüfung des HAW-Glaskokillenlagers als Teil der Wiederaufarbeitungsanlage Wackersdorf hat die sicherheitstechnische Realisierbarkeit dieses Lagers sowie die der übrigen MAW- und LAW-Zwischenlager bestätigt. Die für eine Glaskokillen-Zwischenlagerung entwickelten Gußeisenbehälter werden zur Zeit der für eine behördliche Genehmigung geforderten strengen Sicherheitsüberprüfung unterzogen. Das Konzept ist technisch ausgereift. Hinsichtlich der Abschirmanforderungen sind die Randbedingungen teilweise einfacher, da bei den HAW-Glaskokillen nahezu keine Neutronenemission auftritt.

2.2.3 Transport radioaktiver Materialien

Der Transport abgebrannter Brennelemente oder von HAW-Glaskokillen sowie sonstiger radioaktiver Abfallstoffe unterliegt strengen Sicherheitsanforderungen. Er ist durch internationale und nationale Vorschriften geregelt, die weitgehend harmonisiert sind. In der Bundesrepublik Deutschland bedarf die Beförderung radioaktiver Stoffe auf öffentlichen Verkehrswegen - Schiene, Straße, Wasser-, Luftweg - gemäß Atomgesetz und Strahlenschutzverordnung der Genehmigung durch die zuständigen Behörden. Die einzuhaltenden Vorschriften und Transportrichtlinien richten sich dabei nach der Gefährdungsklasse der radioaktiven Stoffe. Die festgelegten Anforderungen sehen vor, daß die Dosisleistung an der Oberfläche der verwendeten Verpackungen 2 mSv/h und in 1 m Abstand 0,1 mSv/h nicht übersteigen darf.

An die Behälter werden strenge Anforderungen hinsichtlich Stabilität, Temperaturfestigkeit und Dichtheit gestellt. Ein Transportbehälter des Typs B, wie er für die Beförderung stärker strahlenden Materials zwingend vorgeschrieben ist, muß in einer Testserie seine Integrität nachweisen. Dazu gehört der freie Fall aus 9 m Höhe auf einen mit einer Stahlplatte armierten Betonboden. Danach folgt ein Fall aus 1,2 m Höhe auf einen Dorn, und schließlich wird der Behälter einem halbstündigen Feuer bei einer Temperatur von 800 °C ausgesetzt. Im Anschluß wird der Behälter für 8 Stunden in eine ausreichende Wassertiefe versenkt, so daß 1,5 m Überdeckung sichergestellt sind. Diese aufeinanderfolgenden Tests muß der Behälter schadlos überstehen.

Sind auf den vorgesehenen Transportwegen noch schwerere Unfallfolgen denkbar, werden die Anforderungen entsprechend erhöht. So wurde beispielsweise nachgewiesen, daß die heute in der Bundesrepublik Deutschland zum Einsatz gelangenden Gußeisenbehälter den Aufprall nach einem Abwurf aus einem Hubschrauber aus mehreren hundert Metern Höhe auf harten Sandboden ohne Verlust der Behälterintegrität überstehen. In den USA wurde ein Zusammenprall eines schienengebundenen Brennelementtransporters auf eine starre Wand bei der relativen Geschwindigkeit von 130 Stundenkilometern demonstriert, wobei auch hier der Behälter die Belastung schadlos überstand.

Gründliche Qualitätssicherung bei der Herstellung und sehr hohe Anforderungen an das Material gewährleisten, daß jeder Behälter die selben Eigenschaften aufweist, wie das geprüfte Behältermuster.

Die im Verlaufe der vergangenen Jahre mit den technisch optimierten Transportbehältern gewonnenen Erfahrungen haben unter Beweis gestellt, daß das mit dem Transport radioaktiver Stoffe verbundene Risiko sehr gering ist. Neben den stabilen Behältern trägt dazu auch das stoßgedämpfte Fahrzeug-Transportsystem bei. Zu schweren Unfällen ist es bisher nicht gekommen.

2.3 Abfallaufkommen in der Wiederaufarbeitung

Reaktor Brennelemente bleiben etwa drei Jahre lang im Reaktor. Jedes Jahr wird ein Drittel der Brennelemente ausgewechselt, das entspricht bei einem 1200-MWe-Kraftwerk je nach Abbrand zwischen 30 und 35 Tonnen Uran. Wenn sie nach Ablauf dieser Zeit aus dem Reaktor entnommen werden, hat sich ihre Zusammensetzung wesentlich verändert. Aus einem Ein- bzw. Zweikomponentensystem ist ein Vielkomponentengemisch entstanden. Bild 8 verdeutlicht in anschaulicher Weise diesen Vorgang.

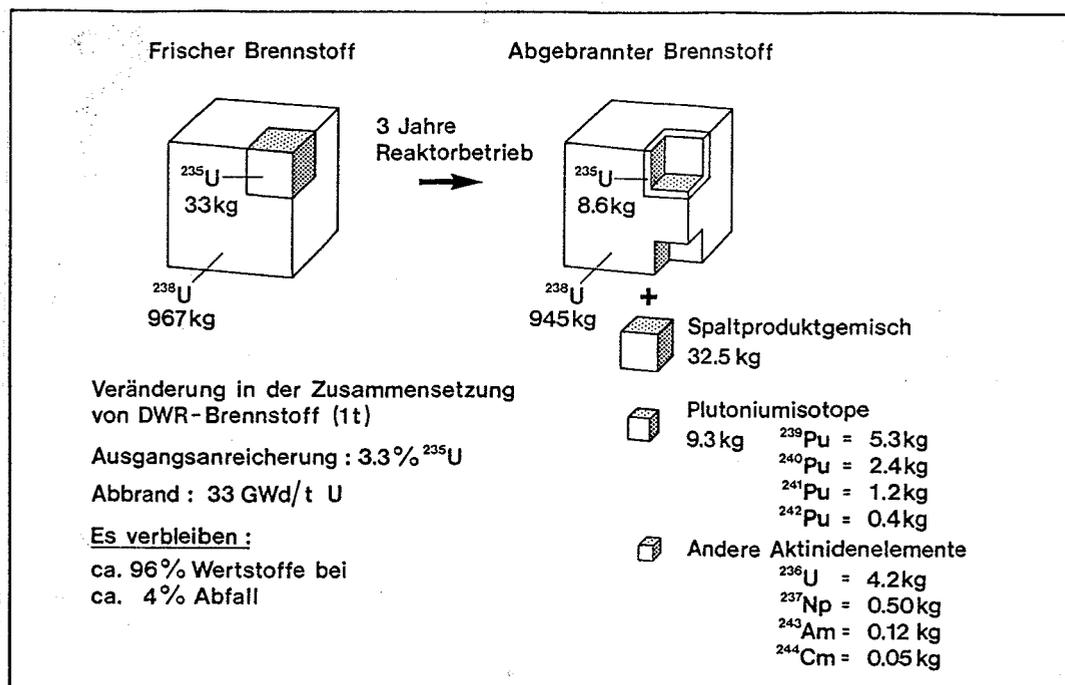


Bild 8:

Typische Zusammensetzung eines LWR-Brennelements vor und nach dem Reaktoreinsatz

Das Nuklidinventar eines Brennelements mit einem Abbrand von 33 500 MWd/tU bei Entnahme aus dem Reaktor ist in Tabelle 1 zusammengestellt.

In der Wiederaufarbeitungsanlage Wackersdorf ist ein jährlicher Durchsatz von etwa 1500 LWR-Brennelementen vorgesehen. Auf den Gewichtsinhalt an UO_2 bezogen, entfallen 70 % auf Brennelemente aus Druckwasser- und 30 % auf solche aus Siedewasserreaktoren. 10 % davon enthalten rezykliertes Plutonium, d.h., es handelt sich um sogenannte MOX-Brennelemente.

Zur Wiederaufarbeitung von LWR-Brennelementen hat sich weltweit das PUREX-Verfahrensschema bewährt, das sich auf eine über 30jährige Erfahrung stützen kann. Die Bundesrepublik Deutschland hat in den letzten 20 Jahren durch eigene Aktivitäten, z.B. in den Anlagen der EURO-CHEMIC in Mol/Belgien und der WAK in Karlsruhe, zur technischen Fortentwicklung auf den Gebieten der Wiederaufarbeitung und Abfallkonditionierung beigetragen.

Tab. 1:

Nuklidinventar eines Brennelements (0,53 tU) mit einem Abbrand von 33 500 MWd/tU bei Entnahme aus dem Reaktor /GRS 80/

Nuklid	Nuklidinventar [GBq]	Nuklid	Nuklidinventar [GBq]
Kr-85m	4,05 E6 ¹⁾	J-131	2,31 E7
Kr-85	2,25 E5	Te-132	3,17 E7
Rb-86	1,32 E4	J-132	3,28 E7
Kr-87	9,25 E6	J-133	4,29 E7
Kr-88	1,36 E7	Xe-133	4,29 E7
Sr-89	1,87 E7	J-134	4,85 E7
Sr-90	1,52 E6	Cs-134	5,48 E6
Y-90	1,60 E6	J-135	3,77 E7
Sr-91	2,32 E7	Xe-135	7,22 E6
Y-91	2,46 E7	Cs-136	1,44 E6
Zr-95	3,65 E7	Cs-137	2,16 E6
Nb-95	3,69 E7	Ba-140	3,85 E7
Zr-97	3,68 E7	La-140	4,00 E7
Mo-99	4,07 E7	Ce-141	3,67 E7
Tc-99m	3,53 E7	Ce-143	3,22 E7
Ru-103	3,31 E7	Pr-143	3,18 E7
Ru-105	2,62 E7	Ce-144	2,75 E7
Rh-105	1,64 E7	Nd-147	1,57 E7
Ru-106	1,33 E7	Np-239	5,14 E8
Sb-127	2,00 E6	Pu-238	5,62 E4
Te-127m	4,14 E5	Pu-239	6,29 E3
Te-127	1,96 E6	Pu-240	9,66 E3
Sb-129	9,62 E6	Pu-241	2,21 E6
Te-129m	1,55 E6	Am-241	1,32 E3
Te-129	9,12 E6	Cm-242	6,44 E5
Te-131m	3,46 E6	Cm-244	6,25 E4
Gesamt			1,41 E9

1) Schreibweise: $4,05 \text{ E6} = 4,05 \cdot 10^6$

Für die Behandlung der anfallenden radioaktiven Abfälle stehen jetzt erprobte Verfahren und Techniken zum Einsatz bereit. Die nachfolgenden Zahlenangaben basieren auf der Anwendung der PUREX-Prozeßtechnologie. Das für die Wiederaufarbeitungsanlage Wackersdorf vorgesehene Prozeßschema veranschaulicht Bild 9.

Im unteren Teil des Bildes sind sämtliche im Gesamtprozeß anfallenden Abfallströme dargestellt. Das besondere Interesse gilt dem HAW-Spaltprodukt-Raffinatstrom aus der Solventextraktion. Seine Zusammensetzung ist in Tabelle 2 aufgelistet.

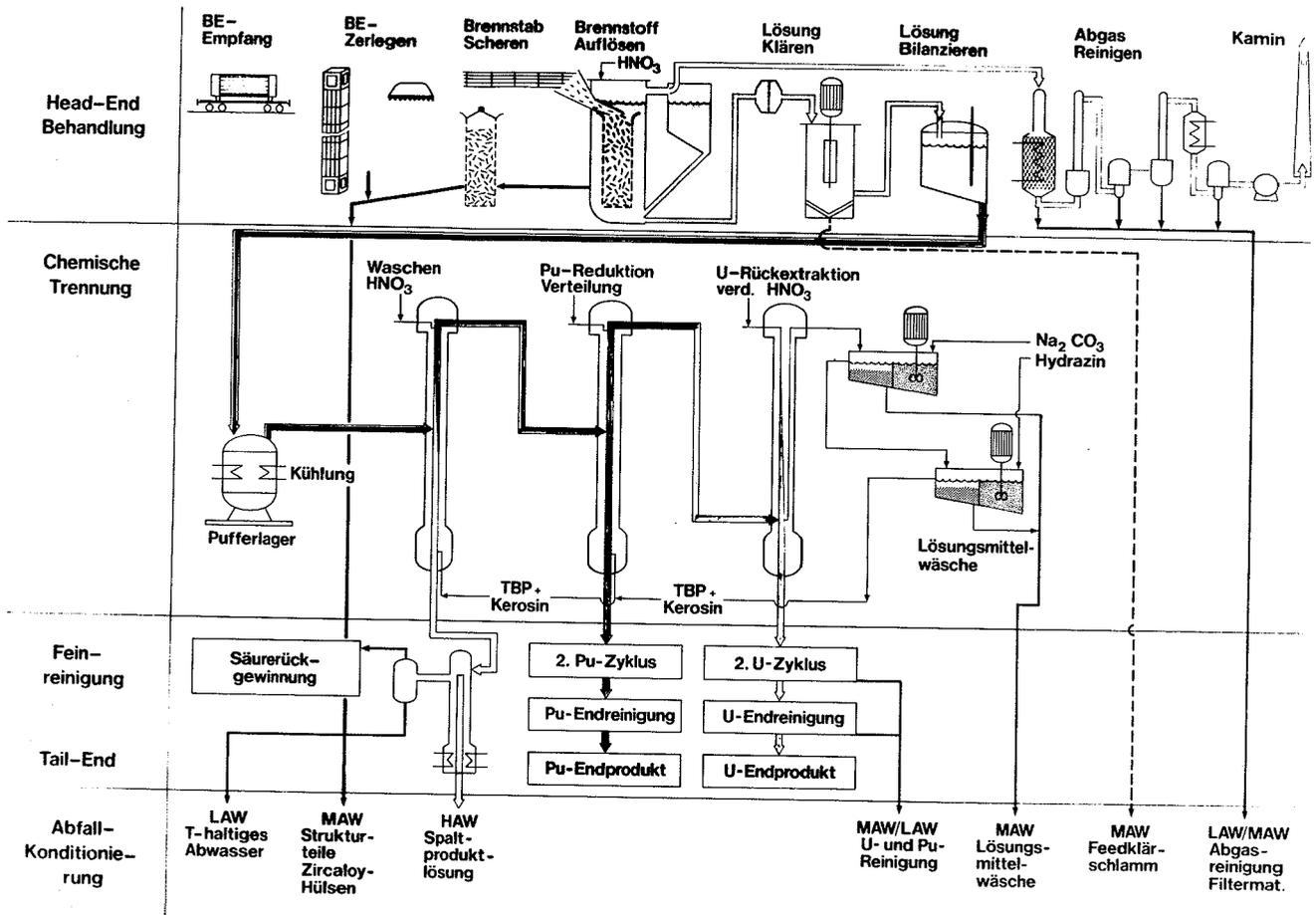


Bild 9:

Schematische Darstellung der Wiederaufarbeitung nach dem PUREX-Prinzip

Tab. 2:

Zusammensetzung HAW-Konzentrat (vereinfacht)
Abbrand 36 000 Mwd/tU; Kühlzeit: 6 Jahre

Spalt- produkt	Konzen- tration [g Oxid/l]	Spalt- produkt	Konzen- tration [g Oxid/l]	Aktinid	Konzen- tration [g Oxid/l]
Sr	2,5	Te	1,6	U	5,3
Y	1,5	Cs	6,6	Np	1,5
Zr	12,8	Ba	4,7	Pu	0,1
Mo	13,3	La	3,8	Am	1,0
Tc	3,3	Ce	7,8		
Ru	5,1	Pr	3,8		
Pd	3,4	Nd	12,3		
		Sm	2,6		

Die bei der Wiederaufarbeitung dieses eingespeisten Materialstromes anfallende salpetersaure, spaltproduktthaltige Lösung wird durch Eindampfen um etwa einen Faktor 10 aufkonzentriert. Damit entstehen jährlich rund 370 m³ konzentrierte HAW-Lösung. Hinzu kommen rund 4 m³ Americium-haltige Lösungen aus der Mischoxid-Brennstoffherstellung. Diese Lösungen werden dem HAW-Spaltproduktstrom zum Zwecke einer gemeinsamen Verglasung zugeschlagen. Dieses Vorgehen bietet sich an, weil es sich hierbei um einen volumenmäßig zwar kleinen, jedoch hochradiotoxischen Abfallstrom handelt, für den sich eine aufwendige Endkonditionierung zu einem widerstandsfähigen Glasprodukt zusammen mit den Spaltprodukten empfiehlt.

Der Durchsatz der in der Wiederaufarbeitungsanlage Wackersdorf installierten Verglasungsanlage soll sich auf ungefähr 420 m³/a belaufen. Für die Zwischenlagerung der Spaltproduktlösungen steht ein HAW-Pufferlager mit 2 x 75 m³ Tankinhalt zur Verfügung sowie ein Reservetank, der im normalen Betrieb nicht befüllt werden darf. Pro Jahr werden 78 m³ HAW-Glas, das entspricht 433 Kokillen, produziert.

2.4 Der hochaktive Abfallstrom

Bei der Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente wandern rund 99,9 % der den chemischen Trennungsprozeß durchlaufenden Radionuklide (Spaltprodukte und Aktiniden, ausgenommen U und Pu) in den ersten Raffinatstrom des Extraktionsprozesses /KRA 80/. Wird das PUREX-Wiederaufarbeitungsschema angewendet, fallen etwa 3 molar salpetersaure Lösungen an. Die Spaltproduktkonzentration beträgt ungefähr 10 g/l, das Volumen beläuft sich auf etwa 7 m³/t aufgearbeiteten Urans. Wird eine Kühlzeit von 7 Jahren sowie ein mittlerer Abbrand von 40 000 MWd/t zugrunde gelegt, so weisen die Lösungen eine Aktivität von knapp $3,7 \cdot 10^{12}$ Bq pro Liter auf.

In der Regel werden diese primär anfallenden Lösungen bis auf maximal ein Zehntel ihres Ausgangsvolumens eingedampft; entsprechend steigt die spezifische Aktivität auf maximal $3,7 \cdot 10^{13}$ Bq pro Liter an. Der überwiegende Teil aller bisher in Wiederaufarbeitungsanlagen anfallenden

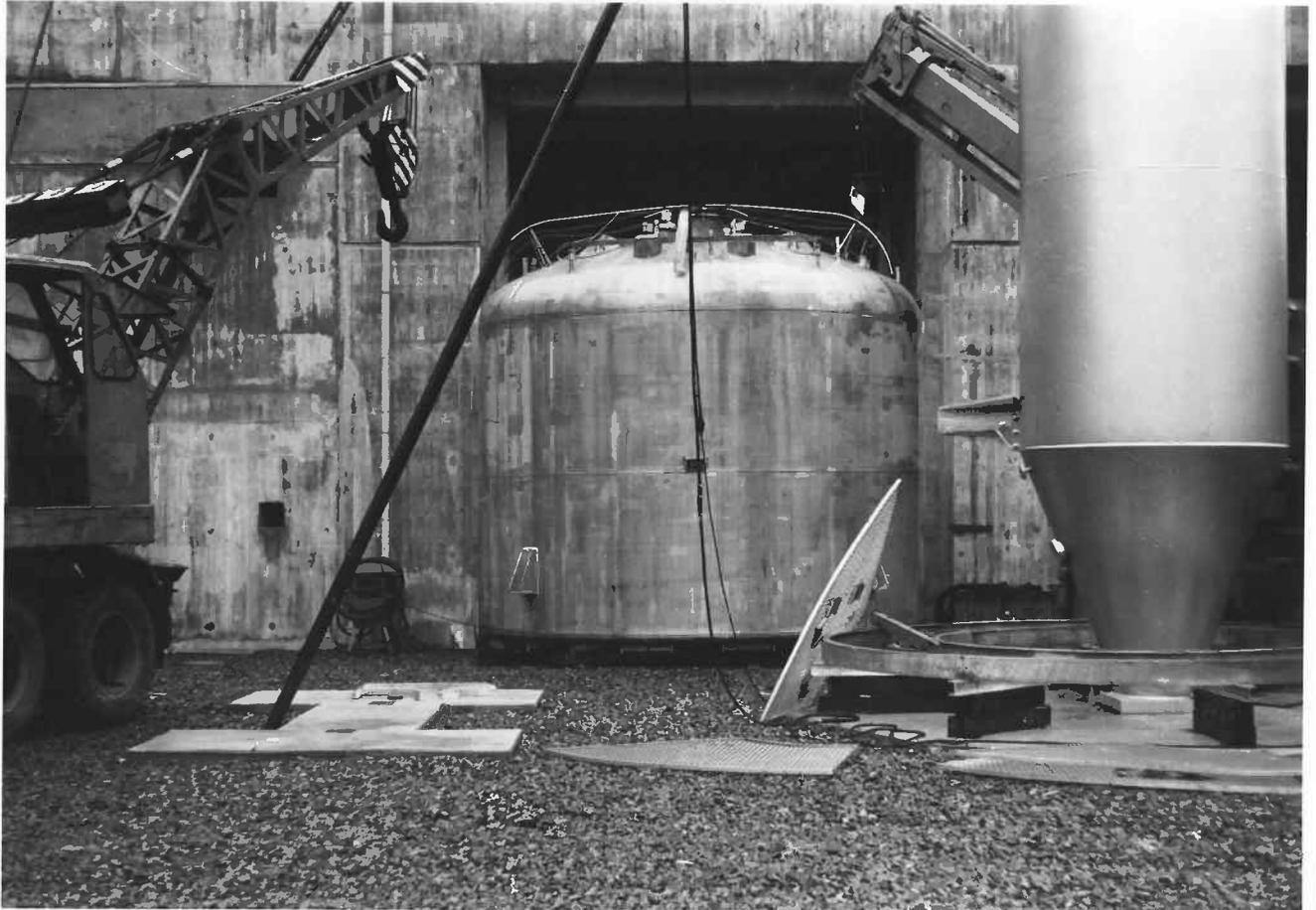


Bild 10:

Einbringen eines 67 m³ konzentrierte HAW-Lösung fassenden Tanks in den Abfallbunker der WAK (Foto: WAK)

hochaktiven Spaltproduktlösungen wird bis heute in zwangsgekühlten Edelstahltanks unterschiedlichen Volumeninhalts (50 - 4000 m³) gelagert (Bild 10).

Schätzungen zufolge sind weltweit bislang insgesamt 500 000 m³ derartiger Abfalllösungen angefallen. Wärmeabfuhr und Radiolysegasentwicklung (H₂, NO_x, etc.) bei der Lagerung werden durch geeignete Vorkehrungen beherrscht. Über Erfahrungen mit der Tanklagerung verfügen heute viele Länder /BUR 75/.

Bei der Wahl geeigneten Materials können Behälter so konstruiert werden, daß eine Tanklagerung über Jahrzehnte unter Einhaltung der Sicherheit möglich ist. Dazu tragen eine doppelwandige Ausführung mit Leckagedetektion bei.

Da jedoch die Spaltprodukte über Jahrhunderte, Alphastrahler (Np, Am, Cm) sogar über einen um Größenordnungen längeren Zeitraum sicher von der Biosphäre abgeschlossen werden müssen, kann eine Flüssiglagerung keine endgültige Lösung des Abfallproblems sein. Für den sicheren Einschluß, die Handhabung und die Einlagerung in ein Endlager ist die Überführung der wäßrigen Lösungen in ein chemisch und mechanisch widerstandsfähiges Festkörperprodukt, z.B. Glas oder Keramik, vorteilhaft. Die in korrosionsbeständigen Behältern untergebrachten festen Produkte werden anschließend im tiefen geologischen Untergrund des Festlandes endgelagert.

3. DAS MEHRFACHBARRIERENKONZEPT

3.1 Grundsätze der Abfallbehandlung

Die generelle Strategie zur langfristigen Isolation radioaktiven Abfalls ist es, die Schadstoffe zu konzentrieren und sie vom menschlichen Lebensraum durch das Wirksamwerden einer Serie von Barrieren abzuschotten. Sie können natürlicher Art sein, oder sie werden durch Menschenhand als technische Barrieren geschaffen.

Dabei kommt es nicht darauf an, daß der Schadstoff unbedingt am Ort seiner Einlagerung, d.h. zum Beispiel im Abfallbehälter, für alle Zeiten fixiert bleibt. Entscheidend ist allein die Vermeidung einer unzulässigen Kontamination der menschlichen Lebenssphäre.

Nach dem Atomgesetz hat der Betreiber von Kernkraftwerken dafür zu sorgen, daß die beim Betrieb anfallenden radioaktiven Reststoffe schadlos verwertet oder geordnet beseitigt werden. In der Sicherheitsstrategie trägt er somit die Verantwortung für die sichere Behandlung der radioaktiven Abfälle bis zur Ablieferung in ein Endlager. Dies beinhaltet u. a. folgende Operationen:

- Immobilisierung der Radionuklide durch Einbindung in eine feste Matrix

Die radioaktiven Abfälle werden zweckmäßigerweise in eine chemisch und mechanisch möglichst stabile Feststoffmatrix eingebettet. Diese Vorgehensweise verhindert bzw. reduziert die Freisetzung der Radionuklide in die Umgebung während einer Zwischenlagerung sowie während sämtlicher Transport- und Handhabungsvorgänge bis zur Unterbringung im Endlager.

- Verpackung der verfestigten Abfallprodukte in einen ausreichend mechanisch stabilen Behälter, der einem Korrosionsangriff unter definierten Randbedingungen standhält

Der Abfallbehälter hat insbesondere den verlässlichen Schutz von Mensch und Umwelt während sämtlicher Transport-, Handhabungs- und Zwischenlagervorgänge bis zur endgültigen Deponierung in einem Endlager zu gewährleisten.

- Zwischenlagerung der Abfallgebinde in einer gegen Störfälle von innen und außen geschützten, übertägig angelegten Lagereinrichtung

Normalerweise befindet sich ein solches Zwischenlager auf dem Gelände einer kerntechnischen Einrichtung, z.B. der Wiederaufarbeitungsanlage. Die Lagerkapazität wird so eingerichtet, daß keine Engpässe bis zur Abgabe in ein vom Staat errichtetes und betriebenes Endlager auftreten. Der Abfallverursacher trägt die Verantwortung für alle Handlungen bis zur Abgabe an das Endlager einschließlich des Transports. Er hat die vorgeschriebene Produktkontrolle durchzuführen und nachzuweisen. Bei seinen Handlungen unterliegt er der behördlichen Aufsicht.

3.2 Prinzip der Mehrfachbarrieren

Die Aufeinanderfolge verschiedener und in ihrer Wirkungsweise unterschiedlich funktionierender Barrieren wird international als Mehrfachbarrierensystem bezeichnet. Allgemeine Schutzziele und Kriterien, die das System beschreiben, wurden von der Internationalen Atomenergiebehörde in Wien, IAEA, zusammengestellt /IAEA 81a/. Diese IAEA-Kriterien sind zwar spezifischer als die von der Internationalen Strahlenschutzkommission, ICRP (International Commission on Radiological Protection), formulierten sogenannten ALARA-Prinzipien (as low as reasonably achievable, d.h. so gering wie vernünftigerweise erreichbar), aber auch sie stellen keine quantitative Lehre zum technischen Handeln dar. Sie liefern vielmehr den Rahmen zur Erarbeitung nationaler Regelungen unter Einbeziehung standortspezifischer Parameter.

Das Mehrfachbarrierenprinzip besagt, daß die Barrieren in ihrer Gesamtheit den Ausschluß der Radionuklide von der Biosphäre derart sicherstellen, daß das Schutzziel erreicht wird. Das Schutzziel wird durch die Festlegung einer maximal zulässigen Individualdosis für den Menschen quantifiziert, das in Abhängigkeit vom Endlagerkonzept durch die technischen Planungen zu erfüllen ist.

Theoretisch wäre es denkbar, daß jede einzelne Barriere für sich allein eine absolute Schutzfunktion ausüben kann. Dies ist jedoch nicht erforderlich und wäre in der Praxis bei Unterstellung aller denkbaren Störfall-Szenarien auch nur äußerst schwierig und mit einem sehr hohen

technischen Aufwand zu verwirklichen. Entscheidend ist vielmehr, daß die Wirksamkeit aller Barrieren gemeinsam die Einhaltung des Schutzziels bewirkt. Dies wird in Sicherheitsstudien untersucht. Wegen der sehr langen Zeiträume, für die ein Endlager ausgelegt werden muß, ist eine direkte experimentelle Kontrolle der ermittelten Ergebnisse ausgeschlossen.

Belastbare Sicherheitsstudien zur Endlagerung werden sich auf Modelle der physikalischen, chemischen, mineralogischen und geologischen Prozesse stützen müssen. Die Modelle sind dabei so zu gestalten, daß alle wesentlichen Effekte angemessen und korrekt beschrieben werden. Außerdem sind in die Rechenansätze Daten einzusetzen, die das zu untersuchende System möglichst wirklichkeitsgetreu wiedergeben. Dabei ist zu beachten, daß die einzelnen Barrieren standortspezifisch unterschiedlich zu bewerten sind. In vielen Fällen besteht eine gegenseitige Beeinflussung und Abhängigkeit der einzelnen Barrieren voneinander.

Die technischen Barrieren sollen in erster Linie die Kurzzeitsicherheit und die geologischen Barrieren insbesondere die Langzeitsicherheit von Endlagern gewährleisten.

3.3 Zusammenwirken der Mehrfachbarrieren

Die Wirkungsweise und Zuverlässigkeit des Mehrfachbarrierenkonzepts wird anhand einer Sicherheitsanalyse nachgewiesen. Sie dient dem Zweck, mit naturwissenschaftlichen Methoden das zeitabhängige Verhalten aller Barrieren vorauszusagen. Dabei geht es insbesondere darum, Veränderungen im Funktionieren des Rückhaltemechanismus zu erfassen. Ursachen dafür können in langsam ablaufenden Vorgängen wie Korrosion, Lösevorgängen, Umkristallisation oder Erosion liegen. Einflüsse können aber auch von markanten Ereignissen wie Erdbeben, tektonischen Verwerfungen und Aufstiegsbewegungen, oder menschlichen Eingriffen ausgehen. Die Sicherheitsanalyse wird standortbezogen auf einer möglichst vollständigen Liste von Ereignissen und Vorgängen aufgebaut. Für diejenigen, die realistischerweise in Betracht gezogen werden müssen, sind möglichst zuverlässige Berechnungsgrundlagen zu schaffen, damit die zeitliche Veränderung der Rückhaltefunktion der eingesetz-

ten Barrieren und daraus die Freisetzungsrates der Radionuklide in die Biosphäre quantitativ abgeleitet werden können. Mehrere Barrieren werden so hintereinander geschaltet, daß beim Versagen eines als Sicherheitsbarriere wirkenden Rückhalte-mechanismus immer noch andere wirksam bleiben.

Das Isolationssystem wird nach internationaler Übereinkunft in die beiden Bereiche Nah- und Fernfeld eingeteilt, die zweckmäßigerweise wie folgt untergliedert sind:

- Nahfeld (technische Barrieren)
 - Abfallmatrix
 - Behälter
 - Bergwerksanlage im Wirtsgestein
 - Verfüll-, Versatz- und Abdichtungsmaterialien

- Fernfeld (natürliche Barrieren)
 - Wirtsgestein (Steinsalz, Granit, Basalt, Ton etc.)
 - Deck- und Nebengebirge

Eine Übersicht der verschiedenen zur Anwendung kommenden Rückhaltebarrieren vermittelt Bild 11.

Die grundsätzliche Bedeutung des Systems der Sicherheitsbarrieren für hochaktive Abfälle läßt sich folgendermaßen charakterisieren:

- Die Feststoffmatrix mit einer molekularen Radionuklidfixierung begrenzt eine Freisetzung sowohl in der Betriebs- als auch in der Nachbetriebsphase unter Störfallbedingungen.
- Der Produktbehälter verzögert einen Lösungszutritt zum HAW-Produkt und verringert die Freisetzungsrates.
- Das Verfüllmaterial und die Streckenabschlußdämme unterbinden bzw. begrenzen einen Lösungszutritt zum Abfallgebände. Das Verfüllmaterial begünstigt eine frühzeitige dichte Umschließung der Abfallkokille durch Gebirgskonvergenz.
- Die Geosphäre besorgt den Langzeitsicherheitseinschluß des radioaktiven Materials.

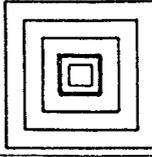
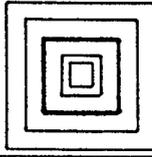
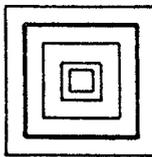
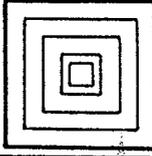
<ul style="list-style-type: none"> ● Produktform <li style="margin-left: 20px;">Kalzinat <li style="margin-left: 20px;">Borosilikatglas <li style="margin-left: 20px;">Keramik 	Sicherheitsbarriere Nr. 1	
<ul style="list-style-type: none"> ● Behälter <li style="margin-left: 20px;">Einfachbehälter <li style="margin-left: 20px;">Korrosionsfeste Oberflächenbeschichtung <li style="margin-left: 20px;">Doppelwandbehälter 	Sicherheitsbarriere Nr. 2	
<ul style="list-style-type: none"> ● Verfüllmaterial <li style="margin-left: 20px;">lösungs-sickerungshemmend <li style="margin-left: 20px;">gute Sorptionsfähigkeit <li style="margin-left: 20px;">ausfällungsfördernd ● Endlager <li style="margin-left: 20px;">Einschlußvermögen <li style="margin-left: 20px;">Isolierung vom Wasserpfad 	Sicherheitsbarriere Nr. 3 additiv bzw. alternativ	
<ul style="list-style-type: none"> ● Geologie <li style="margin-left: 20px;">Grundwasserfluß-Hemmung <li style="margin-left: 20px;">Radionuklid-Retardation <li style="margin-left: 20px;">Radionuklid-Immobilisierung 	Sicherheitsbarriere Nr. 4	

Bild 11:

Schematische Darstellung des Mehrfachbarrierenkonzepts bei der Endlagerung hochaktiver Abfälle im tiefen geologischen Untergrund

Technische Barrieren bieten den Vorteil, daß sie mit dem gegenwärtigen Stand der Technik entworfen, gebaut und geprüft werden können, so daß ein belastbarer Nachweis ihrer Leistungsfähigkeit für eine Mindestzeit geführt werden kann. Ihre besondere Bedeutung liegt in der Regel in dem Sicherheitsnachweis während der gesamten Betriebs- bzw. Überwachungsphase eines Endlagers und gegebenenfalls auch noch für einen gewissen Zeitraum nach dem Verschließen des Bergwerks. Gedacht ist dabei vor allem an die Zeit bis zum weitgehenden Abklingen der Gebirgskonvergenz.

Der Langzeitstabilitätseinschluß wird in erster Linie von der geologischen Formation übernommen, in der die radioaktiven Abfälle deponiert werden. Besonders wichtig ist deren geologische und tektonische Stabilität. Sie soll keine oder allenfalls eine sehr minimale Wasserzirkulation

lation aufweisen, gute Rückhalteeigenschaften für gelöste und suspendierte Stoffe besitzen und möglichst mit Deckschichten überlagert sein, die als zusätzliche Migrationsbarriere wirksam werden können. Die Geschichte geologischer Barrieren kann über sehr lange Zeiträume zurückverfolgt werden, die viel länger sind als die Zerfallszeiten selbst der langlebigsten zur Endlagerung gelangenden Radioisotope. Eine interpretierbare Entwicklungsgeschichte über viele Millionen Jahre aus der Vergangenheit läßt auch eine Voraussage über eine Million Jahre in die Zukunft zu, selbst bei einem Eingriff in das geologische System durch die Installation des Endlagerbergwerks.

Die Grenze zwischen dem technischen Nahfeldbereich und dem natürlichen Fernbereich des Wirts- und Nebengebirges liegt definitionsgemäß an der Stelle der Wirtsgesteinsformation, an der die Einflüsse aus der Abfall-einlagerung (Temperaturveränderung, Konvergenz, etc.) nur noch einen marginalen Effekt aufweisen. Der Wärmeeintrag durch den radioaktiven Zerfall läßt die Grenze mit der Zeit langsam vom Lagerort weg nach außen und sehr viel später wieder von außen nach innen wandern, wenn der radioaktive Zerfall und damit der Wärmeableitprozeß weit fortgeschritten ist. Gemäß der getroffenen Definition beschränken sich die thermomechanischen Phänomene eines Endlagers auf den sogenannten Nahbereich /BUR 83/.

4. HAW-VERWAHRFORM UND -GEBINDE

Die relevanten physikalischen und chemischen Daten des Abfallgebundes, das die HAW-Produktform und den HAW-Behälter umfaßt, beschreiben deren Eigenschaften weitgehend unabhängig von ihrem späteren Verhalten unter den Einflüssen der Endlagerung. Für Sicherheitsbetrachtungen zur Betriebsphase ist die Kenntnis des Verhaltens der Abfallprodukte bei betrieblichen Störfällen erforderlich. Es kann in Experimenten simuliert und wissenschaftlich untersucht werden. Für Sicherheitsbetrachtungen zur Nachbetriebsphase müssen die Abfallgebundeeigenschaften unter den Randbedingungen äußerer Einflüsse wie Strahlung, Zutritt wäßriger Lösungen und Gebirgsdruck ermittelt werden, wobei sich die entsprechenden Bedingungen nur noch bedingt in Versuchen simulieren lassen. Um Ergebnisse auch auf lange Zeiträume extrapolieren zu können, müssen Experimente unter störfallnahen Randbedingungen durchgeführt werden und die Reaktionsmechanismen bekannt sein.

4.1 Anforderungen an HAW-Behälter (Kokillen)

Die Abfallproduktform, Glas oder Keramik, die den hochaktiven Abfall aufnimmt, ist von einem Behälter umgeben. Die an die HAW-Behälter zu stellenden Anforderungen und Charakteristika lassen sich durch folgende Begriffe beschreiben:

- Herstellungsverfahren, Verarbeitbarkeit,
- Werkstoffqualitätssicherung,
- mechanische Eigenschaften,
- Wandstärke,
- Beständigkeit gegen Strahlung und thermische Beanspruchung,
- Abschirmeigenschaften, Wärmeleitfähigkeit und -kapazität,
- Wechselwirkung mit den Umgebungsmedien,
- Korrosionsart und -geschwindigkeit.

Einige der genannten Parameter sind voneinander abhängig. Die erwähnten sicherheitstechnischen Charakteristika bestimmen die zu erwartende Lebensdauer, d.h. die Zeit, während der der Behälter unter konservativen Annahmen nachweisbar eine wirksame Barriere gegen die Freiset-

zung von Nukliden darstellt. Auch nach dem Verlust seiner absoluten Integrität stellt der Behälter noch ein Hindernis für zutretende Lösungen und die Freisetzung von Radionukliden dar.

Im Mehrfachbarrierenkonzept ist der Dauer der garantierten Unversehrtheit des Abfallbehälters (Mindeststandzeit) je nach Endlagerkonzept unterschiedliches Gewicht beizumessen. Auf lange Mindeststandzeiten kann verzichtet werden, sofern die geologische Migrationsbarriere für eine genügend lange Verzögerung sorgt. Für Radionuklide mit Halbwertszeiten kleiner als 40 Jahre ist diese Forderung ziemlich leicht zu erfüllen. Auf der anderen Seite nützt für die sehr langlebigen Radionuklide, insbesondere die α -instabilen Aktiniden, selbst eine garantierte Behälterstandzeit von 1000 Jahren relativ wenig, wenn die übrigen Barrieren nicht für eine sichere Langzeit-Rückhaltung von der Biosphäre sorgen.

Unbestritten ist die Forderung nach der Unversehrtheit des Behälters während der Betriebsphase des Endlagers. Dazu zählen alle Vorgänge bis zur Deponierung des Abfallgebindes in einem Bohrloch bzw. in den Strecken eines Bergwerks sowie dem endgültigen Verschluss des Bohrloches nach der Befüllung mit Abfallgebinden. Weiterhin fällt in diese Phase die Verfüllung der Strecken mit einem geeigneten Versatzmaterial einschließlich der Errichtung eines Strecken-Abschlußdammes. Schließlich erscheint es sinnvoll, auch noch die Zeit bis zur totalen Versiegelung des Bergwerkabschnittes mit einzubeziehen. Zweckmäßigerweise wird dafür eine Zeitspanne von insgesamt etwa 50 Jahren angesetzt.

Bei hochaktiven Abfällen spielt die sogenannte thermische Phase, hervorgerufen durch die nukleare Zerfallswärme der HAW-Produkte, eine nicht zu vernachlässigende Rolle für die gebirgsmechanische Stabilität des Bergwerks. Durch längere Zwischenlagerung oder eine weniger kompakte Einlagerungstechnik der HAW-Gebinde, d.h. die Einhaltung größerer Abstände zwischen den Bohrlöchern, kann grundsätzlich ein unzulässiger Wärmeeintrag in das geologische Endlagersystem vermieden werden. Eine Optimierung der Einlagerung erfolgt stets anhand eines konkreten Konzeptes.

Eine Antwort auf die Fragen einer längeren Zwischenlagerzeit und Notwendigkeit bestimmter Behälterstandzeiten kann nur eine standortbe-

zogene Sicherheits- und Sensitivitätsanalyse liefern. Solche Analysen müssen das Gesamtsystem von Abfallprodukt, Behälter, Verfüllmaterialien, Wirts- und Nebengestein sowie Fließgeschwindigkeiten von zutretenden Lösungen umfassen. Die optimale Lösung ist auf iterativem Wege ausfindig zu machen, wobei auch wirtschaftliche Gesichtspunkte einfließen müssen.

Bei allen Betrachtungen sind die besonderen Randbedingungen einer geologischen Endlagerformation zu beachten. Die Unterbringung hochaktiver Abfallgebilde in einer Granit-, Basalt- oder Tonformation gestaltet sich ganz anders als in einem Steinsalzdiapir. Im ersteren Falle ist von vornherein mit der Anwesenheit von Grundwasser zu rechnen, im zweiten ist der Laugenzutritt als ein sehr unwahrscheinliches Ereignis einzustufen. Bezieht man die Betrachtungen auf die Korrosivität der zutretenden Lösungen, kann bei Grundwässern von einer erheblich geringeren Aggressivität im Vergleich zu den Salzlaugen ausgegangen werden.

4.2 Werkstoffauswahl für HAW-Kokillen

Eine Werkstoffauswahl kann sich sehr stark auf bekanntes Wissen und Erfahrung stützen. Grundsätzlich kommen zwei Werkstoffklassen in Frage: metallische und keramische Materialien (Tabelle 3).

Am besten geeignet erscheinen Metalle oder Metallegierungen, trotz der generell höheren chemischen Widerstandsfähigkeit einer Reihe keramischer Materialien.

Graphit an sich weist zwar eine sehr hohe Korrosionsbeständigkeit auf, aber es ist außerordentlich schwierig und aufwendig, wasserundurchlässige Graphitbehälter herzustellen. Dies gilt auch für Graphit-Nickelsulfidgemische. Die mechanische Stabilität von Graphitbehältern ist mäßig. Insgesamt sind aus Graphit hergestellte Behälter als wenig attraktiv zu bezeichnen /MOL 81/.

Große Erwartungen wurden anfänglich in die Verwendung von Behältern aus Aluminiumoxidkeramik gesetzt. Es stellte sich aber bald heraus, daß

Tab. 3:

Zusammenstellung grundsätzlich geeigneter Werkstoffmaterialien für Endlagerbehälter

	Werkstoff	Bezeichnung
metallisch	Zirkoniumlegierungen	Zircaloy-2
	Titanlegierungen	Ti Code-12, Ti Grade 2, Ti-Al-Legierung
	Nickellegierungen	Inconel-625, Hastelloy C-4, Incaloy-825
	Eisenbasis	Edelstähle, Gußeisen und Gußstahl, kohlenstoffarmer Baustahl
	Kupferlegierungen	Reinstkupfer, Kupfer-Nickel-Legierung 70/30
keramisch	Keramik	Aluminiumoxid, Zirkoniumoxid, Titanoxid
	Graphit	Reinstgraphit, Graphit-Nickelsulfidmischung

zur Herstellung chemisch widerstandsfähigen Materials hochreines Al_2O_3 und eine sehr kostspielige Technik benötigt werden. Deshalb verlagerte sich das Interesse auf die Verwendung von Zirkoniumdioxid- und schließlich auf Titandioxidkeramik. Aber auch diese Produkte erfüllen hinsichtlich hydrothermalen Stabilität und vor allem bezüglich ihrer mechanischen Widerstandsfähigkeit nicht die zu stellenden Mindestanforderungen. Ihr Einsatz erscheint daher wenig aussichtsreich /FUL 80/.

Zu den gegen Salzlauge beständigen Metallegierungen zählen in erster Linie Nickellegierungen. In geringerem Maße geeignet erscheinen Titanlegierungen /MAG 80/. Ihr Hauptnachteil liegt in den relativ hohen Kosten.

In großangelegten Versuchsserien wurden insbesondere in den USA /DOE 82/ alle Arten der Korrosion untersucht:

- Flächenabtrag,
- Lochfraß,

- Spannungsrißkorrosion,
- Korngrenzenkorrosion,
- Wasserstoffversprödung (hervorgerufen durch Wasserradiolyse).

Die bisherigen Ergebnisse vermitteln einen guten Überblick über Vor- und Nachteile einzelner Werkstoffe und Werkstoffkombinationen. Besondere Aufmerksamkeit erfordert die Schweiß- bzw. Löttechnik am Behälterdeckel, insbesondere bei Behältermaterialien aus Keramik.

Neuerdings wird in den USA verstärkt die Meinung vertreten, daß kohlenstoffarme Stähle durchaus den Anforderungen genügen dürften. Von Vorteil wäre dabei der erheblich niedrigere Preis. In der WIPP-Facility in New Mexico/USA läuft seit kurzem ein auf 4 bis 7 Jahre angelegter Feldtest, der mehrere Behälterkonzepte einschließt /MOL 84/. Umfangreiche Korrosionsstudien werden zur Zeit in den Pacific Northwest Laboratories mit kohlenstoffarmen Stählen durchgeführt /WES 84/.

4.3 Anforderungen an die HAW-Matrix

Beim Einbetten der hochaktiven Spaltprodukte in eine Abfallmatrix spielen im wesentlichen folgende Parameter eine Rolle:

- Chemische und physikalische Vorgänge, die zum Einschluß der Radionuklide in der Matrix führen, d.h. molekulare oder mikrostrukturelle Fixierung
- Technische Realisierbarkeit, Aufwand, Anfall von Sekundär-Abfall
- Aufnahmefähigkeit für Spaltprodukte, die bei den verschiedenen Glas- und Keramikmatrizes in einer Bandbreite von etwa 10 % bei mineralischen Phasen bis zu über 30 % bei Phosphatgläsern schwankt
- Charakteristika der Produkte
 - physikalische Eigenschaften, insbesondere Wärmeleitfähigkeit
 - chemische Stabilität
 - Homogenität
 - mechanische Stabilität
 - Einfluß von Kernstrahlungseffekten auf die Produktqualität
 - Reaktion mit dem Behältermaterial

- Auslaugbeständigkeit der Abfallform
 - Auslaugmechanismen, Auslaugraten
 - Reaktion mit Korrosionsprodukten des Behälters
 - Verbindungsbildung, Sorptionsvorgänge in Wechselwirkung mit Behälterwerkstoff und Verfüllmaterialien

4.4 Eigenschaften von HAW-Glasprodukten

Als Abfallmatrix für hochaktive Spaltproduktgemische werden seit Anbeginn der Entwicklung Glasprodukte favorisiert. Gläser sind wegen ihrer amorphen Struktur besonders gut geeignet, das Vielkomponentengemisch des HAW-Raffinatstroms aus der Solventextraktion zu einem auslaugungsresistenten Produkt zu verfestigen. Sie sind relativ unempfindlich gegen Schwankungen in der Abfallzusammensetzung, außerdem übt starke radioaktive Strahlung nur einen geringen schädigenden Einfluß auf ihre Stabilität aus.

Das besondere Interesse gilt Borosilikatgläsern. Sie haben sich in der nunmehr etwa 25jährigen Entwicklungsgeschichte am besten als Abfallverwahrform bewährt. Die Verglasung darf inzwischen als technisch erprobt gelten /CAS 79/.

Das publizierte Wissen über die Verglasung von HAW ist sehr umfangreich. Die sich als ziemlich komplex darstellende mechanistische Erläuterung des Auslaugmechanismus vermittelt kein einheitliches Bild.

Eine gute und einigermaßen repräsentative Literaturübersicht wurde von CLARK et al. im Jahre 1982 erstellt /CLA 82/. Eine bewertende Übersicht ist außerdem in einem Bericht der Schweizerischen Gesellschaft NAGRA /GRA 83/ erschienen. Die wohl umfassendste Beschreibung zum Stand der Technik findet sich in einem Report einer vom U.S. Department of Energy zusammengerufenen Arbeitsgruppe. Sie hat in dreijähriger Arbeit alle verfügbaren Daten zum Auslaugmechanismus von Gläsern zusammengetragen und einer Bewertung unterzogen /PNL 84a/.

4.4.1 Auswahl der Glassorte

Für eine Fixierung der Spaltproduktabfälle können prinzipiell verschiedene Glassorten eingesetzt werden.

Gläser auf Phosphatbasis zeichnen sich durch vergleichsweise niedrige Schmelztemperaturen, hohe Aufnahmefähigkeit für Spaltprodukttoxide, insbesondere für größere Konzentrationen an Sulfat- und Molybdat-Ionen, ohne ein Auftreten von Phasenausscheidungen aus. Andererseits sind sie mit erheblichen Nachteilen behaftet: Ihre Herstellung ist mit einer starken Werkstoffkorrosion verbunden. Außerdem neigen sie sehr stark zur Entglasung, d.h. zur Kristallisation, ein absolut unerwünschter Effekt wegen der damit verbundenen verminderten Auslaugresistenz der Abfallprodukte /MAL 80/.

Als optimal hat sich das quarternäre System $\text{SiO}_2/\text{B}_2\text{O}_3/\text{Na}_2\text{O}/\text{X}$ herausgestellt. Die Zusammensetzung und Eigenschaften sind:

SiO_2 : 30-80 Gew.-%	Hoher SiO_2 -Gehalt erhöht Schmelzpunkt nachteilig. Gläser mit einem SiO_2 -Gehalt über 51 % weisen zwar eine besonders gute Verwitterungsbeständigkeit unter hydrothermalen Bedingungen auf, andererseits verursachen die erforderlichen höheren Schmelztemperaturen im Bereich von 1200 - 1400 °C eine verstärkte und damit unerwünschte Verflüchtigung gewisser Spaltproduktelemente, insbesondere Cs, Se, Te, Mo und Sb.
B_2O_3 : 5-30 Gew.-%	Begünstigt Aufnahme/Verträglichkeit mit Spaltprodukt-Oxiden.
Na_2O : 5-25 Gew.-%	Sinnvoll 7,5 Gew.-%, da andernfalls Phasentrennung im Bereich 600 - 700 °C. Ersatz von Na_2O durch Li_2O erniedrigt Viskosität der Glasschmelze vorteilhaft.
X:	5-20 Gew.-% Seltene Erden-Oxide, Erdalkali-Oxide, ZnO , TiO_2 oder Spaltprodukt-Oxide.

Eine optimierte Zusammensetzung eines Borosilikatglases zeigt Tabelle 4.

Tab. 4:

Typische Zusammensetzung eines deutschen Borosilikatglases (Vorschlag HMI, Berlin)

Komponente	Funktion	Anteil [Gew.-%]
SiO ₂	Netzwerkbildner	50,4
B ₂ O ₃		14,2
Li ₂ O	Netzwerkwandler (sogenannte Modifier), verbessern die Auslaugbeständigkeit	4,2
Na ₂ O		5,8
CaO		4,4
Al ₂ O ₃	Stabilisatoren	2,6
MgO		2,0
TiO ₂		4,4
Spaltproduktoxide		12,0

Boratome fungieren ebenso wie Silizium- und Phosphoratome als Netzwerkbildner im Glas. In einer geeignet ausgewählten Konzentration im Bereich zwischen 10 und 20 % bilden sie mit den Netzwerkwandlern Na, K oder Ca gegen wäßrige Medien beständige Glasprodukte mit akzeptablen Schmelztemperaturen. Zusätze von Oxiden der Elemente Mg, Al, Zn, Nb oder Be mit den Koordinationszahlen 4 oder 6 wirken stabilisierend auf die Glasstruktur.

Gläser sind als unterkühlte Flüssigkeiten thermodynamisch metastabil. Von besonderer Bedeutung ist deshalb ihr möglicher Übergang vom glasartigen in einen kristallinen Zustand (Entglasung). Die zugehörige Temperatur bezeichnet man als den Transformationspunkt. Er sollte während der Abfallagerung tunlichst nicht erreicht werden, da somit eine rasche Entglasung stark begünstigt wird.

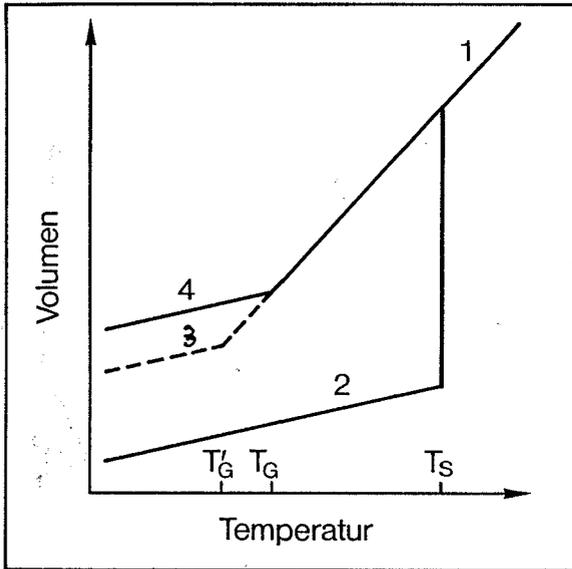
Gezielt wird der Effekt der Entglasung zur Herstellung von Glaskeramiken eingesetzt. Die Bemühungen, auf diesem Wege besonders stabile Abfallprodukte herzustellen, erbrachten keine befriedigenden Ergebnisse /LUT 79/. Hervorzuheben sind die jahrelangen umfangreichen Bemühungen auf diesem Gebiet am Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung in Berlin sowie in einigen amerikanischen Laboratorien. Die Herstellung stabiler Glaskeramiken ist ziemlich schwierig und gelingt zufriedenstellend nur mit genau reproduzierbaren Ausgangszusammensetzungen der Prozeß-Speiselösungen, eine Forderung, die bei der HAW-Verglasung nicht einzuhalten ist. Die hergestellten Produkte enthalten meist neben einem kristallinen Anteil mit hoher chemischer Resistenz leicht lösliche amorphe Restphasen, so daß die integrale Radionuklid-Auslaugung meistens sogar schlechtere Werte als diejenige guter Borosilikatgläser aufweist.

4.4.2 Struktur der Glasprodukte

Gläser können verallgemeinert als zu einem Festkörper erstarrte unterkühlte Flüssigkeiten bezeichnet werden. Ihre Struktur ist amorph, und dadurch ist es möglich, eine Vielzahl fremder Atome in einem Grundglas, bestehend im wesentlichen aus dem Dreikomponentensystem SiO_2 , Na_2O und B_2O_3 unterzubringen, sofern es sich um das heute vorwiegend zum Einsatz gelangende Borosilikatglas handelt. Andere SiO_2 -haltige Systeme zeigen ein ähnliches Verhalten /GRO 80/.

Der Unterschied zwischen dem Glaszustand im Vergleich zu einer flüssigen Schmelze und einem kristallinen Produkt wird am einfachsten durch das in Bild 12 dargestellte V/T-Diagramm veranschaulicht /VOG 71/.

Gläser bilden ein irreguläres dreidimensionales Netzwerk (Bild 13), das durch den Einbau eines Alkalioxids, z.B. Na_2O , weiter aufgelockert wird. Durch die Aufnahme von Natriumoxid in das SiO_4 -Tetraedernetzwerk erfolgt eine Dichtezunahme, da keine Volumenzunahme möglich ist. Die Bildung von Netzwerkdiskontinuitäten erniedrigt die Viskosität der Glasschmelze.



Erläuterung

Kurve 1: Glasschmelze

Kurve 2: kristallines Produkt

Kurve 3: unterkühlte Flüssigkeit

Kurve 4: erstarrtes Glas

T_s = Schmelztemperatur für Borosilikatglas (1050 - 1180 °C)

T_G = Glastransformationstemperatur für Borosilikatglas (520 - 600 °C).

T_G hängt von der Abkühlgeschwindigkeit der Glasschmelze ab; bei sehr langsamen Vorgang verschiebt sie sich zu niedrigeren Werten T'_G .

Bild 12:

Verhältnis von Volumen zu Temperatur für den flüssigen, glasartigen und kristallinen Zustand.

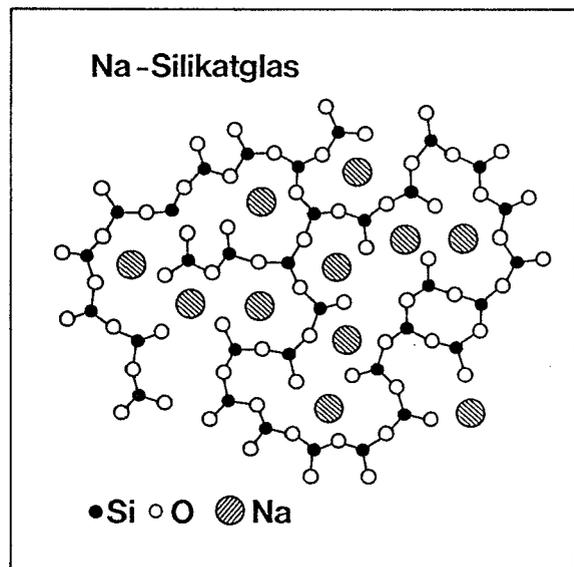
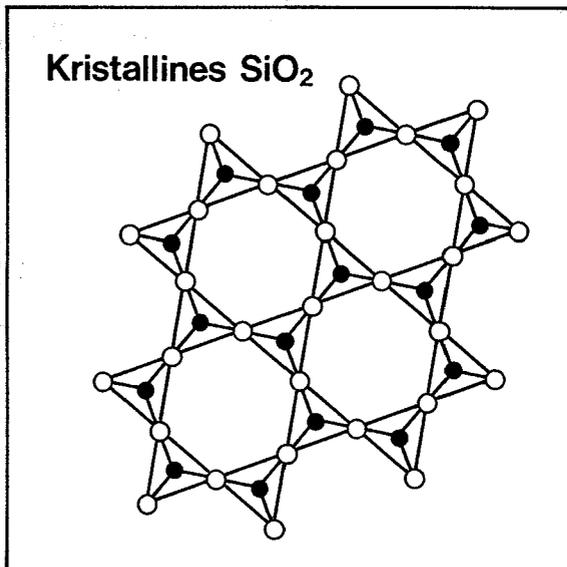


Bild 13:

Schematische Darstellung einer SiO₂-Glasstruktur als Ausschnitt aus einem Tetraeder

Wie in Bild 14 dargestellt, wird die Netzwerkdiskontinuität durch den Austausch von SiO_2 mit Al_2O_3 in einem Na-Silikatglas geschlossen.

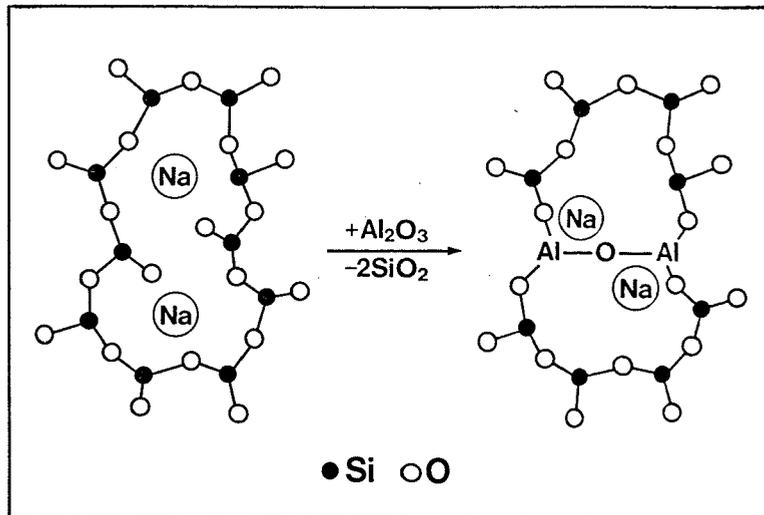


Bild 14:

Austausch von SiO_2 durch Al_2O_3 in einem Na-Silikatglas

In ähnlicher Weise können Erdalkalimetalle inkorporiert werden. Ionen mit hoher Wertigkeit und kleinem Radius, wie beispielsweise das Aluminium-Ion Al^{3+} , können wie Si als Netzwerkbildner fungieren. Jedes eingebaute Al^{3+} -Ion erzeugt im Vergleich zu Si^{4+} eine negative Ladung, die durch ein positiv geladenes Alkalimetall-Ion, wie z.B. Na^+ , neutralisiert werden kann. Zur Herstellung chemisch besonders stabiler Gläser ist die richtige Wahl des Verhältnisses von $\text{Na}_2\text{O} : \text{Al}_2\text{O}_3$ von Bedeutung, es soll größer als 1 sein.

Bortrioxid lässt sich ebenfalls als Netzwerkbildner zur Substitution von SiO_2 verwenden und führt - in dem richtigen Konzentrationsbereich eingebaut - zur Bildung von Gläsern, die sich durch ihre chemischen und mechanischen Eigenschaften auszeichnen. Wichtig ist ihre gute Verträglichkeit für eine Aufnahme zusätzlicher Metalloxide (Spaltprodukte).

Eine Entglasung sollte nach Möglichkeit vermieden werden, denn sie verändert - im Hinblick auf die Konditionierung von HAW auf negative Weise - die chemischen Eigenschaften des Glases. Die sich ausscheidenden kristallinen Mineralphasen weisen meistens einen höheren SiO_2 -Gehalt auf als dies im Mittel im Originalglas der Fall ist. Übrig bleiben dann

leichter lösliche Restphasen mit einem niedrigeren SiO_2 -Gehalt. Die mit einer Entglasung verbundene Volumenänderung verursacht ebenso, wie die unterschiedlichen Ausdehnungskoeffizienten von Kristalliten und Restglas, thermische Spannungen im Produkt.

Das Phasenzustandsdiagramm für das ternäre Glassystem $\text{Na}_2\text{O}-\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ ist in Bild 15 dargestellt /FIL 76/.

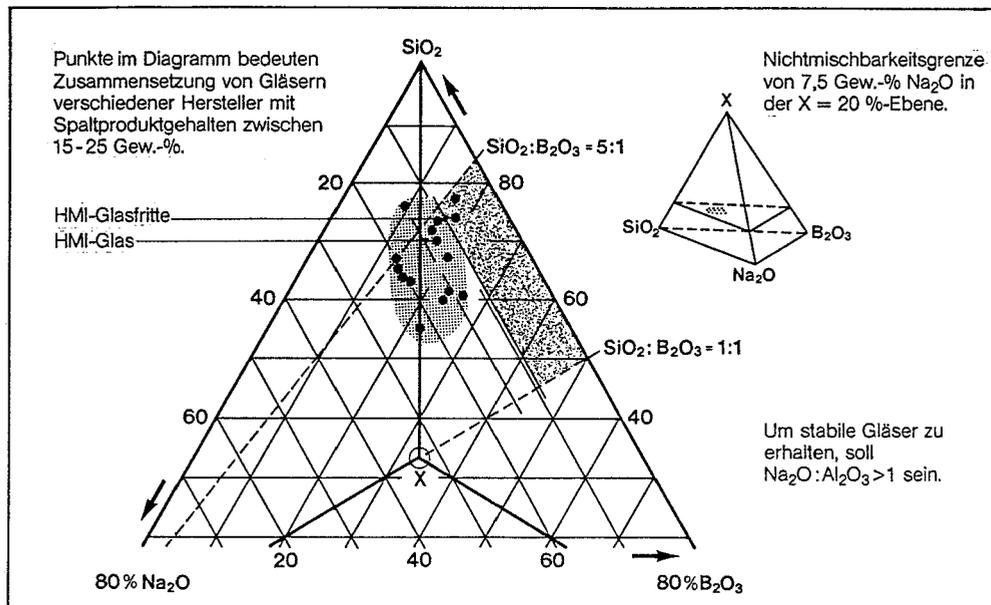


Bild 15:

Zusammensetzung der Borosilikat-Spaltproduktgläser als Tetraeder (Angaben in Gewichtsprozent).
Projektion der $X = 20\%$ -Ebene auf die $\text{SiO}_2-\text{B}_2\text{O}_3-\text{Na}_2\text{O}$ -Ebene.

4.4.3 Auflösemechanismus von Gläsern

Für die Beurteilung der chemischen Stabilität von Gläsern wird im allgemeinen Sprachgebrauch der Begriff der Auslaugbeständigkeit in Wasser bzw. in wässrigen Lösungen gebraucht. Die dabei benutzte Auslaugrate kann zu Mißverständnissen führen, insofern als die Zahlenwerte ein selektives Herauslösen eines bestimmten interessierenden Radionuklids aus dem Festkörper suggerieren. Deshalb sollte man besser von einer Korrosionsrate des Abfallproduktes sprechen, denn der Auslaugprozeß von Abfallgläsern ist durch eine Matrixauflösung kontrolliert.

Es erscheint sinnvoll, zwischen den beiden Begriffen

- Korrosion (kongruente Auflösung des Glasnetzwerkes) und
 - Auslaugung (selektives Herauslösen einer individuellen Glaskomponente)
- zu unterscheiden.

Die Glasauflösung beginnt sofort nach einem Kontakt mit wäßrigen Lösungen. Anfangs ist eine ziemlich gleichmäßige Abtragung für alle Elemente zu beobachten. Gemessen wird dieser Effekt allerdings durch die Bestimmung der einzelnen Elemente in der Lösung. Das bedeutet, daß eine eventuelle Ablagerung als Feststoff auf dem Glas oder eine Sorption an entstandenen Gelschichten und später sogar eine Ausfällung als Niederschlag nicht ohne weiteres erfaßt werden.

Der in Bild 16 dargestellte Verlauf der Glaskorrosion beschreibt den unter statischen Randbedingungen ablaufenden Vorgang in schematischer Weise.

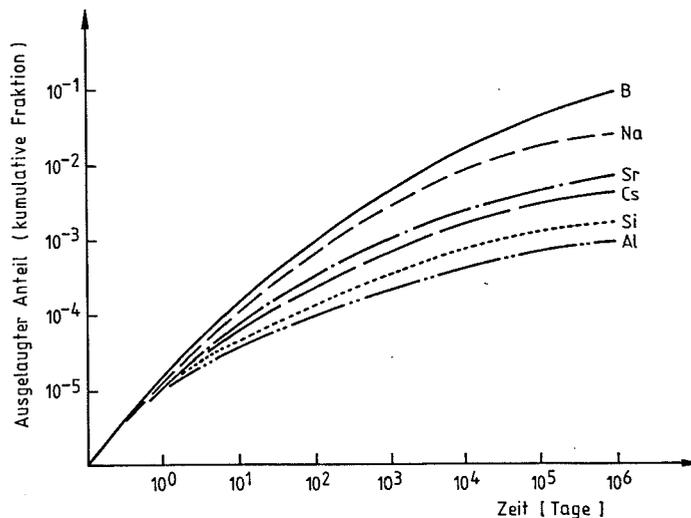


Bild 16:

Abhängigkeit der Glaskorrosion verschiedener Glasbestandteile von der Zeit

In den ersten (bis zu ca. 10) Tagen ist eine ziemlich gleichmäßige Abtragung für alle Glasbestandteile zu beobachten. Die Ausbildung einer Oberflächenschutzschicht auf der Glasoberfläche ist in diesem Zeitraum

praktisch nicht festzustellen. Alle Substanzen werden echt gelöst (teilweise bilden sich aber auch Kolloide, z.B. des Plutoniums). Die Löslichkeitsprodukte für die einzelnen Verbindungen werden noch nicht überschritten. Nach 7 bis 20 Tagen tritt dann eine Differenzierung in den gemessenen Lösungskonzentrationen auf. Sie ist begleitet von einer Deckschichtbildung auf der Glasoberfläche.

In Wasser bzw. wäßrigen Lösungen leicht lösliche Stoffe, vor allem Natrium- und Borverbindungen, zeigen weiterhin einen nahezu linearen Konzentrationsanstieg in der wäßrigen Phase, während sich die schwer löslichen Substanzen, d.h. solche mit einem kleinen Löslichkeitsprodukt, als Niederschlag vorzugsweise auf der Glasoberfläche abscheiden. Das Bild wird noch dadurch kompliziert, daß eigentlich leicht lösliche Stoffe, wie beispielsweise Strontium- und Cäsiumverbindungen, wegen ihrer starken Neigung zur Sorption auf den meist gelartigen Niederschlägen angereichert werden. Ihr Konzentrationsanstieg in der Lösung verlangsamt sich deshalb ebenfalls. Der Wassereintritt in die Glasoberfläche durch Diffusion führt zu einer Hydrolyse des SiO_2 -Netzwerkes, mit der ein Herauslösen von Natrium- und anderen Metallionen einhergeht. Wenn der Sättigungswert erreicht ist, tritt eine Ausfällung aus der Lösung ein. Die Siliziumhydroxidschicht weist stark sorbierende Eigenschaften auf.

Die Löserate ist eine Funktion der Lösungskonzentration des jeweiligen Stoffes. Die sich auf der Glasoberfläche abscheidenden Schichten bestehen wegen der hohen Si-Konzentration im Glas hauptsächlich aus SiO_2 -Gelschichten. Darauf sind andere Substanzen zum Teil in reiner Kristallform abgelagert. Weitere Substanzen haben sich durch Ionenaustausch oder Sorption abgeschieden; also ein sehr komplexes Geschehen.

Es ist verständlich, daß eine bereits mit Si-Ionen beladene Lösung Glas weniger gut anzugreifen vermag als etwa deionisiertes Wasser. Dies wird durch das Experiment bestätigt.

Die Temperatur ist ein wesentlicher Einflußfaktor auf die Auslaugung. In der Literatur /TYM 77, BRA 77/ sind mittlere Korrosionsraten für Borosilikatgläser zwischen 10^{-4} bis 10^{-7} g/cm²d bei Raumtemperatur vorzufinden. Messungen an Gläsern im Autoklaven bei 100 bzw. 200 °C

und 60 MPa erbrachten Werte von 10^{-4} bzw. 10^{-3} g/cm²d. Druckerhöhungen allein hatten keinen merklichen Einfluß auf die Korrosionsraten. Bis zu Temperaturen von etwa 150 °C gehorchen die Auslauggeschwindigkeiten offensichtlich der Arrhenius-Gleichung, d.h. sie steigen exponentiell mit der Temperatur an. Temperaturen über 250 °C führen zu einer beschleunigten Zerstörung der Gläser.

Die Ionenkonzentrationen in der Lösung hängen vornehmlich von den entsprechenden Löslichkeitsgrenzwerten unter den vorherrschenden Bedingungen ab. Nach der Sättigung mit Metallionen werden ihre Lösungskonzentrationen durch die festen Reaktionsprodukte in der Oberflächenschicht kontrolliert. Oberflächenschicht und Lösung stehen im thermodynamischen Gleichgewicht. Ein anschauliches Beispiel des Geschehens an einer korrodierten Glasoberfläche vermittelt Bild 17.

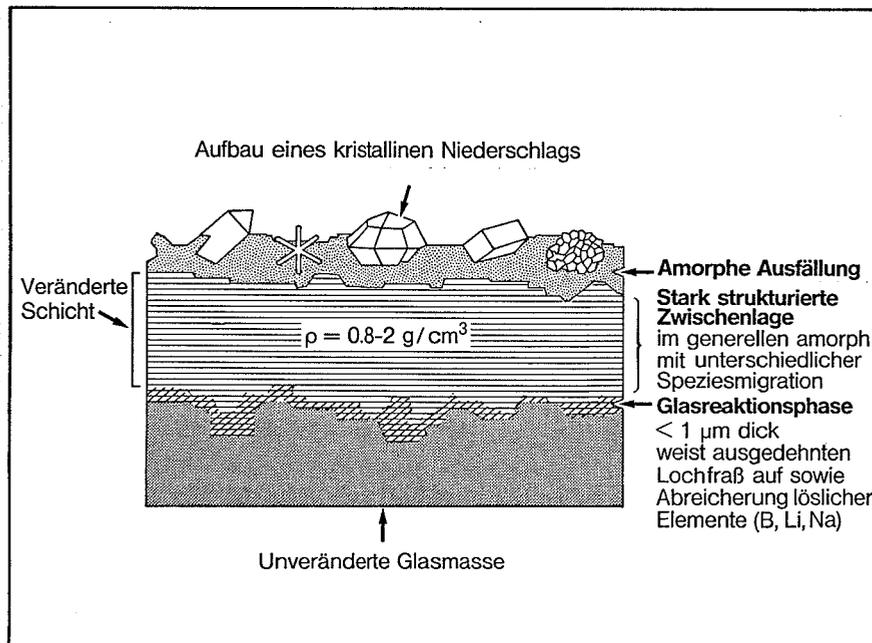


Bild 17:

Bildliche Darstellung einer korrodierten Glasoberfläche

In statischen Auslaugtests zeigt die Korrosionsrate mit der Zeit stets eine abnehmende Tendenz. Erklärt wird diese Beobachtung einerseits mit der Bildung einer mehr oder minder schützenden Gelschicht auf der Glasoberfläche /WIC 82/. Hinzu kommt andererseits der beschriebene Sät-

tigungseffekt in den zutretenden Lösungen (Auslauglösungen), der ebenfalls zu einer Verlangsamung der Auflöserate führt /STR 83/.

Unter der Deckschicht verlangsamt sich zwar der Korrosionsvorgang, kommt aber nicht zum Stillstand.

Wichtige Einflußgrößen auf die Glaskorrosion sind:

- Temperatur

Ihr Einfluß läßt sich mit Hilfe der Arrhenius-Gleichung durch eine experimentell ermittelte Aktivierungsenergie beschreiben.

- p_H -Wert der Lösung

Die Korrosionsabhängigkeit von der Wasserstoffionen-Konzentration kann erheblich sein. Am geringsten ist sie im neutralen Bereich (p_H 4 - 8). Ab p_H 9 wird eine Netzwerkauflösung beobachtet. Bei Auslaugung unter sauren Bedingungen wird weitgehend eine kongruente Auflösung (Korrosion) beobachtet, hingegen erfolgt im alkalischen Milieu durch die Bildung von Oberflächenschichten und Netzwerkzerstörung ein inkongruentes Inlösunggehen der Glasbestandteile (Auslaugung).

- E_h -Wert der Lösung

Der Korrosionsangriff auf das Glas hängt deutlich davon ab, ob das Produkt in einer oxidierenden oder reduzierenden Atmosphäre dem Einfluß einer wäßrigen Lösung ausgesetzt ist. Die Anwesenheit von Sauerstoff behindert im allgemeinen die Reduktion. Reduzierende Bedingungen (z.B. die Gegenwart von metallischem Eisen oder Fe^{2+} -Ionen) sind eindeutig vorteilhaft für Elemente wie Tc oder Np, da sie zu schwer migrierenden Spezies reduziert werden (Tc^{4+} , Np^{4+}).

- Strahlung

Der Einfluß ist nicht allzu groß, sofern es sich allein um Festkörperschädigungen handelt. Bedeutsam kann der Strahlungseinfluß hingegen werden, wenn dadurch eine p_H -Wert-Veränderung in einer das Abfallprodukt umgebenden Lösung induziert wird. Dies trifft dann besonders zu, wenn durch Radiolyse freie Säuren gebildet werden,

z.B. Salzsäure (HCl) in einer Salzlagerstätte. Radiolyseeffekte können die Korrosionsraten insgesamt unter Einbeziehung aller in Frage kommenden Faktoren bis auf das Doppelte erhöhen.

- Druck

Ein meßbarer Einfluß wurde bisher nur in wenigen Fällen registriert; gegebenenfalls ist der Effekt relativ gering.

- Chemische Zusammensetzung der Lösung

Sie kann je nach Art der Inhaltsstoffe einen merklichen Einfluß ausüben. Eingeschlossen sind hierin Begleitstoffe, die vom Wirtsgestein oder vom Abfallbehältermaterial stammen.

- Zeitabhängigkeit

Die Auslaugung bzw. die Korrosion zeigt eine starke Abhängigkeit von der Zeit. In der einfachsten Form läßt sie sich durch den Zusammenhang $Q = K \cdot t^n$ beschreiben. Dabei bedeuten Q die ausgelaugte Menge an Glaskomponenten, K eine Materialkonstante und t die Einwirkungszeit. Der Exponent n steht im Zusammenhang mit dem stattfindenden Auslaugmechanismus. Bei einer ungestörten Korrosionsreaktion ist $n = 1$, hingegen beträgt $n = 0,5$, wenn es sich um eine rein diffusionskontrollierte Reaktion handelt /ALT 82/.

- Exponierte Oberfläche

Zur Berechnung der Korrosionsrate wird das Verhältnis Oberfläche zu Volumen (O/V) benötigt. Die Auslaugung der Gläser ist der exponierten Oberfläche direkt proportional. Eine Zerstörung des Festkörpers durch mechanische oder thermomechanische Belastungen sollte daher verhindert werden.

- Dynamische Verhältnisse

Das Bild kann sich drastisch ändern, wenn anstelle statischer Auslaugbedingungen solche dynamischer Natur vorliegen. Das heißt, das Abfallprodukt ist einer Auslaugung bei ständig neuer Zufuhr von Lösungsmittel ausgesetzt. Den entscheidenden Einfluß übt dann die Fließgeschwindigkeit aus. Allerdings wird der Einfluß Lösungsmittel-Fließgeschwindigkeit auf die Korrosionsraten häufig überschätzt,

denn in der Regel handelt es sich immer nur um sehr kleine Werte, denn ein "Durchströmen" des Endlagers im bildlichen Sinne ist so gut wie ausgeschlossen.

- Lösungsmittel

Bei den meisten experimentellen Untersuchungen zur Glaskorrosion bzw. zur Radionuklidauslaugung gelangten deionisiertes Wasser oder salzarme Grundwässer aus Granit- und Basaltformationen zur Anwendung. Versuche mit Salzlaugen sind demgegenüber viel seltener. Mit Hilfe der Versuche konnte nachgewiesen werden, daß die Korrosionsraten in Salzlaugen in der Regel deutlich geringer sind als mit weitgehend salzfreien Wässern, d.h., salzfreies Wasser zeigt den stärksten Löseeffekt.

4.4.4 Langzeitverhalten von Glasprodukten

Ein Problem besonderer Art stellt nun die Extrapolation aus den Laborergebnissen auf das Langzeitkorrosionsverhalten der in einem geologischen Endlager deponierten Glasprodukte mit Hilfe mathematischer Modelle dar. Geringe Ungenauigkeiten bzw. Fehlerbandbreiten in den Meßwerten und Modellansätzen führen bei Zeiträumen von hunderttausend Jahren zu stark unterschiedlichen Resultaten. Der bisher am intensivsten betriebene Versuch, von Laborexperimenten auf das Langzeitverhalten von Abfallgläsern in einem geologischen Endlager zu schließen, läuft in einem amerikanischen Projekt. Das Rechenprogramm stammt von U.S. Geochemical Survey und trägt den Namen PHREEQUE /PAR 80/. Es wurde nicht entwickelt, um die Beständigkeit von Abfallgläsern vorherzusagen, sondern dient vielmehr der generellen Beschreibung von Auflösungs- und Mineralisationsvorgängen in der Natur.

Ein speziell auf die Auslaugung von Abfallgläsern zugeschnittenes Rechenprogramm wurde in den letzten Jahren im Auftrag des U.S. Department of Energy vom Lawrence Livermore National Laboratory entwickelt /PNL 84b/. Es trägt den Namen PROTOCOL (PROgram TO COrrelate Leaching data) und ersetzt bzw. verbessert alle bisher zum Einsatz gekommenen geochemischen Codes, wie

- PHREEQUE /NOR 83/
- EQ3/6 /WOL 79/
- EQ3NR /LLL 83/.

Die mit verschiedenen semiempirischen Ansätzen erzielten Ergebnisse beim Modellieren des Langzeitverhaltens der Abfallgebinde in geologischen Endlagern waren für zahlreiche Beispiele ermutigend. Die im Projekt Sicherheitsstudien Entsorgung /PSE 85/ durchgeführten Sicherheitsanalysen zeigten, daß der gegenwärtige Kenntnisstand für die Erfüllung des Schutzzieles ausreichend ist.

Zur Aufstellung und Validierung vertiefter konzeptioneller Modelle für die genauere Erfassung einzelner Komponenten sind weitere Untersuchungen notwendig. In einzelnen Fällen muß dazu die quantitative Erfassung der Eingabedaten verbessert werden. Wünschenswert sind zusätzliche experimentelle Meßwerte für standortspezifische Nuklidlöslichkeiten zum Abbau der bislang verwendeten konservativen Datensätze. Auflösungsgeschwindigkeiten müssen die Umgebungsbedingungen am Lagerort berücksichtigen.

4.5 Herstellungsverfahren für HAW-Glasprodukte

Die Verfestigung der hochaktiven Spaltproduktlösungen zu glasartigen Produkten unmittelbar nach der Wiederaufarbeitung bietet sicherheitstechnische Vorteile bei der Handhabung des Abfalls sowie bei seiner Zwischenlagerung.

Im Prinzip sind sich alle Verglasungsverfahren sehr ähnlich, die einzelnen Prozeßstufen sind in Bild 18 schematisch aufgeführt. Sie bestehen aus den Schritten Eindampfen, Denitrieren, Trocknen, Kalzinieren und Schmelzen. Bei manchen Verfahren sind die Einzelschritte völlig entkoppelt, bei anderen nur teilweise und bei der einfachsten Methode laufen sie alle gemeinsam in einem Reaktionsgefäß ab.

Die konzentrierte HAW-Lösung wird in einem kombinierten Trocknungs- und Kalzinierungsschritt von Salpetersäure und Nitraten befreit und in die Oxide überführt. Nach dem Mischen mit Glaspulver werden die Oxide

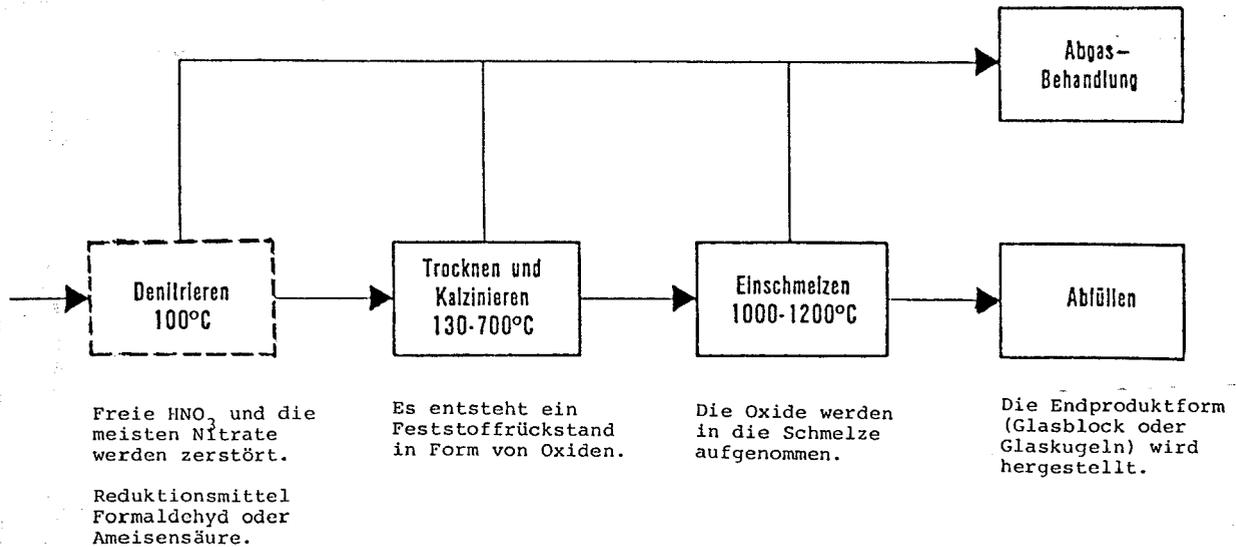


Bild 18:
Hauptprozessstufen der HAW-Verglasung

eingeschmolzen, und die Schmelze in Behälter abgegossen. Die beim Prozeß anfallenden Kondensate und Abgase werden eigenen Behandlungssystemen zugeführt.

Eine Abgasbehandlung ist wichtig, da die Verglasungsprozesse Temperaturen von 1000 - 1200 °C erfordern und deshalb eine teilweise Elementverdampfung in das Abgas auftritt. Durch den Einsatz verschiedener Naß- und Trockenfiltereinrichtungen lassen sich mit unterschiedlichem Aufwand in jedem Falle ausreichend hohe Rückhaltefaktoren erzielen.

Eine separate chemische Denitrierung vor der Kalzinierungsstufe vereinfacht die Abgasreinigung, da insgesamt weniger Spaltprodukte in die Abgasstrecke ausgetragen werden. Die chemische Denitrierung durch Kochen der Spaltprodukt-Eingangslösung unter Zusatz eines Reduktionsmittels bewirkt eine Zerstörung überschüssiger Salpetersäure und teilweise auch salzgebundener Nitrate in die Komponenten N_2 , N_2O , NO und NO_2 und verringert durch das vorherrschende reduzierende Milieu eine Rutheniumverflüchtung. Außerdem beobachtet man einen verminderten Korrosionsangriff auf die Apparate. Als Denitrierungsreagentien verwendet man Ameisensäure, Formaldehyd oder Zucker. Die Metallnitrate werden in die entsprechenden Oxide oder Hydroxide umgewandelt. Bei Verzicht

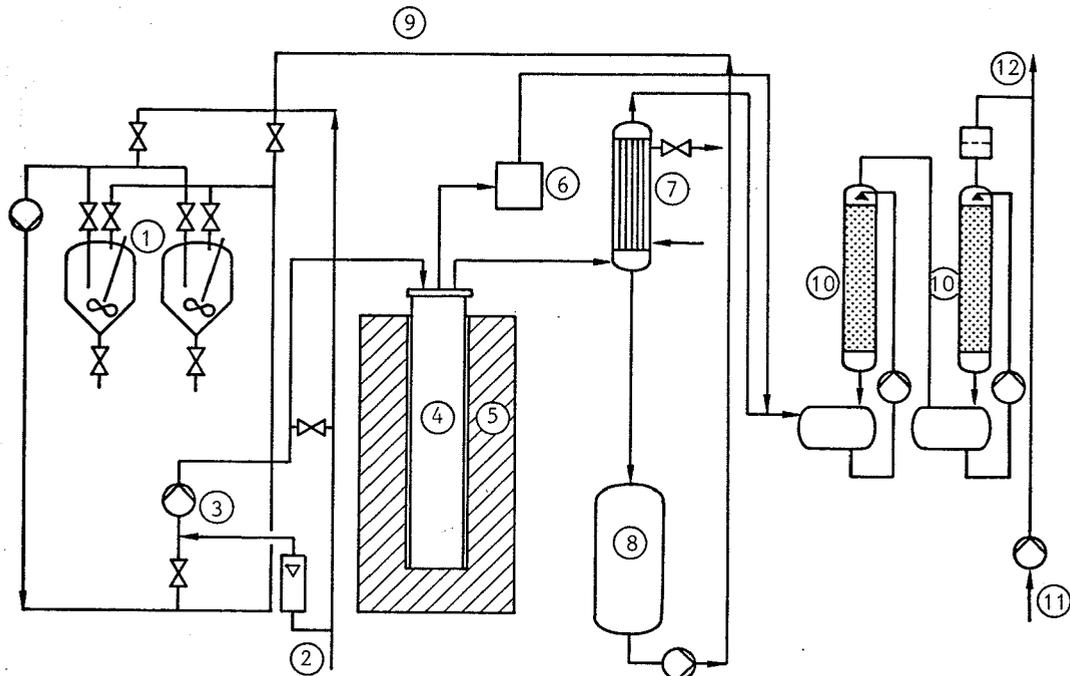
auf eine separate chemische Denitrierung geschieht die Umwandlung von Salpetersäure und Nitraten in der Kalzinierungsstufe bzw. zu Beginn des Glasschmelzvorganges durch rein thermische Zersetzung. Dabei können verstärkt Aerosole entstehen. Das Abgas besitzt oxidierenden Charakter und enthält deshalb vermehrt höherwertige Stickoxide sowie verflüchtigtes Ruthenium. Es bedarf daher einer aufwendigeren Reinigung. Bei den modernen keramischen Glasschmelzanlagen sind die Denitrierung, Kalzinierung, Trocknung und Schmelzen zu einer Verfahrensstufe zusammengefaßt.

Nach dem Erstarren des Glasblocks in der Edelstahlkokille bedarf er in jedem Fall einer programmierten langsamen Abkühlung, um Materialspannungen - und damit eine Rißbildung - so gering wie möglich zu halten.

4.5.1 Das Pot-Verfahren

Die konsequenteste Integration von Verfahrensschritten in einer Stufe ist der Pot-Verfahrenstyp, der heute nur noch im britischen HARVEST-Prozeß, einer Weiterentwicklung des ursprünglichen FINGAL-Verfahrens, verfolgt wird (Bild 19). Inzwischen ist bekannt, daß die Engländer diese Entwicklung zugunsten des französischen AVM-Verfahrens eingestellt haben.

Bei den Pot-Prozessen handelt es sich um das älteste und einfachste Verglasungsverfahren. Die vorkonzentrierte HAW-Lösung wird in dem späteren Endlagerbehälter (Pot) getrocknet, durch Temperaturerhöhung auf 400 - 900 °C kalziniert und thermisch denitriert, bei 1000 - 1150 °C geschmolzen und zu einem Glasblock (max. 0,9 t Glas) verfestigt. Das entweichende Abgas wird vor der eigentlichen Reinigung zunächst durch eine Glasschmelze geleitet, die sich in einem später zum Einsatz gelangenden "Pot" befindet (in Bild 19 nicht dargestellt). Anschließend durchläuft das Abgas einen Rohrbündelwärmetauscher, in dem der Wasserdampf kondensiert und der größte Teil der Aerosole zurückgehalten wird. Es folgen zwei Füllkörperkolonnen zur Auswaschung der Stickoxide. Das Kondensat aus dem Wärmeaustauscher wird rezirkuliert.



- | | | |
|-------------------|-------------------------------|------------------------|
| 1 Vorlagebehälter | 5 Mehrzonenwiderstandsheizung | 9 Kondensatrückführung |
| 2 Wasserzulauf | 6 Druckausgleichssystem | 10 Waschtürme |
| 3 Dosierpumpe | 7 Kondensator | 11 Preßluft |
| 4 Kokille | 8 Kondensatbehälter | 12 Zum Kamin |

Bild 19:

Fließbild des englischen HARVEST-Prozesses

Da keine chemische Denitrierung stattfindet, tritt eine relativ starke Rutheniumverflüchtigung auf. Außerdem werden rund 1 % der Abfallstoffe als Feinstaub und Aerosole mit dem Abgas ausgetragen.

Probleme bereiten die starke Korrosion des Stahlbehälters, ein Verkruften der oberen Behälterwand und ein Übersäumen der konzentrierten Lösung. Als weiterer Nachteil gilt der geringe spezifische Durchsatz infolge der diskontinuierlichen Betriebsweise. Außerdem können nur relativ kleine Tiegeldurchmesser eingesetzt werden. Die erzeugte Glasqualität befriedigt bisher wegen der gefundenen Inhomogenitäten noch nicht in vollem Umfang. Bessere Ergebnisse sind mit den nachfolgend beschriebenen und größtenteils kontinuierlich arbeitenden Verfahren zu erzielen.

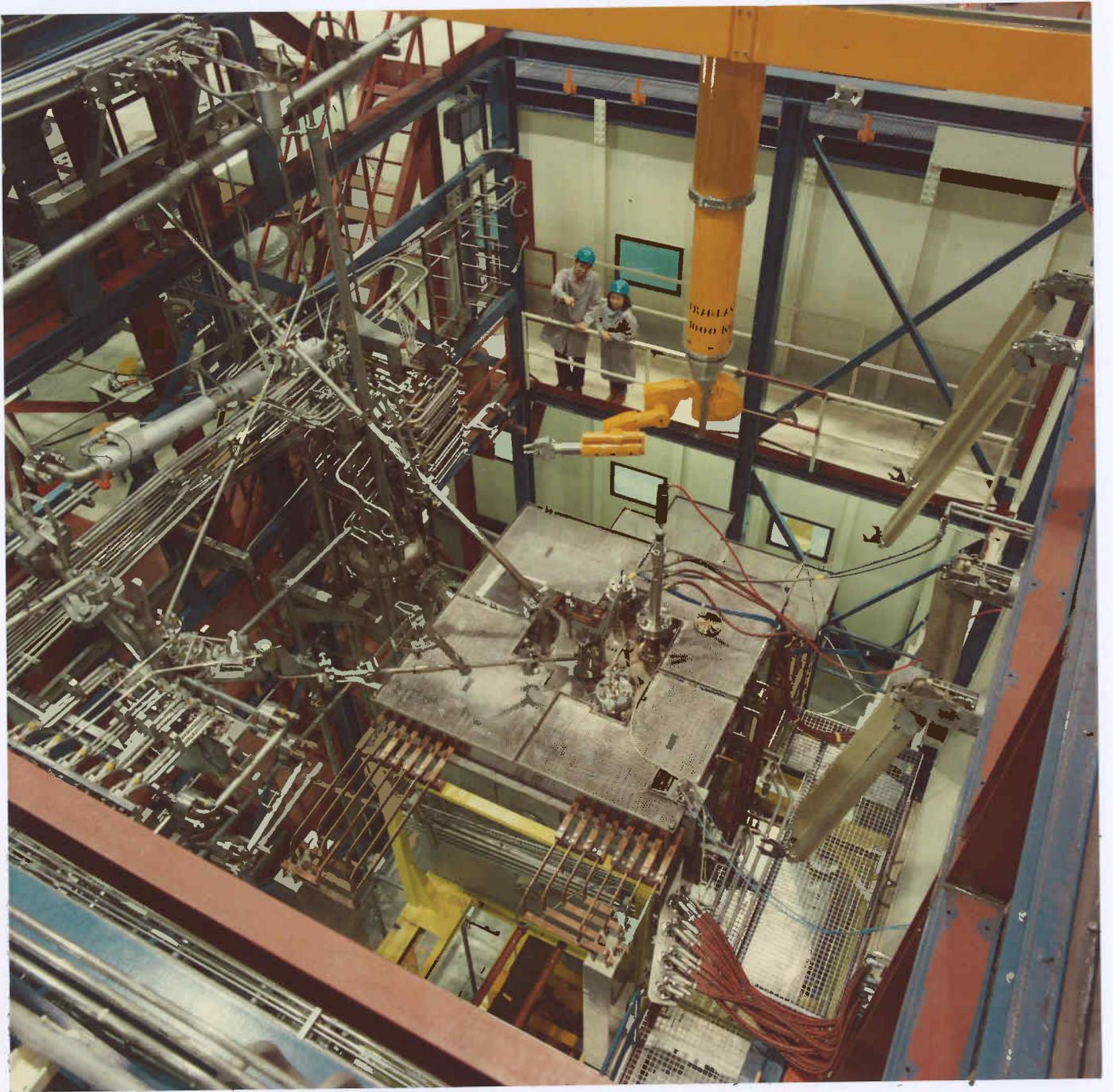


Bild 20
Höhe 12cm

S. 51

5012-2014C

4.5.2 Das PAMELA-Verfahren

Besonders erfolgreich verlief die in den USA in den Grundzügen begonnene und dann im Kernforschungszentrum Karlsruhe und bei der EURO-CHEMIC in Mol/Belgien konsequent weiterbetriebene Entwicklung des keramischen Glasschmelzofens mit Flüssigeinspeisung (Bild 20).

In dem aus Keramikmaterial aufgebauten Schmelztiegel wird elektrischer Strom über Tauchelektroden direkt durch die als Heizwiderstand dienende Glasschmelze geleitet. Die Hauptkammer des Schmelzofens wird durch Elektroden an beiden Seiten direkt beheizt. Der Deckel des Schmelzofens ist mit Heizelementen ausgerüstet. Sie werden vor Beginn des Schmelzprozesses eingesetzt, um den Schmelzofen auf eine Temperatur von etwa 750 °C vorzuheizen.

Bild 20:

Keramischer Glasschmelzofen (Foto: KfK)

Das nunmehr als bundesdeutsches Referenzverfahren geltende Prozeßschema wird in der PAMELA-Anlage auf dem Gelände der ehemaligen Wiederaufarbeitungsanlage EUROCHEMIC in Mol/Belgien im Rahmen des vom Bundesminister für Forschung und Technologie (BMFT) geförderten Programms bis zur industriellen Einsatzreife weiterentwickelt (PAMELA: Pilotanlage Mol zur Erzeugung lagerfähiger Abfälle).

In der Ende 1985 fertiggestellten und in Betrieb genommenen Anlage wurde in den darauffolgenden 6 Monaten sowohl die deutsche als auch die belgische Variante des PAMELA-Verfahrens in zwei getrennten Kampagnen erfolgreich demonstriert. Dabei wurden die insgesamt am Standort lagernden rund 60 m³ HAW aus der Wiederaufarbeitung von LWR-Brennelementen verglast. Nach dem deutschen Verfahrensprinzip werden kompakte Glasblockkokillen produziert, während der von belgischer Seite entwickelte VITROMET-Prozeß das Schmelzgut in Glasperlen aufteilt, die mit Blei zu sogenannten VITROMET-Gebinden vergossen werden. Bild 21 verdeutlicht schematisch die beiden HAW-Abfallgebinde.

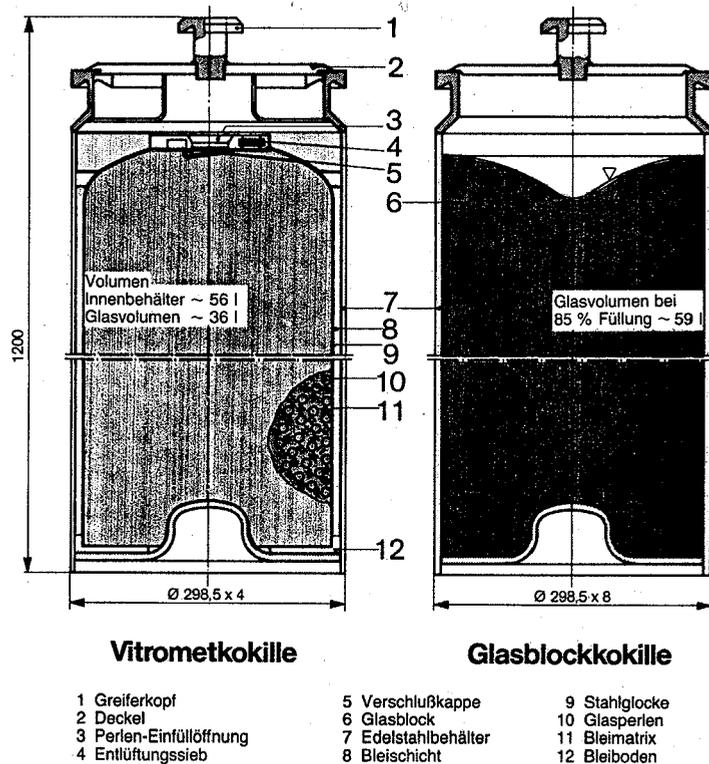


Bild 21:

Querschnitt der VITROMET- und Glasblockkokille

In der zweiten Jahreshälfte 1986 wurde mit der Verglasung der stark aluminiumnitrat-haltigen HAW-Lösungen begonnen, die aus der Wiederaufarbeitung hochangereicherter Uranbrennelemente stammen. Es sind insgesamt etwa 800 m³ zu verfestigen, wobei nur noch die Glasblockvariante zum Einsatz gelangt. Wegen des hohen Salzgehaltes der HAW-Lösungen ist die Spaltproduktbeladung des Glasproduktes wesentlich geringer und daher die Anzahl der Glaskokillen entsprechend höher. Man rechnet mit einem Zeitbedarf von 4 bis 5 Jahren. Später soll eventuell zusätzliches Material aus der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) bereitgestellt werden.

Das PAMELA-Verfahrensprinzip mit den beiden Verglasungsalternativen zeigt Bild 22.

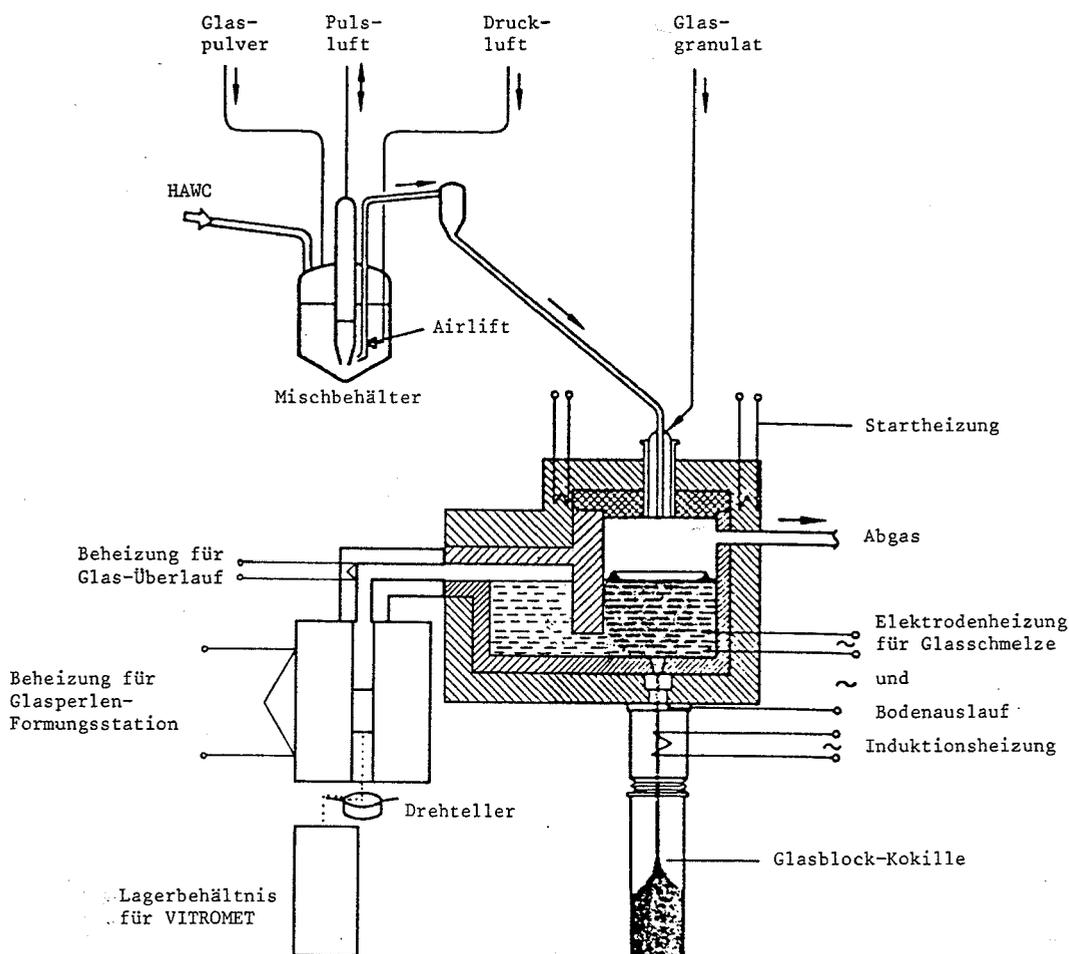
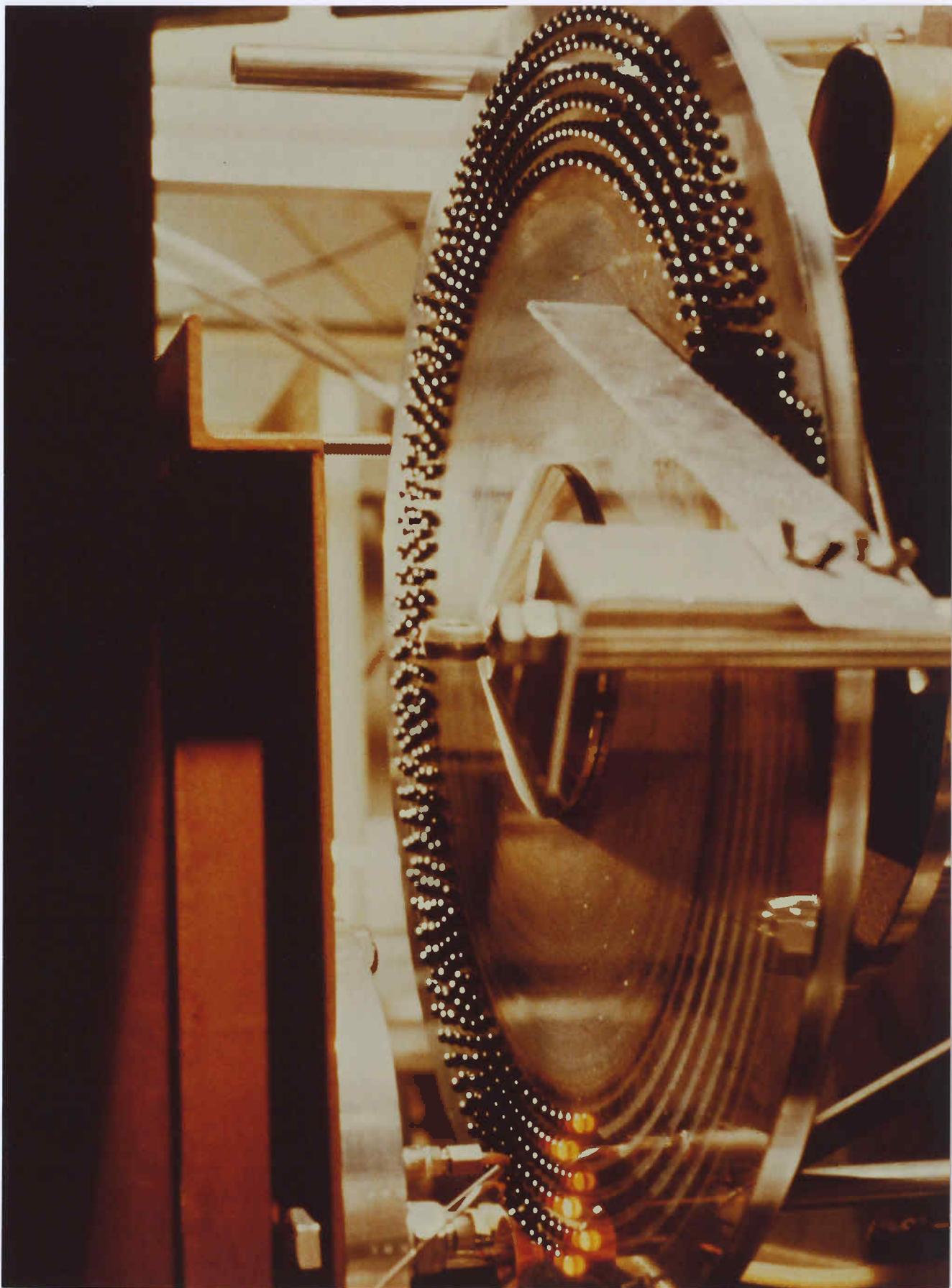


Bild 22:

PAMELA-Verfahren zur Spaltproduktverglasung

HA10 - Vergasung
Gasstellen für das Vitrauet - Verfahren
1982
DWA

787/12
Höhe: 5cm
Bild 23
S. 24



Die Abfalllösung, in die ein Anteil des Glases in Pulverform zugegeben wird, gelangt ohne weitere Vorbehandlung über ein zweistufiges Dosierairliftsystem in den Schmelzer. In diesem wird die Glasschmelze zwischen Elektroden auf Schmelztemperatur (ca. 1150 °C) gehalten. Sie wird teilweise von einer Kalzinatinsel bedeckt, auf die die Abfalllösung und über eine separate Leitung das restliche Glas in Form von Perlen gegeben wird. Verdampfung, Trocknung, Zersetzung der freien Salpetersäure sowie der Nitrats und das Schmelzen geschehen in dem keramischen Tiegel. Das Glas wird chargenweise über ein Einfrierventil in die Endlagerbehälter abgelassen. Die Lösung aus dem Naßentstauber wird zum Schmelzer rezykliert. Die weitere Abgasreinigung besteht aus dem Kondensator, Strahlwäscher, der Waschkolonne, dem Fasermatten- und Absolutfilter.

Die gefüllte Kokille wird mit einem Deckel verschlossen. Nach ausreichender Abkühlung wird der Deckel mit der Kokille verschweißt und dekontaminiert. Anschließend kann sie abtransportiert werden.

Der keramische Schmelzofen besitzt für die diskontinuierlich ablaufende Glasblockherstellung einen Bodenauslauf und für die VITROMET-Herstellung einen kontinuierlich arbeitenden Überlauf, an den eine Perlenformungsstation gekoppelt ist. Durch mehrere Düsen tropft das flüssige Glas auf eine rotierende Stahlscheibe, auf der die Tropfen zu abgeflachten Glaskugeln erstarren. Die Glasperlen werden von der Stahlscheibe abgestreift und fallen direkt in die bereitgestellte Kokille (Bild 23).

Bild 23:

Glasperlen für das VITROMET-Verfahren (Foto: DWK)

Der mit Glasperlen gefüllte VITROMET-Behälter wird zur Verbleiungsstation gebracht, wo bei Temperaturen um 400 °C das zugeführte Bleigranulat aufgeschmolzen und die Glasperlen in Blei eingebettet werden. Nachdem die Behältnisse abgekühlt sind, werden die Deckel aufgesetzt und dicht verschweißt. Nach einer äußeren Dekontamination können sie ins Zwischen- bzw. Endlager abtransportiert werden.

Das VITROMET-Verfahren ist dann von Vorteil, wenn relativ kurzgekühlte HAW-Lösungen verfestigt und endgelagert werden sollen, da die quasi-homogene Bleimatrix für eine effiziente Wärmeabfuhr sorgt und eine sonst möglicherweise auftretende Entglasung unterbindet. Hinsichtlich der Auslaugbeständigkeit und damit der Langzeitsicherheit ergeben sich gegenüber einem Glasblockmonolithen keine Unterschiede. Bei der Entscheidung für die eine oder andere Variante dürfte der höhere Kostenaufwand für das VITROMET-Verfahren den Ausschlag geben.

4.5.3 Das AVM-Verfahren

Dieses Verfahren wurde in Marcoule/Frankreich entwickelt (Atelier Vitrification Marcoule). Es handelt sich um eine Fortentwicklung des sogenannten PIVER-Prozesses. Ein wichtiger Fortschritt besteht in der jetzt kontinuierlichen Betriebsweise.

Die mit der Anlage in Marcoule im industriellen Dauerbetrieb gewonnenen Erfahrungen mit sehr zufriedenstellenden Ergebnissen stellen unter Beweis, daß neben dem PAMELA-Prinzip auch diese Verfahrensweise die hohen technischen Anforderungen erfüllt. Weitere Anlagen in La Hague/Frankreich und in Sellafield/Großbritannien sind im Bau und werden bald ihren praktischen Betrieb aufnehmen.

Das Verfahrensfließbild ist in Bild 24 dargestellt.

Die Spaltproduktlösung gelangt aus den gekühlten und gerührten Lagerbehältern über einen Vorlagebehälter zunächst in den Drehrohrkalzinator und wird entlang mehrerer Heizzonen getrocknet und kalziniert. Ein frei rotierender Brecher im Kalzinator mahlt das klumpige Kalzinat,

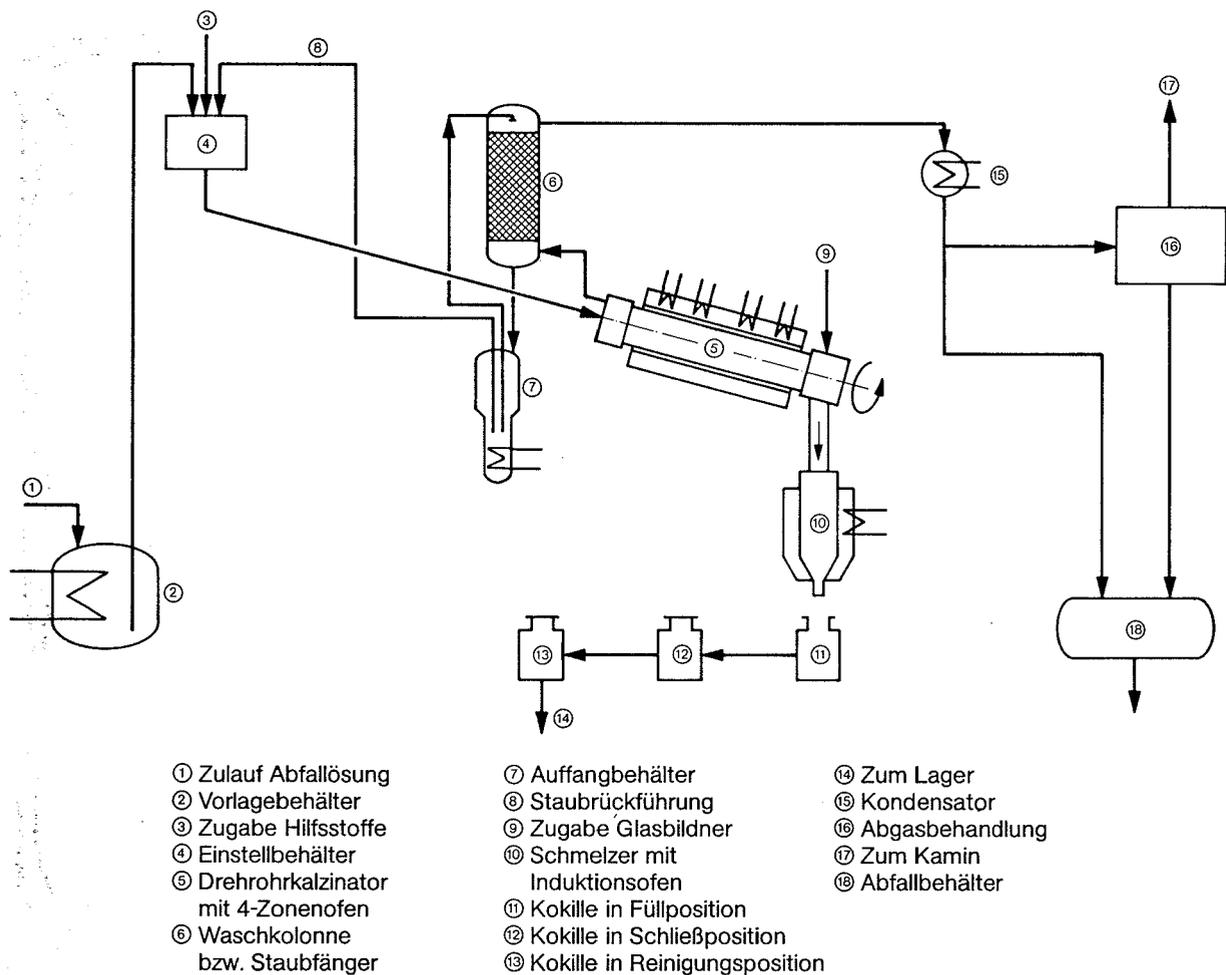


Bild 24:
 Fließbild des französischen AVM-Verfahrens

ausgasende Zusätze unterstützen den Mahlvorgang und sollen das Festbacken an den Wänden verhindern. Das Kalzinat fällt frei in den metallischen Schmelztiegel; das Matrixglas wird separat zugeführt. Der Schmelztiegel wird zonenweise induktiv beheizt. Die Glasschmelze wird am Boden abgelassen, jeweils drei Chargen in ein Endlagergefäß. Das Abgas wird über einen Naßentstauber zum Kondensator und zur weiteren Reinigung, bestehend aus Waschkolonnen und Filtern, geführt. Die Waschlösung aus dem Naßentstauber wird in den Kalzinator zurückgeführt.

Die Glaskokillen werden zugeschweißt, dekontaminiert und ohne Tempern in Senkschächten luftgekühlt bis zum Abtransport in ein Endlager zwischengelagert.

Während bei der Anlage in Marcoule eine Denitrierung auf thermischem Wege erfolgt, sollen zukünftige Anlagen wegen des verbesserten Betriebsverhaltens mit einer chemischen Denitrierungsstufe ausgerüstet werden.

4.5.4 Das FIPS-Verfahren

Dieses von der Kernforschungsanlage Jülich entwickelte Verfahren ähnelt dem französischen AVM-Prozeß. Allerdings wird anstelle des Drehrohrofens als Trockenstufe ein Walzentrockner eingesetzt. Ein weiterer Unterschied besteht darin, daß Schmelz- und Kalzinierungsprozeß gleichzeitig im Endlagerbehälter stattfinden und auf einen separaten Schmelzer gänzlich verzichtet wird. Das bei FIPS (Fission Produkt Solidification) angewandte Prinzip wurde bereits erfolgreich in den USA als "In-Can-Melting" demonstriert, wo die Entwicklung jetzt allerdings auf kontinuierlich arbeitende Schmelzstufen hinzielt.

Das FIPS-Verfahren beginnt mit einer chemischen Denitrierung zur Zersetzung der freien Salpetersäure in der Spaltproduktlösung. In einem zweiten Schritt wird die gesamte benötigte Glasmenge in Pulverform mit der Abfalllösung homogen vermischt. Die Suspension wird auf einem Walzentrockner, der aus einem Kreislauf gespeist wird, getrocknet. Das trockene Produkt wird von der Walze abgeschabt, fällt in den induktiv vorgeheizten Tiegel und wird zu einem Block verschmolzen; das Glas verbleibt in dem Schmelztiegel. Es werden also Einwegschmelztiegel benutzt, d.h., das Schmelzgefäß dient gleichzeitig als Endlagerbehälter. Durch das direkte Schmelzen im Tiegel sind Kokillen aus einem hochwertigen Material notwendig, wenn auch die Beanspruchung nicht so hoch ist wie bei einem kontinuierlich betriebenen Schmelztiegel, z.B. beim AVM-Prozeß. Die Brüden vom Trockner werden in einem Umluftsystem auskondensiert, die Abgase über NO_x -Wäscher und Filter geführt. Der Stand der FIPS-Entwicklung wird durch die Heißzellenanlage FIPS II dokumentiert. Das zugrundeliegende Fließschema zeigt Bild 25.

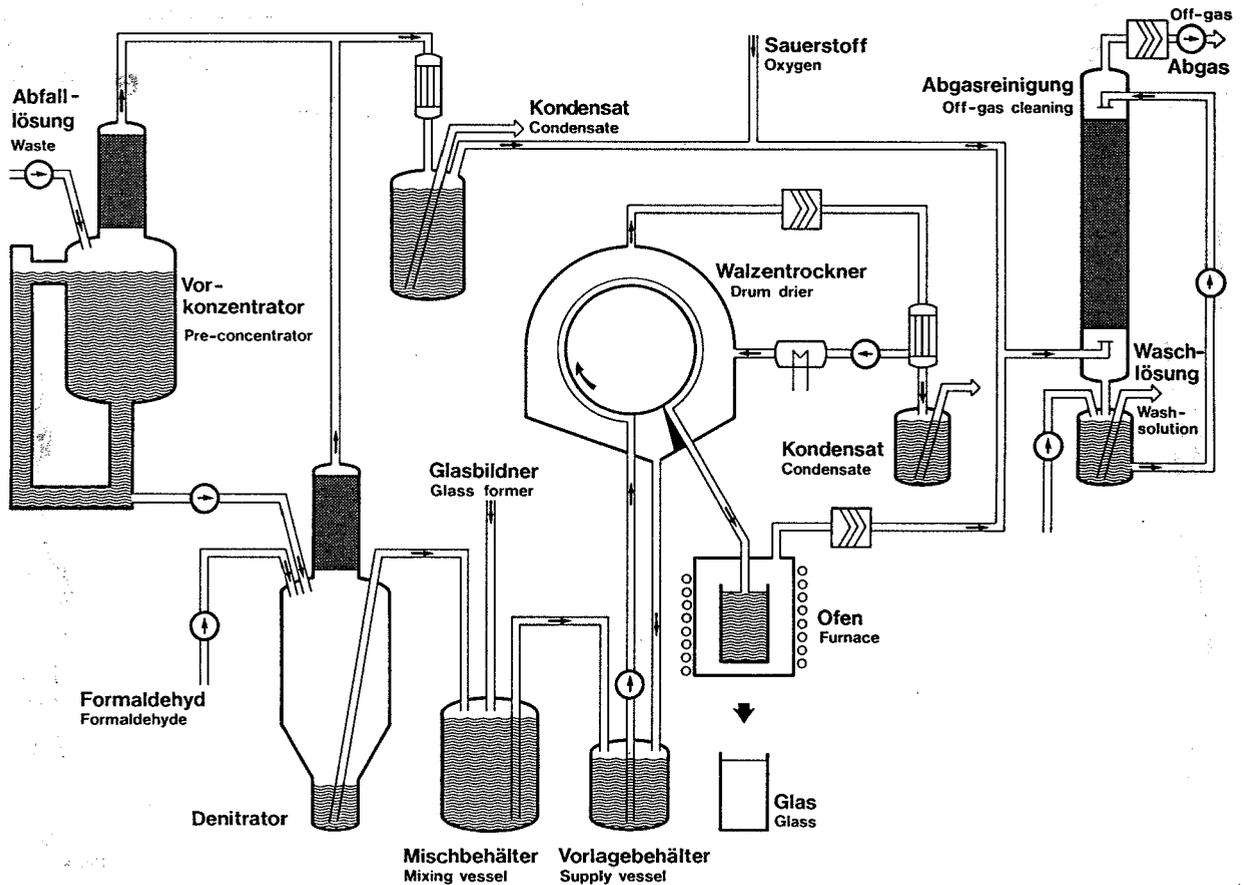


Bild 25:
Prinzipschema des FIPS-Verfahrens

4.6 Eigenschaften alternativer HAW-Verfestigungsprodukte

4.6.1 Allgemeine Gesichtspunkte

Um das Sicherheitsrisiko zu minimieren, ist zu überprüfen, welche Möglichkeiten zur Ausschöpfung jeder Einschlußbarriere sinnvoll sind. Diese Optimierung muß im Zusammenwirken der Mehrfachbarrieren erfolgen. Bei der Diskussion um die beste Qualität von Endlagerprodukten spielt dieser Gesichtspunkt eine wichtige Rolle. Ein Argument, das für die Eignung bzw. Nichteignung von Glas immer wieder ins Feld geführt wird, ist der Tatbestand, daß es sich bei Gläsern um thermodynamisch metastabile, amorphe Produkte handelt, die zur Entglasung neigen. Vom theo-

retischen, d.h. energetischen Standpunkt her betrachtet, sind kristalline Produkte stabiler, aber nicht unbedingt gegen alle Umwelteinwirkungen beständiger.

Durch den Effekt der Entglasung orientieren sich die in dem nahfeldgeordneten amorphen Glaszustand vorliegenden SiO_4 -Tetraeder-Grundgruppierungen zu einer energetisch stabileren kristallinen Modifikation um. Dieser Übergang wird durch die nukleare Nachzerfallswärme und Strahlung begünstigt. Neben dem thermodynamischen Effekt spielt die Reaktionskinetik eine entscheidende Rolle für derartige Umwandlungen.

Es gibt in der Natur zahlreiche Beispiele, daß thermodynamisch metastabile Zustände sich infolge kinetischer Hemmnisse über geologisch lange Zeiträume als äußerst stabil erwiesen haben. Viele natürliche Gesteins- und Mineralformationen befinden sich in einem thermodynamisch metastabilen Zustand, insbesondere in Anwesenheit von Wasser. Natürliche Verwitterungsvorgänge sind dafür ein Beispiel. Dies trifft vor allem bei höheren Temperaturen zu, wobei ein Bereich über 70 bis 90 °C angesprochen ist, der in geologischen Systemen heute nur noch in seltenen Fällen (vulkanische Aktivitäten oder sehr großen Tiefen) anzutreffen ist.

Keine Zweifel bestehen jedoch darüber, daß kristallisierte Mineralien grundsätzlich eine höhere chemische Widerstandsfähigkeit gegen einen Korrosionsangriff durch wäßrige Lösungen aufweisen als Gläser. Deshalb sind Versuche zum Einsatz synthetischer Gesteine, die natürlich vorkommenden Mineralien möglichst getreu nachgebildet sind, als zukünftige Fixierungsmittel für langlebige hochtoxische Radionuklide auf jeden Fall sinnvoll. Ob ihr Einsatz für die Verfestigung der hochaktiven Spaltproduktlösungen anstelle von Gläsern zu empfehlen ist, bedarf einer sorgfältigen Abwägung von Vor- und Nachteilen.

Aus der Existenz kristallisierter Uran- und Thoriummineralien in natürlichen Lagerstätten ist nicht zwangsläufig zu schließen, daß sie absolut auslaugresistent sind /CAR 78/. Auch aus diesen Produkten werden unter hydrothermalen Einwirkungen geringe Nuklidmengen herausgelöst und mobilisiert. Ein sichtbarer Beweis dafür sind die Spurenmengen an radioaktiven Stoffen in manchen Mineralwasserquellen.

Nach den ersten Versuchen zur Herstellung thermodynamisch stabilerer Produkte über Glaskeramiken, die aber wenig erfolgreich waren, zielten die weiteren Bemühungen auf teilweise kristallisierte Superkalzinate und schließlich auf völlig kristallisierte synthetische Gesteine ab (SYNROC) /CAR 75/.

4.6.2 Auswahl der Mineralform

Mitte der siebziger Jahre kam der Gedanke auf, kristalline Mehrphasensysteme anstelle von Glas als Abfallverwehrform einzusetzen. Den Ansatz dafür bildete weniger die erwartete höhere Auslaugresistenz gegen wäßrige Lösungen, sondern vielmehr das Bemühen, unabhängig von der grundsätzlichen Begrenztheit des Wärmeeintrags in das Endlager, möglichst hohe Spaltproduktbeladungen der Produkte mit kurzgekühltem Material zu ermöglichen /JEN 72/.

Hohe Temperaturen der Abfallgebände bis in den Bereich von 370 - 450 °C bedeuten eine verstärkte Entglasung in der Nähe des Transformationspunktes, aber natürlich auch eine rasche Korrosion im Falle hydrothermalen Einflüsse.

Zwischen 1978 und 1983 wurden verschiedene Polyphasen-Kombinationen aus den Mineralien Pollucit, Feldspat, Apatit, Spinel und Perowskit ausprobiert. Die gewünschten Produkte wurden durch Heißpressen oder Sintern hergestellt /CAR 72/. Die Methode des Drucksinterns anstelle des Schmelzens hat den Vorteil, daß man zur Herstellung des gewünschten Produktes bereits bei niedrigerer Prozeßtemperatur zum Ziel gelangt.

Der entscheidende Unterschied zur bisherigen Verfahrensweise besteht darin, daß das Abfallglas nicht mehr bei relativ hohen Temperaturen von 1100 - 1200 °C erschmolzen, sondern durch Sinterung ($T_{\text{Sinter}} = \frac{2}{3} T_{\text{Schmelz}}$) bei einer weitaus niedrigeren Temperatur zum praktisch gleichen Endprodukt geführt wird. Der Vorteil liegt in der weitgehenden Vermeidung einer sonst unvermeidbaren erheblichen Verflüchtigung der radiotoxischen Elemente Ru, Te, Tc und Se. Sie werden zwar zunächst wieder in die Glasschmelze zurückgeführt und können ferner an Absolutfiltern wirksam festgehalten werden, die Endlagerung dieser Filter bedeutet jedoch einen zusätzlichen Aufwand.

Vorläufige Ergebnisse weisen aus, daß bei Sintertemperaturen im Bereich von 600 - 800 °C vergleichbare Produktqualitäten erreicht werden können wie bei den bisherigen Glasprodukten. Außerdem lassen sich mit dieser Technik auch Feedklärschlämme zu einem quasihomogenen Endprodukt konditionieren im Gegensatz zur Glasschmelztechnik.

Erst im Anschluß an die ursprüngliche Sinterglasentwicklung folgte im Jahre 1978 der Einsatz des Pressens und Sinterns zur Herstellung kristalliner Produkte durch den Australier Ringwood /RIN 78/. Die ursprüngliche Rezeptur für das Ringwoodsche SYNROC-Produkt stellt eine Titanatkeramik dar, die aus den drei Mineralien Zirkonolit, Perowskit und Hollandit zusammengesetzt ist. Die prozentuale Zusammensetzung einer typischen SYNROC-Komposition zeigt Tabelle 5.

Tab. 5:

Typische Zusammensetzung von SYNROC und deren wesentliche Phasen (Angaben in Prozent)

Bestandteil	Mineral			Gesamtzusammensetzung SYNROC
	Hollandit (40 %) $BaAl_2Ti_6O_{16}$	Zirkonolit (35 %) $CaZrTi_2O_7$	Perowskit (25 %) $CaTiO_3$	
TiO ₂	71,0	50,3	57,8	60,3
ZrO ₂	0,2	30,5	0,2	10,8
Al ₂ O ₃	12,9	2,5	1,2	6,3
CaO	0,4	16,8	40,6	16,2
BaO	16,0	-	-	6,4
Gesamt	100,5	100,1	99,8	100,0

Aufbauend auf den Ideen von Ringwood wurden in den Folgejahren in mehreren Laboratorien, vor allem in den USA, der Bundesrepublik Deutschland, in England und Japan Untersuchungen mit dem Ziel durchgeführt, das Potential von synthetischen Gesteinen als HAW-Verwahrform einer genaueren Prüfung zu unterziehen. Dabei konnte u.a. gezeigt werden, daß nahezu alle Spaltprodukt- und Aktinidenelemente in diese Mineralien implantiert bzw. in diesen "aufgelöst" werden. Cäsium und Stron-

tium werden in Hollandit bzw. Perowskit eingebaut. Die langlebigen α -instabilen Aktinidenelemente verteilen sich zwischen Zirkonolit und Perowskit.

Gewisse Schwierigkeiten treten bei der Reaktionskinetik auf. Die Austausch- bzw. Platzwechselreaktionen in den Kristallgittern erfolgen teilweise ziemlich langsam aufgrund der vorhandenen geringen Potentialdifferenzen. Häufig werden unter realistischen Bedingungen lediglich Umsätze um die 90 % erzielt. Das bedeutet, daß ein Teil der Spaltprodukte ohne Integration in stabile Kristallgitter in Restphasen vorliegen, die meist eine verhältnismäßig gute Wasserlöslichkeit aufweisen. Durch diesen Effekt kann es vorkommen, daß trotz erstklassiger Auslaugresistenz der reinen Mineralphasen die integrale Radionuklidfreisetzung durch Auslaugung der Restphasen, vor allem zu Anfang der Lösungseinwirkung, höher, d.h. damit insgesamt vergleichbar mit derjenigen von Borosilikatgläsern ist.

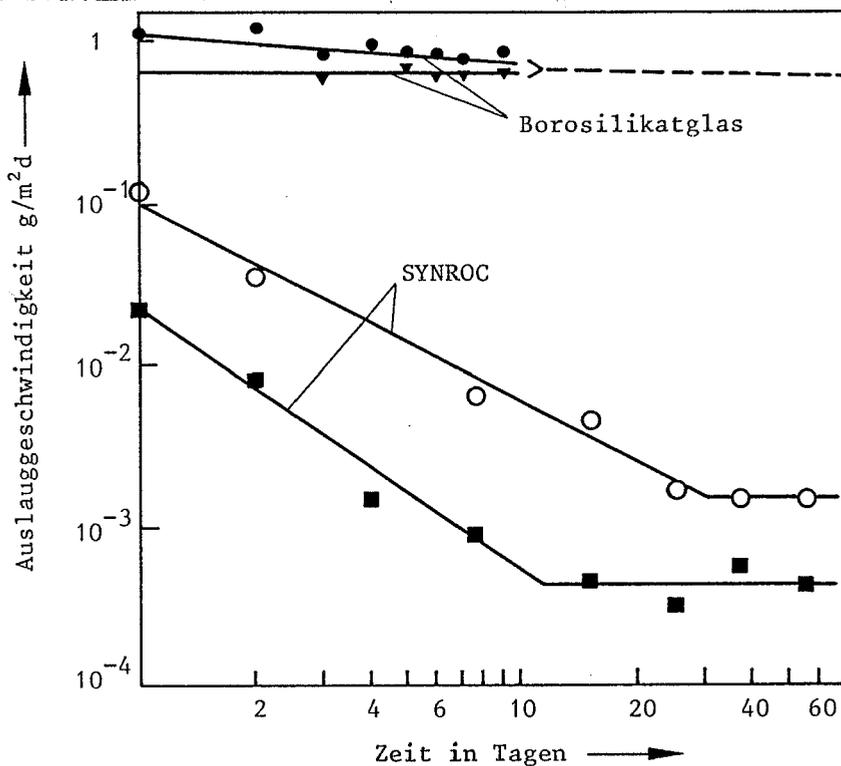


Bild. 26:

Auslaugraten von PNL-Borosilikatglas und SYNROC-B (Pulverform 100 - 200 μm) in destilliertem Wasser. Nach jeder Probenahme wurde die Auslauglösung durch frisches Wasser ersetzt.

Ein bei 95 °C von Ringwood aufgenommenes Laugungsdiagramm eines amerikanischen Borosilikatglases (Pacific Northwest Laboratories) und des von ihm zum Vergleich verwendeten SYNROC-B zeigt Bild 26 /RIN 81/.

In diesem Beispiel fallen die Unterschiede aufgrund der angesetzten idealen Laborverhältnisse insgesamt sehr günstig aus, aber der Effekt der anfänglichen starken Löslichkeit bei SYNROC ist klar ersichtlich. Bei Raumtemperatur sind die Unterschiede weniger stark ausgeprägt.

Inzwischen ist nicht nur die Originalform von SYNROC bekannt, sondern es wurden mehrere neue Polyphasen-Mixturen zusammengestellt und ausprobiert. Sie werden mit den Buchstaben A - E unterschieden. In den USA wurde ein speziell für die Verfestigung des stark (NaNO_3) salzhaltigen Spaltproduktabfalls aus der militärischen Wiederaufarbeitung entwickelt, das Produkt SYNROC-D. Seine prinzipiellen Phasen sind /MOR 84/:

- Zirkonolit ($\text{CaZrTi}_2\text{O}_7$)
- Perowskit (CaTiO_3)
- Nephelin ($\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$) und
- Spinel der allgemeinen Formel ($\text{R}^{2+}\text{OR}^{3+}\text{O}_3$).

4.6.3 Auslaugmechanismus keramischer Produkte

Bei keramischen Produkten weisen Ergebnisse bisheriger Untersuchungen zum Auslaugmechanismus kristalliner Produkte Unterschiede zu den Gläsern auf. So wird insbesondere eine Deckschichtbildung, wie sie für Gläser typisch ist, bei kristallinen Produkten nicht oder nur ausnahmsweise beobachtet.

Die individuellen Mineralphasen verhalten sich bei der Auflösung völlig unabhängig voneinander. Eine gegenseitige Beeinflussung konnte in keinem Fall beobachtet werden.

Die Löserate wird durch das Löslichkeitsprodukt der in Frage stehenden Verbindung im Lösungsmittel kontrolliert. Ist Sättigung erreicht, tritt eine Ausfällung von Feststoff auf; die Löserate nimmt stark ab. Die höhere Resistenz synthetischer Gesteine im Vergleich zu Gläsern liegt

in der Tatsache begründet, daß die Oxide TiO_2 , ZrO_2 , Al_2O_3 , etc. eine sehr geringe Löslichkeit besitzen. Ihre Werte liegen im Vergleich zum amorphen SiO_2 des Glases um den Faktor 100 bis 1000 niedriger.

Die gemessenen Auflöseraten von Polyphasen-Mineralgemischen /SOL 86/ stellen den gewichteten Mittelwert aus den Einzelbeiträgen dar. Synergistische Effekte, die aus theoretischen Gründen nicht völlig ausgeschlossen werden können, werden in ihren Auswirkungen gering sein.

Die Spaltprodukte und Aktiniden werden vorzugsweise in Zirkonolit- und Perowskitphasen eingebaut. Nephelin dient als Wirtsphase für Natrium.

Die Auflösung (Auslaugung) erfolgt weitgehend kongruent und hängt von folgenden Faktoren ab:

- Oberfläche der Originalphase
- effektive Oberfläche der ausgefällten Phase
- Volumen des Produktkörpers
- Ausgangskonzentration
- Sättigungskonzentration für die ausgefällte Feststoffphase
- p_{H} -Wert der Lösung
- Temperatur

Strahlung übt einen beschleunigenden Einfluß auf die Löserate aus. Bei kristallinen Produkten tritt eine Metamiktisierung auf. Darunter versteht man die Bildung mikroskopisch kleiner amorpher Bereiche in der Reichweite der Rückstoßatome bzw. α -Strahlen im Festkörper /EWI 76/.

Solche amorphen Phasen sind im allgemeinen weniger resistent gegen einen Lösungsangriff als kristalline. Insgesamt ist der Effekt erhöhter Auslaugung bzw. Korrosion jedoch unbedeutend. Er liegt in der Größenordnung einer maximal 10fach höheren Löserate.

4.6.4 Herstellung keramischer Produkte

Am einfachsten lassen sich Superkalzinate herstellen. Dazu werden die Ausgangslösungen je nach Belieben mit entsprechenden Zuschlägen ver-

setzt, anschließend das Gemisch getrocknet und bei 800 °C im Drehrohr-Ofen oder im Wirbelbett kalziniert. Die erhaltenen Produkte liegen nur teilweise kristallin vor. Amorphe Restphasen mit höherer Wasserlöslichkeit lassen sich kaum vermeiden. Am meisten verbreitet ist der Zusatz von Titandioxid TiO_2 .

Wesentlich aufwendiger gestaltet sich die SYNROC-Herstellung. Die Grundsubstanzen von SYNROC werden als Einzelverbindungen (CaCO_3 , BaCO_3 , ZrO_2 , Al(OH)_3 , TiO_2 , etc.) außerhalb der heißen Zellen sehr fein gemahlen und miteinander vermischt. Dann folgt in den heißen Zellen das Einrühren der fertigen Wirtsphasen in ein salpetersaures Spaltproduktgemisch. Das erhaltene teigige Material wird in einer reduzierenden H_2/Ar -Atmosphäre kalziniert und das weitgehend wasser- und nitratfreie Produkt nach Zumischen mehrerer Gewichtsprozent Titanmetallpulvers in einem Edelstahlbehälter zu einem Sintermetallprodukt heißgepreßt. Unter den herrschenden Reaktionsbedingungen (hoher Druck, hohe Temperatur) kann aufgrund der unterschiedlichen chemischen Potentiale ein Platztausch zwischen Spaltcäsium und beispielsweise Kalium in Hollandit erzwungen werden. Das heißt, das Kalium wandert aus dem Mineral heraus in die Matrix. Die benötigten Temperaturen bewegen sich zwischen 1100 und 1300 °C. Über die erforderlichen Drücke schwanken die Angaben in weiten Grenzen von 30 bis zu 200 MPa.

Neuerdings gibt es Herstellungsmethoden, die auf das in heißer Zellentechnik schwierig durchzuführende isostatische Heißpressen (d.h. gleichzeitige Anwendung von hoher Temperatur und hohen Drücken) verzichten können. Die auf feinste Korngröße gemahlene Mineralbestandteile sowie das vorkalzinierte Abfalltrockenprodukt werden intensiv miteinander vermischt und bei Drücken zwischen 10 und 100 MPa kaltgepreßt. Anschließend erfolgt das Sintern der Rohpreßlinge zu hochdichten Produkten bei 750 - 900 °C /BAU 83/.

Vergleichbare Ergebnisse können durch die Vorschaltung eines Sol/Gel-Fällungsverfahrens zur Herstellung sinterfähiger Grünlinge erzielt werden. Dabei kommt eine Technik zur Anwendung, wie sie für die Brennelementherstellung für Hochtemperaturreaktoren und jetzt auch für Schnellbrüterbrennstoffe mit Erfolg eingesetzt wird /GAN 85/. Das Entwicklungspotential ist hier noch keinesfalls ausgeschöpft.

Tabelle 6 faßt die wichtigsten Eigenschaften der Keramikprodukte zusammen.

Tab. 6:

Keramische Produktformen für HAW

Produktform	Herstellungstemperatur	Vorteil	Nachteil
Tonkeramik	1000 °C	<ul style="list-style-type: none"> - Gute Anpassung an unterschiedliche Abfallarten - Einfache Herstellung 	<ul style="list-style-type: none"> - Höhere Auslaugraten und Sprödigkeit - Geringere Strahlenbeständigkeit
Superkalzinate	1000 °C bis 1200 °C	<ul style="list-style-type: none"> - Hohe Abfallbelastung und thermische Stabilität - Sehr gute Auslaugresistenz - Relativ einfache Herstellung 	<ul style="list-style-type: none"> - Unkontrollierte kristalline Phasenbildung - Mehrere Phasen für gleiches Element, daher Transmutations-effekte - Produkt dispersibel
SYNROC	1100 °C bis 1300 °C	<ul style="list-style-type: none"> - Zufriedenstellende Beladepazität - Sehr gute Auslaugresistenz über lange Zeiträume hinweg - Gute hydrothermale Beständigkeit 	<ul style="list-style-type: none"> - Empfindlich gegenüber wechselnder Abfallzusammensetzung; dann Bildung leichter löslicher Phasen - Herstellungsprozeß kompliziert
Titanate	900 °C bis 1100 °C	<ul style="list-style-type: none"> - Unempfindlicher gegenüber wechselnder Abfallzusammensetzung als SYNROC bzw. Superkalzinate - Hohe thermische Stabilität 	<ul style="list-style-type: none"> - Schlechte Rückhaltung für Cäsium - Strahlenbeständigkeit schlechter als Glas - Transmutations-effekte - Wenig geeignet für ein breites Elementspektrum

4.7 Zusammenfassende Bewertung der HAW-Verfestigungsprodukte

Im Verlauf der letzten 6 Jahre erfolgte in mehreren Ländern eine sorgfältige Prüfung der Vor- und Nachteile der verschiedenen HAW-Verwahrförmern. Eine umfassende Bewertung der verschiedenen Abfallformen für hochaktive Spaltproduktlösungen nahm im Jahre 1981 eine vom U.S. Department of Energy eingesetzte Arbeitsgruppe, das sogenannte HENCH-Panel, vor /DOE 81/.

Insgesamt wurden acht verschiedene Produktformen auf ihre potentielle Nützlichkeiät als Abfallverwahrförm für HAW-Lösungen aus der Wiederaufarbeitung analysiert und anschließend eine Reihenfolge aufgestellt. Dabei handelt es sich bereits um eine Einengung einer im Jahre 1980 /DOE 80/ in Betracht gezogenen Möglichkeit von 15 verschiedenen Abfallverwahrförmern, die jedoch teilweise als ausgesprochen exotisch zu bezeichnen sind.

Das Ergebnis der neuerlichen Bewertung ist in Tabelle 7 aufgelistet. Die Produkte Nr. 2 - 4 lassen sich alle unter dem Begriff "kristalline synthetische Gesteine" subsummieren.

Tab. 7:

Relative Rangfolge der Eignungsbeurteilung alternativen Abfallverwahrförmern für hochaktive Spaltproduktlösungen /DOE 81/

Rang	Produktform
1	Borosilikatglas
2	SYNROC
3	Poröse, hoch SiO ₂ -haltige Glasmatrix
4	Maßgeschneiderte Keramiken, Superkalzinate
5	Beschichtete Abfallpartikel (PyC, SiC)
6	Teilhydratisierte Zementmatrix, FUETAP*
7	Metallmatrix, die ein Superkalzinat umschließt
8	Plasmagespritzte Überzüge auf Superkalzinaten

* FUETAP = Formed Under Elevated Temperatures And Pressures /MOO 80/

Die Bewertung wurde unter stark idealisierten Annahmen durchgeführt. Im Grunde genommen kann und darf sich jedoch ein Vergleich nur auf die Produkte 1 - 4 beziehen, denn die beschichteten Produkte sind wegen der zum Vergleich herangezogenen Auslaugtestmethoden vom Prinzip her stark bevorteilt. Sie setzen eine Integrität der Beschichtungen voraus, die in der Praxis nie erreicht wird. Bestimmend für die echte Auslaugrate ist letztlich das unbeschichtete Produkt.

Anfang des Jahres 1985 hat das U.S. Department of Energy entschieden, daß alle Arbeiten für alternative Abfallverwahrformen einzustellen sind. Einzig für die derzeit vorhandenen flüssigen hochaktiven Abfälle in Erwägung gezogenes Produkt ist Borosilikatglas.

Zu vergleichbaren Entscheidungen kam es in den Ländern Frankreich, Großbritannien, Kanada und Japan.

In der Bundesrepublik Deutschland hat eine auf den amerikanischen Ergebnissen aufgebaute Überprüfung zu einer Übereinstimmung in der Argumentation zugunsten der Bevorzugung von Borosilikatglas als HAW-Endlagerverwahrform geführt.

Die Herstellung keramischer Produkte ist im Vergleich zur Verglasung äußerst aufwendig. Der erzielbare Gewinn an Produktqualität ist zwar vorhanden, aber der insgesamt erreichbare Sicherheitsgewinn marginal, wenn man den Prozeßaufwand, die radiologische Belastung des Betriebspersonals und vor allem den Anfall an Sekundärabfall in die Gesamtbewertung mit einbezieht. Die im Rahmen des "Projektes Sicherheitsstudien Entsorgung" (PSE) durchgeführte Sicherheitsanalyse hat deutlich gemacht, daß der Produktqualität im Mehrfachbarrierenkonzept bei der Endlagerung in Salzformationen nur eine untergeordnete Bedeutung bei der Langzeitsicherheitsbetrachtung zukommt. Eine Nutzen-Risiko-Betrachtung rechtfertigt nicht den stark erhöhten technischen Aufwand für die Herstellung keramischer Produkte.

5. TECHNISCHE KONZEPTE FÜR DIE ABFALL-KONDITIONIERUNG UND HAW-ENDLAGERUNG IM IN- UND AUSLAND

Das Grundprinzip der HAW-Konditionierung besteht in einer Überführung der salpetersauren Lösungen in eine chemisch widerstandsfähige, feste Form. Eine Endlagerung ist nur in verfestigter Form akzeptabel, unabhängig von der gewählten geologischen Endlagerformation. Ein einfaches Versenken der HAW-Gebinde in der Tiefsee, d.h. ein Abkippen auf den Meeresgrund, ist nach der Londoner Konvention nicht zugelassen /IAEA 76/.

Allgemeine Leitlinien zu den verschiedenen Teilbereichen der HAW-Verfestigung und HAW-Produktcharakterisierung wurden auf internationaler Ebene unter Federführung der IAEA in Wien erarbeitet. Sie sind in mehreren Publikationen dokumentiert und vermitteln in groben Zügen eine Übersicht zum Stande der Technik /IAEA 77, 79, 81b, 83/.

Länder mit langjähriger Erfahrung in der Kernenergienutzung, wobei vor allem die USA, Großbritannien, Frankreich und die UdSSR zu nennen sind, haben naturgemäß die breitere Erfahrung im Umgang mit radioaktiven Abfällen erworben. In diesen Ländern sind bisher auch die größten Mengen hochaktiver Spaltproduktlösungen angefallen. Sie werden in besonders konstruierten und überwachten Tankanlagen mit Zwangskühlung zwischengelagert. Die in rund 30 Jahren gesammelten Erfahrungen bilden die Basis für die zukünftige Ausgestaltung von HAW-Tankzwischenlagern als Eingangsstufe für die Verfestigungsanlage. Dabei ist man bemüht, die Zwischenlagerzeit so kurz wie möglich zu halten.

Weltweit besteht Übereinstimmung darüber, daß eine Umwandlung der Spaltproduktlösungen in stabile Festkörper die einzige Methode zur sicheren Endlagerung darstellt. Ein direktes Verpressen der hochaktiven Spaltproduktlösungen in poröse Speicherhorizonte des tiefen geologischen Untergrundes stellt wegen der innewohnenden Risiken keine geeignete Beseitigungsmethode dar.

Einige Länder haben die Weiterführung ihrer zivilen Kernenergieprogramme vom Nachweis der Machbarkeit der Endlagerung radioaktiver Abfälle abhängig gemacht. In Schweden zum Beispiel, mußte die Nuklearindustrie

ein detailliert ausgearbeitetes Konzept für die Zwischen- und Endlagerung von abgebrannten Brennelementen und HAW-Glasblöcken aus der Wiederaufarbeitung den Regierungsbehörden vorlegen. In der Bundesrepublik Deutschland trugen die mehrjährigen Versuchseinlagerungen von schwach- und mittelaktiven Abfallgebinden im ehemaligen Salzbergwerk Asse sowie die ausführlichen Sicherheitsstudien im Projekt "Sicherheitsstudien Entsorgung" /PSE 85/ dazu bei, die von der Bundesregierung gemäß der Bund-Länder-Vereinbarung aus dem Jahre 1979 geforderten Fortschritte auf dem Gebiete der Entsorgung als Voraussetzung für den weiteren Einsatz und Ausbau der Kernenergie zu erbringen. In Finnland und einigen Ostblockstaaten wurden seitens der zuständigen Regierungen ähnliche Forderungen aufgestellt.

Von mehreren Ländern wird die Endlagerung der schwach- und mittelaktiven Abfälle bereits praktiziert, sei es durch Einlagerung in unterirdischen oder oberflächennahen Kunstbauten, durch Einbringen in geologische Formationen unter dem Festland oder durch die Versenkung der Abfallgebinde in der Tiefsee. Gegen letztere Vorgehensweise gibt es in neuerer Zeit Widerstände.

Für hochaktive Abfälle sind noch keine Endlager in Betrieb. Entsprechende Projekte befinden sich jetzt aber in fast allen Ländern mit eigenen Kernenergieprogrammen entweder in der Vorbereitung (z.B. England, Frankreich, UdSSR), ausführlichen Planung (Kanada, Schweden, Finnland, Niederlande) oder bereits in der Realisierungsphase (Belgien, Bundesrepublik Deutschland, USA).

5.1 Endlagerung von HAW-Gebinden in der Bundesrepublik Deutschland

Grundlage für den Umgang mit radioaktiven Abfällen in der Bundesrepublik Deutschland ist das Atomgesetz. Dabei steht im Vordergrund "... Leben, Gesundheit und Sachgüter vor Gefahren der Kernenergie und der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlen zu schützen..." (§ 1 Atomgesetz). Wegen der langfristigen Gefährlichkeit der radioaktiven Abfälle hat der Gesetzgeber die geordnete Beseitigung als staatliche Aufgabe angesehen. Die Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig, (PTB) wurde mit der Errichtung und dem Betrieb von Anlagen zur Sicherstellung und zur Endlagerung radioaktiver Abfälle beauftragt.

Als eine sichere Methode für die Beseitigung radioaktiver Abfälle gilt heute nach Ansicht von Fachleuten aus aller Welt die Endlagerung in stabilen Gesteinsschichten des tiefen geologischen Untergrundes. In der Bundesrepublik Deutschland werden Steinsalzformationen bevorzugt, die in ausreichender Anzahl und Ausdehnung in Norddeutschland vorhanden sind. Salz weist gegenüber anderen ebenfalls geeigneten Formationen, wie beispielsweise Granit, Basalt oder Ton, eine Reihe von Vorzügen auf, wobei insbesondere die gute Wärmeleitfähigkeit, Plastizität und Hohlraumstandfestigkeit eine wichtige Rolle spielen. Der Salzstock und die ihn überlagernden Deckgebirgsschichten bilden zwei wichtige natürliche Einschlußbarrieren für das Abfallprodukt.

Eine Gefährdung des Menschen durch die eingelagerten Abfälle ist nur möglich, wenn die Radionuklide durch zutretende Wässer oder Lösungen aus dem Abfallgebirge herausgelöst und aus dem Endlager durch sehr langsam verlaufende Migrationsprozesse in die Biosphäre transportiert werden. Derartige Vorgänge sind zwar sehr unwahrscheinlich, jedoch über die langen zu betrachtenden Zeiträume nicht völlig auszuschließen.

Aufgrund der langen Transportzeiten und des Verdünnungseffektes durch Dispersion und Vermischung mit nicht kontaminierten Grundwässern bleiben die an die Biosphäre gelangenden Radionuklidkonzentrationen deutlich unterhalb der gesetzlich zugelassenen Grenzwerte. Der Nachweis ist durch eine standortspezifische Sicherheitsanalyse zu erbringen.

Das Endlagerkonzept der Bundesrepublik Deutschland besteht aus zwei einander ergänzenden Vorhaben:

- Das ehemalige Eisenerzbergwerk Konrad bei Salzgitter

Es ist für die Endlagerung schwachaktiver Abfälle und Abfälle aus dem Abriß kerntechnischer Einrichtungen vorgesehen und soll im Jahre 1991 betriebsbereit sein. Vom Volumen her gesehen, weist der größte Teil der radioaktiven Abfälle nur vernachlässigbar geringe thermische Einwirkungen auf seine Umgebung aus. Deshalb lassen sich rund 95 % der insgesamt anfallenden Abfallsorten in der Schachanlage Konrad unterbringen.

- Der Salzstock Gorleben

Nach den derzeitigen Planungen ist es das einzige Endlager, in dem neben schwach- und mittelaktiven Abfällen auch hochaktive, d.h. wärmeentwickelnde Abfälle eingelagert werden sollen. Die Planungen sehen vor, daß bei positivem Ergebnis der Eignungsuntersuchung das Endlager etwa 2000 in Betrieb gehen kann.

Die PTB hat im Juli 1977 bei der Niedersächsischen Landesregierung unter dem Vorbehalt des Ergebnisses der Eignungsuntersuchung einen Antrag auf Erteilung des Planfeststellungsbeschlusses für den Salzstock Gorleben gestellt. Seither läuft ein umfassendes Erkundungsprogramm, dessen übertägiger Teil (hydrogeologisches Bohrprogramm, Salzspiegel- und Tiefbohrungen) im wesentlichen abgeschlossen ist. Inzwischen wurde mit der Abteufung der beiden Erkundungsschächte für die Durchführung der untertägigen Untersuchungen begonnen.

Um den Eignungsnachweis im Planfeststellungsverfahren zu führen, ist die untertägige Erkundung notwendig. Hierbei müssen vor allem der Innenaufbau des Salzstocks untersucht und potentielle Wasserwegsamkeiten analysiert werden. Darüber hinaus sind die späteren Einlagerungsbereiche unter Berücksichtigung des notwendigen Abstandes zu den Flanken des Salzstocks sowie den Grenzen der Steinsalzschiechten festzulegen und die Auslegung des zu errichtenden Endlagerbergwerks vorzunehmen.

Insgesamt vermitteln die bisherigen Untersuchungsergebnisse ein zuverlässiges Bild des Gesamtaufbaus, das zeigt, daß der in Teilbereichen gegebene Kontakt zwischen grundwasserführenden Schichten und Salzstock sowie eine langfristige geringe Ablaugung die Sicherheit des Endlagers nicht gefährden. Das Deckgebirge erfüllt im Rahmen des Mehrfachbarrierenkonzeptes die ihm zukommenden Aufgaben. Alle bisherigen Befunde und Erkenntnisse lassen keinen Zweifel aufkommen, daß das gesteckte Schutzziel, nämlich die Bewahrung des Menschen und seiner Umwelt vor den Gefahren ionisierender Strahlung, erfüllt werden kann.

Während der Betriebsphase kann ein größerer Zutritt von Wässern oder Salzlösungen dank des besonders aufwendigen Schachtausbaus und der sonstigen Sicherheitsvorkehrungen (z.B. Umfahrung von Anhydrit und Carnallit führenden Gebirgshorizonten) praktisch ausgeschlossen wer-

den. Eventuell begrenzt auftretende Zuflüsse von Salzlösungen aus Gebirgseinschlüssen werden abgepumpt oder mit Dichtmaterial in den Hohlräumen verplombt.

Die Sicherheitsanalyse konzentriert sich daher ganz auf die Nachbetriebsphase, also auf den Zeitraum, in dem das Endlager gefüllt und verschlossen und ein menschlicher Eingriff nicht mehr vorgesehen ist. Eine alsbaldige Verfüllung der Hohlräume ist von Vorteil, weil durch die Gebirgskonvergenz ein unerwünschter Kontakt des Abfallgebundes mit Lauge verhindert werden kann.

Gebinde mit hochaktiven Abfällen werden unter Anwendung der sogenannten Bohrlochtechnik endgelagert. Die einzelnen Abfallgebinde mit Durchmessern von etwa 45 cm werden in 300 - 400 m tiefen Bohrlöchern übereinander gestapelt und das gefüllte Bohrloch mit einem Abschirmstopfen verschlossen. Zur sicheren Nachzerfallswärmeabfuhr müssen ausreichend große Abstände zwischen den Bohrlöchern eingehalten werden.

Das gestaffelte Schutzkonzept und das Prinzip der Bohrlocheinlagerung zeigt Bild 27.

Als Ergänzung zu den beiden geplanten Endlagerbergwerken Konrad und Gorleben betreibt die Bundesregierung in der Schachtanlage Asse bei Wolfenbüttel seit 1967 Forschungs- und Entwicklungsarbeiten für die Endlagerung radioaktiver Abfälle in Salzformationen. Ferner wird geprüft, ob die Asse zukünftig außerdem Entsorgungsfunktionen für radioaktive Abfälle übernehmen kann. Diesem Zweck dient ein zur Zeit laufendes hydrogeologisches Erkundungsprogramm.

Neben der Endlagerung von HAW in Salzformationen prüft die Bundesregierung auch Gesteine auf ihre Eignung. Im Vordergrund des Interesses stehen Granitformationen. Die Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe in Hannover (BGR) erarbeitet im Auftrag der Bundesregierung eine Studie über Granitvorkommen in der Bundesrepublik Deutschland. Wichtige Forschungsarbeiten werden im Rahmen einer bilateralen schweizerisch-deutschen Zusammenarbeit im Felslabor Grimsel in der Schweiz durchgeführt.

5.2 Ausländische Konzepte für die Beseitigung radioaktiver Abfälle

• Australien

Australien ist ein Land ohne Leistungsreaktoren und produziert somit keine hochaktiven Abfälle. Dennoch betreibt das Land schon seit längerer Zeit intensive Entwicklungsarbeiten zur HAW-Verfestigung durch den Einsatz keramischer Produkte anstelle von Glas sowie zur Sicherheit der geologischen Endlagerung. Da Australien über beträchtliche Uranvorkommen verfügt und demzufolge bei ihrer Ausbeutung große Halden mit den Aufbereitungsrückständen (Mill Tailings) entstehen, besteht ein erhebliches Interesse an der Modellierung des Langzeitmigrationsverhaltens der Radionuklide.

Nach mehrjährigen intensiven Laboruntersuchungen zur HAW-Verfestigung auf der Basis von SYNROC-Produkten wurde der Bau einer kalten Pilotanlage in Angriff genommen. Das Verfahrensprinzip beruht auf Erfahrungen ausländischer Forschungseinrichtungen, insbesondere des CEA, Marcoule und der KFA, Jülich. Die Bemühungen zur Schaffung ausländischer Partnerschaften an dem Unternehmen blieben bisher erfolglos. Intensivere Kontakte gab es mit Japan und England. Sie führten nur im F&E-Bereich zu einer lockeren Zusammenarbeit. Die Fortführung der Entwicklungsarbeiten mit "heißem Material" ist nicht mehr geplant. Man hofft hingegen auf eine Lizenznahme bei erfolgreicher kalter Demonstration des Verfahrens.

• Belgien

Die beim Betrieb der ehemaligen EUROCHEMIC-Wiederaufarbeitungsanlage entstandenen Spaltproduktlösungen wurden bzw. werden noch in doppelwandigen Edelstahlbehältern zwischengelagert. Zur Entsorgung hat die DWK mit finanzieller Unterstützung durch den Bundesminister für Forschung und Technologie (BMFT) auf dem Betriebsgelände in Mol in Zusammenarbeit mit der EUROCHEMIC die Demonstrations-Verglasungsanlage PAMELA errichtet. Im Jahre 1985 wurde sie in Betrieb genommen und innerhalb weniger Monate die vorhandenen ca. 60 m³ Spaltproduktlösungen aus der LWR-Brennelement-Wiederaufarbeitung erfolgreich verglast. Neben der Produktion von Glasblöcken wurde auch die Herstellung von

Glasperlen demonstriert. Es handelt sich um ein belgischerseits entwickeltes Alternativprodukt VITROMET, bei dem die Glasperlen in eine Bleimatrix eingebettet sind.

Inzwischen ging die Anlage vertragsgemäß in den Besitz der Nachfolgefirma BELGOPROCESS über, die in den nächsten 4 - 5 Jahren gemeinsam mit der DWK-Betriebsmannschaft die vorhandenen stark salzhaltigen Spaltproduktlösungen (einige hundert Kubikmeter) aus der Wiederaufarbeitung hochangereicherter Uranbrennelemente verarbeiten wird. Außerdem wird zur Zeit geprüft, ob HAW-Lösungen aus der WAK in Karlsruhe zur Verglasung in der PAMELA-Anlage nach Mol transportiert werden können. Der früher ins Auge gefaßte Bau einer Anlage nach dem französischen AVM-Prinzip zur Verarbeitung der stark salzhaltigen Abfalllösungen wurde inzwischen aufgegeben.

Die Glaskokillen werden am Standort Mol in einem eigens dafür erbauten Lagergebäude zwischengelagert. Später soll dann nach erfolgreichem Eignungsnachweis der geologischen Tonformation unter dem Standort Mol eine Versuchsendlagerung vorgenommen werden.

Zuständig für das gesamte Abfallmanagement ist die Gesellschaft ONDRAF, die 1981 gegründet wurde. Sie betreibt das Untertagelabor HADES, das seit 1985 in der Tonformation bei Mol in einer Teufe zwischen 224 und 247 m eingerichtet ist.

- CSSR

Die abgebrannten Brennelemente werden in einem anderen Land, vermutlich in der Sowjetunion, wiederaufgearbeitet. Ein eigenes Forschungs- und Entwicklungsprogramm befaßt sich mit der Verglasung von simulierten HAW-Lösungen. Im Vordergrund des Interesses stehen Borosilikatgläser. Eine kleine Versuchsanlage zur Verglasung soll fertiggestellt sein, vermutlich kann sie aber nicht heiß betrieben werden. Kernkraftwerksabfälle - kein HAW - werden in einem ehemaligen Bergwerk endgelagert.

- Dänemark

In Dänemark gab es vor Jahren, als das Land ein 6000 Megawatt-Kernkraftwerksprogramm auflegte, Pläne und ein Versuchsprogramm zur HAW-Verglasung. Im Labormaßstab wurden gute Ergebnisse zur Herstellung und Charakterisierung von Borosilikatgläsern erzielt. Umfangreiche Bemühungen wurden außerdem zur Endlagerung der Glaskokillen in einer Salzformation durch die beiden Organisationen ELKRAFT und ELSAM unternommen. Der Salzstock MORS wurde bereits auf seine Eignung erkundet und als brauchbar klassifiziert. Inzwischen sind die Aktivitäten weitgehend zum Erliegen gekommen, da das dänische Parlament den Ausstieg aus der Kernenergie beschlossen hat.

- Deutsche Demokratische Republik

Die DDR ist vertraglich verpflichtet, ihre abgebrannten Brennelemente aus den zur Zeit installierten 1,7 Gigawatt Gesamtleistung Kernenergie in die Sowjetunion zurückzubringen. Für die schwach- und mittelaktiven Abfälle steht ein Endlager in einem ehemaligen Salzbergwerk in Morsleben zur Verfügung. Teilweise erfolgt eine In-situ-Verfestigung, wobei Braunkohleasche als Fixierungsmittel verwendet wird.

- Finnland

Abgebrannte Brennelemente aus den Druckwasserreaktoren sowjetischer Bauart werden vertragsgemäß in der UdSSR wiederaufgearbeitet. Die Rücknahme des verfestigten, vermutlich verglasten HAW ist vorgesehen. Die Zusammensetzung der Produktmatrix gibt der sowjetische Abfallkonditionierer vor. Nähere Einzelheiten dazu sind nicht bekannt. Für die direkte Endlagerung der abgebrannten Brennelemente von den aus Schweden gelieferten Siedewasserreaktoren suchen die finnischen Kernkraftwerksbetreiber Endlagermöglichkeiten entweder im Rahmen eines internationalen Projektes oder im eigenen Land. Ins Auge gefaßt wird ein Tiefenlager im Granit des skandinavischen Schildes. Über hundert Standorte werden untersucht, von denen dann bis zum Jahre 2000 der am besten geeignete ausgewählt sein soll. Die Kernkraftwerksabfälle werden nach geeigneter Konditionierung im Felsuntergrund auf dem Kernkraftwerksgelände endgelagert.

- Frankreich

Frankreich hat sich ausschließlich auf Borosilikatglas als HAW-Verwahrform festgelegt. Alternative Verfestigungsprodukte werden nicht in Erwägung gezogen. Nach der PIVER-Anlage als Vorstufe folgte mit dem Bau und dem heißen Betrieb in der AVM-Anlage in Marcoule die Verglasung von HAW-Lösungen im industriellen Maßstab. Etwa 540 m³ Spaltproduktlösung (aus AGR-Brennelementen stammend) wurden bis zum Jahre 1981 zu 250 Tonnen Glas verfestigt. Die Glaskokillen werden am Standort Marcoule in luftgekühlten Lagerschächten zwischengelagert. Eine Anlage, die nach dem gleichen Verfahrensprinzip arbeitet (AVH), befindet sich in La Hague in Bau; sie soll 1987 fertiggestellt sein. Die in den französischen Wiederaufarbeitungsanlagen UP1 in Marcoule, UP2 und UP3 in La Hague produzierten HAW-Lösungen werden in zwangsgekühlten Edelstahl tanks zwischengelagert.

Für die Endlagerung des verglasten HAW steht der Einschluß in tiefen stabilen geologischen Formationen, insbesondere im Granit, im Vordergrund. Aber auch Steinsalz- und Tonformationen werden untersucht. Seit 1985 erfolgen an verschiedenen potentiellen Standorten Voruntersuchungen. Ende 1987 soll an einem für geeignet befundenen Standort mit dem Bau eines Felslabors begonnen werden, dessen Inbetriebnahme für das Jahr 1990 vorgesehen ist.

Die Beseitigung von Kernkraftwerksabfällen und sonstigen nicht hochaktiven Abfällen geschieht in einer oberflächennahen Deponie in La Manche in unmittelbarer Nähe zur Wiederaufarbeitungsanlage in La Hague. Die Franzosen beteiligen sich am Internationalen Subseabed Disposal Programm. Zuständig für das gesamte Abfallmanagement ist die Gesellschaft ANDRA, die 1979 gegründet wurde.

- Großbritannien

Großbritannien verfügt über umfangreiche Erfahrungen in der Konditionierung spaltproduktthaltiger Abfallösungen. Es entwickelte schon vor Jahren den FINGAL-Prozeß, ein einfaches Topf-Glasschmelzverfahren in diskontinuierlicher Betriebsweise, das 1981 gänzlich aufgegeben wurde. Mit dem Akronym HARVEST-Prozeß verbindet sich die Fortentwicklung des FINGAL-Verfahrens. Von den beiden existierenden Wie-

deraufarbeitungsanlagen in Sellafield/Windscale ist nur noch eine in Betrieb, die andere wurde nach einem Störfall stillgelegt. Mit dem Bau einer modernen 1200-t-Anlage zur Wiederaufarbeitung von LWR-Brennelementen (THORP-Facility) wurde 1984 begonnen, die Inbetriebnahme ist für das Jahr 1990 vorgesehen. Sie wird mit einer Verglasungsanlage nach dem französischen AVM-Prinzip ausgerüstet, wo zusätzlich die in Edelstahltanks lagernden HAW-Lösungen aus der bisherigen britischen Wiederaufarbeitung konditioniert werden sollen. Als Verwahrf orm ist eine Borosilikatmatrix vorgesehen. Die Glasgebände sollen vor einer geologischen Endlagerung für eine Zeitdauer von mindestens 50 Jahren übertägig zwischengelagert werden.

Als aussichtsreiche Endlagerformation für HAW-Produkte wurden in der Vergangenheit vor allem Granitformationen untersucht. Die Erkundungsarbeiten sind zur Zeit unterbrochen. Die Beseitigung der Kernkraftwerksabfälle erfolgt in einer oberflächennahen Deponie. Außerdem wurde bisher ausgiebig von der Entsorgung über die Versenkung von LAW/MAW ins Meer Gebrauch gemacht. Die Engländer beteiligen sich am Internationalen Subseabed Disposal Programm. Zuständig für das gesamte Abfallmanagement ist die Gesellschaft NIREX, die 1982 gegründet wurde.

- Indien

Das Land bemühte sich schon sehr früh um die Entwicklung einer eigenständigen Brennstoffkreislauftechnologie. Eine Pilot- und eine Demonstrations-Wiederaufarbeitungsanlage sind in Betrieb; eine dritte Anlage mit 100 Tonnen Jahreskapazität in Kalpakkam soll 1990 ihren Betrieb aufnehmen. Die dabei anfallenden HAW-Lösungen werden in Edelstahltanks zwischengelagert. Zur Verfestigung ist die Verglasung zu Borosilikatglasprodukten nach einem eigenen Prozeßschema vorgesehen. Es handelt sich um ein diskontinuierliches Verfahren, ähnlich dem englischen FINGAL-Prozeß. Mit dem Bau einer Demonstrationsanlage mit 120 kg Glas pro Tag Durchsatz wurde in Tarapur im Jahre 1982 begonnen. Sie ist inzwischen fertiggestellt. Nach einer Zwischenlagerung über 30 Jahre sollen die Glaskokillen in Granitformationen eingelagert werden. Ähnliche Verglasungsanlagen sind in Kalpakkam und im Bhabha Atomic Research Center in Trombay geplant. Im Forschungs- und Entwicklungsbereich (F&E-) besteht eine Zusammenarbeit zwischen dem Kernforschungszentrum Karlsruhe und dem Bhabha Atomic Research Center in Trombay.

Auf dem Gebiet alternativer Verfestigungsverfahren laufen F&E-Arbeiten in bescheidenem Umfang in Trombay. Endlagerprojekte befinden sich in der Voruntersuchung, jedoch ohne konkrete Standorte.

- Italien

Nach Initiativen auf dem Gebiet der Wiederaufarbeitung mit zwei Demonstrationsprojekten (EUREX- bzw. ITREX-Anlage) gründet sich jetzt die italienische Entsorgungsstrategie auf eine Wiederaufarbeitung in einem anderen Land. Verträge bestehen mit der BNFL, Sellafield. Die in den beiden Pilotanlagen erzeugten kleineren Mengen an HAW-Lösungen lagern in Edelstahl tanks und stehen für Demonstrationszwecke zur Verfügung. In Italien werden sowohl in nationalen Laboratorien als auch im Europäischen Forschungszentrum Ispra umfangreiche Laboruntersuchungen zur Spaltproduktverglasung durchgeführt. Nach zahlreichen untersuchten Varianten fiel die Wahl auf ein Borosilikatglas. Halbtechnische Verglasungsanlagen befinden sich an den Standorten der beiden Wiederaufarbeitungsanlagen im Bau. Eine weitere Pilotanlage nach dem Jülicher FIPS-Prinzip wird zur Zeit im Forschungszentrum Ispra von der deutschen Firma Kraftanlagen Heidelberg gebaut. Für die Endlagerung werden Tonformationen untersucht. Zuständig für das gesamte Abfallmanagement ist die Gesellschaft NUCLECO, die 1981 gegründet wurde.

- Japan

Die Japaner verfolgen mit dem Bau und Betrieb der mit französischer Unterstützung in Tokai Mura errichteten 250-jato-Demonstrations-Wiederaufarbeitungsanlage eine auf eigenen Erfahrungen basierende Entsorgungsstrategie. Zur Zeit laufen konkrete Planungen für den Bau einer 800-jato-Wiederaufarbeitungsanlage am Standort Rokkasho auf der Insel Honshu, bei der ausschließlich japanisches Know-how eingesetzt werden soll. Allerdings bemühen sich die Japaner derzeit weltweit um die Sammlung frei verfügbarer Erfahrungen. Als Baubeginn ist das Jahr 1987 vorgesehen.

Die mit der COGEMA bzw. der BNFL bestehenden Wiederaufarbeitungsverträge sollen nicht aufgestockt werden. Vertragsgemäß werden sämtliche Abfälle nach Japan zurückgebracht und müssen dort endgelagert werden. Die in der Tokai-Mura-Anlage erzeugten HAW-Lösungen werden in Edel-

stahl tanks zwischengelagert und sollen möglichst bald verglast werden. Die Japaner konzentrieren sich inzwischen ausschließlich auf die HAW-Verwahrform Borosilikatglas. Sie betreiben seit 1976 ein umfangreiches F&E-Programm zur Verglasung. Neben Borosilikatglas ist noch eine Zeolith-Keramik als Alternative in der Diskussion. Vermutlich soll sie nur als Verwahrform für spezielle Abfallsorten, wie beispielsweise Transuranabfälle, dienen. Eine Pilotverglasungsanlage befindet sich in Tokai Mura in der Planung. Mit dem Bau soll in Kürze begonnen werden, wobei ein keramischer Schmelzofen mit Flüssigeinspeisung vorgesehen ist. Im Unterschied zum PAMELA-Fließschema wird eventuell eine chemische Denitrierung vorgeschaltet.

Als mögliche Endlagerformation für HAW sind Granit- und Zeolithgesteine in der Diskussion. Auf dem japanischen Festland existieren keine besonders guten Voraussetzungen für geologische Endlager. Es gibt Anzeichen, daß die Japaner deshalb Kooperationsabkommen mit Kompensationscharakter mit anderen Ländern (z.B. China, Australien) nicht abgeneigt sind. Standortspezifische Erkundungen zur Errichtung unterirdischer Zwischenlager für hoch- und mittelaktive Abfälle (Inbetriebnahme bereits für 1992 vorgesehen) aus dem gesamten Lande sind in Horonobe auf der Insel Hokkaido im Gange. Dort werden zur Zeit sowohl ein untertägiges Forschungslabor als auch über Tage ein Forschungszentrum für die Untersuchung geeigneter Abfallverwahrformen mit einem Kostenaufwand von etwa 1 Milliarde DM gebaut. Ein Endlager für schwachaktive Abfälle soll am Standort der neuen 800-jato-Wiederaufarbeitungsanlage errichtet werden. Die Japaner beteiligen sich am Internationalen Subseabed Disposal Programm und bemühen sich überdies sehr intensiv um eine Entsorgung über die Versenkung der Abfälle ins Meer. Zuständig für das gesamte Abfallmanagement ist die privatwirtschaftlich orientierte japanische Power Reactor und Nuclear Fuel Development Corporation (PNC).

- Kanada

Obgleich Kanada bisher keine konkreten Pläne zur Realisierung der Wiederaufarbeitung im industriellen Maßstab verfolgt, laufen intensive F&E-Bemühungen zur Verfestigung von HAW-Lösungen. Als Abfallmatrix stehen Borosilikatglas und ein höherschmelzendes Alumosilikatglas im

Vordergrund des Interesses. Es werden aber auch Versuche zum Einsatz kristalliner keramischer Verwahrformen (SYNROC) durchgeführt. Favoriert wird der Einsatz der Sol-Gel-Technik nach dem bei der KFA Jülich entwickelten Prinzip der externen Gelierung mit anschließender Drucksinterung. Weitere Untersuchungen gelten der direkten Endlagerung abgebrannter Brennelemente nach entsprechender Konditionierung. Für die geologische Endlagerung sind Granitformationen vorgesehen. Am Lac du Bonnet im Staate Manitoba wird zur Zeit ein Untergrundlabor eingerichtet. Seit 1960 laufen Langzeitlager- und Auslaugversuche mit gealterten Spaltproduktgemischen, die in eine Nephelin-Syenitglasmatrix inkorporiert sind. Im Bau befindet sich eine Pilot-Verglasungsanlage (Waste Immobilization Process Experiment) mit einer Kapazität von 10 kg Glas pro Stunde. Kanada ist am Internationalen Subseabed Disposal Programm beteiligt.

- Niederlande

Eine Wiederaufarbeitung im eigenen Land ist nicht vorgesehen. F&E-Arbeiten zur HAW-Verfestigung werden nur in geringerem Umfang im Labormaßstab durchgeführt. Bedeutender sind die nationalen Aktivitäten auf dem Gebiet der Endlagerung in Salzformationen. Von Interesse sind auch Forschungsarbeiten zur Strahleneinwirkung auf die HAW-Abfallprodukte und das Wirtsgestein. Die Kernkraftwerksabfälle sollen in einem in direkter Nachbarschaft zum Kernkraftwerk Borssele gelegenen Zwischenlager für die nächsten 50 bis 100 Jahre untergebracht werden. Zuständig für das gesamte Abfallmanagement ist die Gesellschaft COVRA, die 1982 gegründet wurde.

- Schweden

In Schweden kommt derzeit infolge politischer Vorgaben eine Wiederaufarbeitung im eigenen Land nicht in Betracht. Deshalb waren Wiederaufarbeitungsverträge mit der COGEMA (730 t) und der BNFL (140 t) abgeschlossen worden. Zum Nachweis der Entsorgung abgebrannter Brennelemente wurden Konzepte entwickelt, die ausgedienten Brennelemente direkt im geologischen Untergrund endzulagern. Auf der Basis des ursprünglichen Konzepts zur Wiederaufarbeitung im Ausland und der Verpflichtung zur Rücknahme der Abfälle wurde schon frühzeitig ein in sich geschlossenes Endlagerkonzept entwickelt. Für die schwach- und mittelaktiven Abfälle ist seit 1984 das Endlager SFR bei Forsmark in Bau. Es

wird 60 Meter unter dem baltischen Meer in einer Granit-Gneis-Formation angelegt. Das schwedische F&E-Programm umfaßt eigene Untersuchungen zur Charakterisierung sämtlicher Abfallprodukte. Als Verwehrform für HAW stand von Anfang an Borosilikatglas fest, da dies durch die COGEMA und BNFL vorgegeben wurde. Die Schweden qualifizierten das französische Borosilikatglas durch eigene Untersuchungen als endlagergeeignet. Als geologische Endlagerformation wurde Granit ausgewählt. Die Endlagerung von verglastem HAW - ebenso diejenige abgebrannter Brennelemente - in einer Granitformation ist von der Regierung akzeptiert. Damit ist der Entsorgungsnachweis für beide Abfallsorten erbracht. Die aktuelle Gesetzgebung in Schweden schließt den weiteren Ausbau der Kernenergie aus; im Jahre 2010 sollen alle Kernkraftwerke stillgelegt werden.

In Zusammenarbeit mit dem U.S. Department of Energy, der kanadischen AECL und der schweizer NAGRA betreibt die schwedische Nuclear Fuel Supply Company, ein Tochterunternehmen von vier schwedischen Energieversorgungsunternehmen das Untertagelabor im Stripa-Bergwerk in Zentralschweden. Seit einiger Zeit favorisiert die schwedische Regierung die direkte Endlagerung der abgebrannten Brennelemente. Sie hat dafür ein umfangreiches F&E-Programm zur Sicherheitstechnik durchgeführt. Das Konzept gründet sich auf einen sehr aufwendigen Mehrfachbarriereneinschluß mit einem besonders korrosionsbeständigen Behälterdesign. Die in dicke Kupferbehälter dicht eingeschlossenen Brennelemente werden für die Dauer von etwa 40 Jahren vor ihrer Endlagerung in einer Granitformation in einem unterirdisch angelegten Wasserbecken-Zwischenlager aufbewahrt. Die 1985 fertiggestellte Anlage mit der Bezeichnung CLAB hat eine Aufnahmekapazität für 6000 Tonnen UO_2 . Ein Endlager für HAW, das sowohl Glaskokillen als auch Brennelementbehälter aufnehmen kann, soll im Jahre 2010 zur Verfügung stehen. Schweden beteiligt sich am Internationalen Subseabed Disposal Programm. Im Auftrag der schwedischen Energieversorgungsunternehmen ist die Swedish Nuclear Fuel Supply Company (SKBF) für das gesamte Abfallmanagement verantwortlich. Die zugehörigen F&E-Arbeiten werden von der Tochtergesellschaft KBS durchgeführt, die seit 1976 besteht.

- Schweiz

Eine Wiederaufarbeitung im eigenen Land ist nicht vorgesehen. Verträge über 470 Tonnen UO_2 bestehen zur Zeit mit der COGEMA. Für die Endlagerung der zurückgenommenen Borosilikatgläser ist eine Granitformation vorgesehen. Die diesbezüglichen Forschungsarbeiten werden im Felslabor GRIMSEL durchgeführt. Die Bundesrepublik Deutschland ist an diesem Vorhaben durch die beiden Institutionen BGR, Hannover und GSF/IFT, Braunschweig beteiligt. Zum Nachweis der Verwirklichung des schweizerischen Entsorgungskonzeptes dient das Projekt GEWÄHR der NAGRA, eine umfassende Dokumentation zur Sicherheit der Deponierung radioaktiver Abfälle in einem nationalen Endlager. In diesem Projekt wurde nachgewiesen, daß Endlager für radioaktive Abfälle mit der heutigen Technik sicher gebaut werden können und die Langzeitsicherheit gewährleistet ist.

HAW-Glaskokillen werden in 25 cm starke Stahlbehälter eingeschweißt und in 1200 m Tiefe in einer Granitscholle unter der Nordschweiz in Bohrlöchern eingelagert, die als zusätzliche Rückhaltebarriere mit einer quellfähigen Tonschicht ausgestattet sind. MAW mit einem höheren Gehalt an Aktiniden bzw. Transuranen wird wie HAW behandelt. Der übrige schwach- und mittelaktive Abfall soll in einem Untertagebergwerk in Mergelgestein endgelagert werden. Vor einer Endlagerung der HAW-Gebinde im Granit ist ihre zentrale Zwischenlagerung in einem Bunker vorgesehen, um die Nachzerfallswärmeproblematik im Endlager leichter beherrschbar zu machen. Als HAW-Verwahrform werden Borosilikatgläser akzeptiert. Deren Eignung wurde durch ein nationales F&E-Programm am Forschungszentrum EIR, Würenlingen, nachgewiesen.

Die Schweiz hat bisher an internationalen Versenkungsaktionen von LAW- und MAW-Gebinden in der Tiefsee teilgenommen. Inzwischen schafft sie durch die Errichtung von Zwischenlagereinrichtungen vorerst Ersatz. Zuständig für das gesamte Abfallmanagement ist die NAGRA, die 1972 gegründet wurde.

- Spanien

Eine Wiederaufarbeitung im eigenen Land ist nicht vorgesehen. Eine von 1967 bis 1972 betriebene Pilotanlage diente lediglich der Wiederaufarbeitung von Brennelementen aus einem Materialtestreaktor. Abge-

brannte Brennelemente aus zwei Leichtwasserreaktoren werden aufgrund bis Ende 1981/82 laufender Verträge bei der BNFL wiederaufgearbeitet. Die Verträge sehen keine Rücknahme der dabei anfallenden Abfälle vor. Die COGEMA ist zur Wiederaufarbeitung der aus dem gasgekühlten Reaktor Vandellas I entladenen Brennelemente verpflichtet. Die spanischen Energieversorgungsunternehmen wollen vorläufig keine zusätzlichen Wiederaufarbeitungsverträge abschließen. Sie ziehen zunächst eine längere Zwischenlagerung an den Kernkraftwerksstandorten vor. Nach einer mehrjährigen Lagerung in den Wasserbecken erfolgt eine Umladung in Trockenbehälter. Über das weitere Vorgehen, d.h. Wiederaufarbeitung oder direkte Endlagerung der abgebrannten Brennelemente, wird später entschieden. Die Verantwortung für das gesamte Abfallmanagement liegt bei der staatlichen Junta de Energia Nuclear (JEN). Unter ihrer Federführung werden Laboruntersuchungen zur Verfestigung von HAW-Spaltproduktlösungen durchgeführt. Als Referenzverfahren gilt die Verglasung. Spezielle Entwicklungen sind nicht bekanntgeworden, es handelt sich um anderenorts übliche Verfahren. Vorläufige Studien befassen sich mit der Möglichkeit der geologischen Endlagerung der HAW-Gebinde sowie der Vorerkundung geeigneter geologischer Formationen. Spanien hat einen Zusammenarbeitsvertrag mit Frankreich unterzeichnet, der gemeinsame F&E-Arbeiten auf dem Gebiet der Abfallkonditionierung einschließt. Ein Lager für schwach und mittelaktive Abfälle ist in El Cabril in der Sierra d'Albarrana in Betrieb.

- USA

In den USA führte ein sehr breit angelegtes und über viele Jahre durchgeführtes Forschungsprogramm zu Erfahrungen über Vor- und Nachteile aller denkbaren Abfallverwahrform-Alternativen einschließlich keramischer Produkte. Im Grunde genommen hat die Entwicklung von SYNROC in den USA ihren Anfang genommen. Die USA verfügen über die längste und ausgedehnteste Erfahrung in der Wiederaufarbeitungs- und Abfallbehandlungstechnik. Anlagen unter der Regie des Verteidigungsministeriums sind in Idaho Falls, in Hanford und in Savannah River in Betrieb. Die in den jeweiligen Anlagen erzeugten HAW-Lösungen befinden sich zur Zwischenlagerung in Stahl- bzw. Edeltanks. Teilweise werden daraus Sr-90 und Cs-137 zur Herstellung von starken Strahlenquellen abgetrennt. In Idaho Falls wird die stark salzhaltige (Aluminiumnitrat) HAW-Lösung in einer Wirbelschichtanlage kalziniert und das resultie-

rende Produkt in Pulverform in Spezialtanks aufbewahrt. Versuche zur Einführung der kommerziellen Wiederaufarbeitung waren wenig erfolgreich. Die erste kommerziell betriebene Anlage in West Valley ist seit längerer Zeit stillgelegt. Die dort lagernde HAW-Lösung soll unter Einsatz eines keramischen Schmelzers verglast werden. Durchgeführt wird das Projekt im Auftrag des Department of Energy (DOE) durch die Firma Westinghouse. Aufgrund einer Regierungsentscheidung der Carter-Administration im Jahre 1977 wurde die kommerzielle Wiederaufarbeitung auf unbestimmte Zeit ausgesetzt. Die Entsorgung der Kernkraftwerke geschieht vorläufig über eine Zwischenlagerung der abgebrannten Brennelemente. Eine direkte Endlagerung wird zwar in Erwägung gezogen, aber im Augenblick ebenfalls nicht operativ wahrgenommen.

An den beiden Standorten Savannah River und Hanford sind Anlagen zur Verglasung des sogenannten "Defense Waste" aus dem amerikanischen Verteidigungsprogramm im Bau bzw. im Planungsstadium. Als Basiskonzept dient in allen Fällen ein keramischer Schmelzofen, nachdem in den USA über lange Zeit die Sprühkalzination mit angeschlossenem mittelfrequenzbeheiztem Schmelzer das Referenzkonzept darstellte. Die Amerikaner haben 1979 in einer Demonstrationskampagne bei Battelle Northwest in Hanford in der sogenannten "Waste Vitrification Plant" 160 kg Borosilikatglasblöcke produziert. Diese Menge entspricht dem HAW aus 1,5 Tonnen LWR-Brennstoff. Eine Vorläuferanlage mit einer Kapazität aus 1 t LWR-Brennstoff pro Tag war in der Zeit von 1966 bis 1970 in Hanford im Versuchsbetrieb. Das DOE hat im vergangenen Jahr jegliche Unterstützung zur Entwicklung alternativer Abfallverwahrformen eingestellt, da die Meinung vorherrscht, Borosilikatglasprodukte genügen allen Sicherheitsanforderungen. Als aussichtsreiche Endlagerformationen werden Salz, Tuff und Basalt in Erwägung gezogen. Granitformationen stellen lediglich eine Backup-Lösung dar. Ein Versuchsendlagerbergwerk in einer Tuff-Formation wurde auf der Nevada Test Site über mehrere Jahre mit eingekapselten LWR-Brennelementen betrieben. Momentan wird geprüft, ob ein Endlager an diesem Ort eingerichtet werden kann. Die erste Endlagerstätte für militärischen Transuran-Abfall (TRU-Abfall), wird zur Zeit in einer Salzformation in Carlsbad, New Mexico, errichtet. Sie ist unter dem Namen WIPP-Facility bekanntgeworden (Waste Isolation Pilot Plant). Der Waste Policy Act aus dem Jahre 1982 liefert den Rahmen für das Regierungsprogramm zur Realisierung der Endlagerung. Das

Programm fordert für das Jahr 1998 die Inbetriebnahme des ersten auf kommerzieller Basis betriebenen Endlagers für HAW und TRU-Abfälle. Dieser Termin wurde inzwischen um fünf weitere Jahre verschoben. Drei Standorte mit den Wirtsgesteinen Tuff, Basalt und Salz werden derzeit untersucht. Die definitive Standortwahl soll aufgrund von Untersuchungen unter Einsatz von Sondierschächten an jedem Standort getroffen werden. Für ein zweites Endlager ist Kristallin als Wirtsgestein vorgesehen. Die konkreten Arbeiten dafür sind aber kürzlich gestoppt worden, da kein unmittelbarer Zeitdruck besteht. Die USA haben die Federführung beim Internationalen Subseabed Disposal Programm. Schwach- und mittelaktive Abfälle werden in oberflächennahen Deponien endgelagert.

- UdSSR

Wiederaufarbeitungsanlagen für militärische Zwecke sind vorhanden und in Betrieb. Erkenntnisse über die eingesetzte Wiederaufarbeitungstechnologie von Brennelementen aus zivilen Kernkraftwerken sowie über nähere Einzelheiten liegen nicht vor. Bekannt ist, daß in sowjetischen Forschungslaboratorien umfangreiche F&E-Arbeiten zur Optimierung der Entsorgungstechnologie laufen. Im Rahmen dieser Arbeiten werden verschiedene Abfallverwehrformen auf ihre Eignung untersucht, wobei anscheinend auch in der UdSSR heute generell Borosilikatgläser favorisiert werden. Außerdem wird berichtet, daß in einer Pilotanlage HAW-Lösungen zu einem Aluminiumphosphatglas verfestigt werden. Lagerkonzepte verglaster Abfälle in geologischen Endlagern und oberflächennahen Kunstbauten befinden sich noch alle im Untersuchungsstadium. Angeblich stehen Salzformationen im Vordergrund. Konkrete Projekte werden noch nicht realisiert. Auch existiert bisher kein Untertage-Forschungslabor.

5.3 Schlußfolgerungen

Der Überblick macht deutlich, daß trotz der breiten Palette von Konzepten und Verfahren in den verschiedenen Ländern sich inzwischen eine Angleichung und Einigkeit in den grundsätzlichen Fragen abzeichnet. Für die auslaugungsresistente Fixierung der bei der Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente anfallenden Spaltproduktlösungen und Schlämme bieten sich Gläser, Glaskeramiken und synthetische Gesteine als Alternativen an.

Obwohl sich kristalline Produkte vom Grundsätzlichen her betrachtet durch eine höhere Beständigkeit gegenüber hydrothermalen Einflüssen auszeichnen, eignen sich Gläser wegen ihrer amorphen Struktur besonders gut als Verwahrform. Als günstigste Matrix haben sich Gläser des Borosilikatsystems herausgestellt. Entscheidend ist neben der relativ einfachen Herstellbarkeit und chemischen Widerstandsfähigkeit ihre Unempfindlichkeit gegen Schwankungen in der Zusammensetzung der Abfalloxide und gegen Strahlenschäden.

Aus standortspezifischen Sicherheitsanalysen werden Anforderungen an Abfallgebinde für die Endlagerung abgeleitet, die trotz der unterschiedlichen internationalen Endlagerkonzepte einheitlichen Regeln folgen. Entscheidend sind stets die physikalisch-chemischen Eigenschaften des radioaktiven Abfalls, deren Kenntnis Eingang in Sicherheitsanalysen findet, die das Gesamtsystem des Endlagers im bestimmungsgemäßen Betrieb, bei Störfällen in der Betriebsphase sowie in der Nachbetriebsphase berücksichtigt. Das Ergebnis solcher Analysen in den verschiedenen in Betracht gezogenen geologischen Endlagerformationen bestätigt die Eignung der Borosilikatglasprodukte als Verwahrform für hochaktive Spaltproduktgemische.

Alternative HAW-Produkte, insbesondere künstlich hergestellte kristalline Gesteine, weisen zwar eine bessere Langzeitstabilität gegenüber hydrothermalen Störfalleinflüssen auf, bei einer Gesamtwürdigung aller Einflußfaktoren, einschließlich der Herstellungs- und Sicherheitstechnik, zeigen sie sich aber den Borosilikatglasprodukten als nicht überlegen.

Das Verbringen hochaktiver Abfallgebinde in den tiefen geologischen Untergrund des Festlandes wird als die risikoärmste Endlagermethode eingestuft. Die standortspezifisch durchgeführten Sicherheitsanalysen erbrachten außerdem den Nachweis der sicherheitstechnischen Machbarkeit einer direkten Endlagerung abgebrannter Brennelemente. Das HAW-Entsorgungskonzept der Bundesrepublik Deutschland entspricht im Lichte internationaler Maßstäbe den höchsten Anforderungen.

LITERATUR

- /ALT 82/ Altenheim, F.K., W. Lutze (Ed.) und R.C. Ewing:
Long Term Radioactivity Release from Solidified High Level
Waste, Part I. An Approach to Evaluating Experimental Data
MRS Symposium, Proceedings, Vol. 11, Scientific Basis for
Nuclear Waste Management,
Elsevier Science Publ. Co. Inc. (1982)
- /BAU 83/ Bauer, C., und G. Ondracek:
Behandlung von nuklearem Abfall als Werkstoffproblem:
Zur Technologie von hochradioaktiven Endlagerprodukten
Atomkernenergie/Kerntechnik 43 (1983), S. 55-59
- /BMI 80/ Der Bundesminister des Innern:
Grundsätze zur Entsorgungsvorsorge für Kernkraftwerke
Bundesanzeiger Nr. 58 vom 22.3.1980
- /BMI 83/ Der Bundesminister des Innern:
Sicherheitskriterien für die Endlagerung radioaktiver Ab-
fälle in einem Bergwerk
GMBI. 1983, S. 220
- /BRA 77/ Bradley, D.J.:
Leaching of Fully Radioactive High-Level Glass
PNL-5012 (1977)
- /BUR 75/ Burns, R.E.:
High-Level Waste Concentration and Storage - An Overview
BNWL-SA-5477 (1975)
- /BUR 83/ Burkholder, H.C.:
Engineered Components for Radioactive Waste Isolation
Systems - Are they Technically Justified?
Technical Report ONWI-268, Battelle Projekt Management
Division, Columbus, Ohio/USA, 1983

- /CAR 72/ McCarthy, G.J., und M. Lovette:
Use of Hot Pressing to Fix Solid Radioactive Wastes in Glass
Bull. Am. Ceram. Soc. 51 (1972), S. 655-660
- /CAR 75/ McCarthy, G.J.:
Radioactive Waste Management: The Nuclear Waste Form
Earth and Mineral Sciences 54 (1975), S. 17-20
- /CAR 78/ McCarthy, G.J., W.B. White und D. E. Pfoertsch:
Synthesis of Nuclear Waste Monazites, Ideal Actinide Hosts
for Geological Disposal
Mat. Res. Bull. 13 (1978), S. 1239-1245
- /CAS 79/ Casey, L.A. (Ed.):
Proc. Conference on High Level Radioactive Waste Forms,
Denver/USA
SCS Engineers, Reston, VA
NUREG-CP-0005 (1979)
- /CLA 82/ Clark, D.E., A.R. Jurgensen und L.L. Hench:
A Bibliography of High Level Nuclear Wastes
Ceramic Division, Dept. of Materials Science and Engineering,
University of Florida, Gainesville, Florida/USA, 1982
- /DOE 80/ U.S. Department of Energy:
Alternative Waste Review Panel
Report No. 2, Interim Report Dec. 10 (1980)
- /DOE 81/ U.S. Department of Energy:
Alternative Waste Form Peer Review Panel
The Evaluation and Review of Alternative Waste Forms for
Immobilization of High-Level Radioactive Wastes
Report No. 3
DOE-TIC 11472 (1981)
- /DOE 82/ U.S. Department of Energy:
Guidelines for the Development and Testing of NWTS Waste
Package Materials
ONWI, Columbus/Ohio
DOE/NWTS-34 (1982)

- /EWI 76/ Ewing, R.C.:
Metamict Mineral Alteration: An Implication for Radioactive
Waste Disposal
Science, Vol. 192 (1976), S. 1336-1337
- /FIL 76/ Filbert, A.M., und M.L. Hair:
Surface Chemistry and Corrosion of Glass
In: Advances in Corrosion Science and Technology
(M.G. Fontana, R.M. Staehle, Eds.), Plenum Press,
Vol. 5, 1976, S. 1-54
- /FUL 80/ Fullam, H.T.:
Use of Ceramic Materials in Waste-Package Systems for
Geologic Disposal of Nuclear Wastes
PNL-3447 (1980)
- /GAN 85/ Ganguly, C., H. Langen, E. Zimmer und E. Merz:
Sol-Gel Microsphere Pelletization Process for
Fabrication of High-Density ThO_2 -2% UO_2 Fuel
Nuclear Technology 73 (1986), S. 84-95
- /GRA 83/ Grauer, R.:
Glasses Used in the Solidification of High Level Radioactive
Waste: Their Behaviour in Aqueous Solutions
Technischer Report 83-01, NAGRA, Baden/Schweiz, 1983
- /GRO 80/ Grover, J.R.:
High-Level Waste Solidification - Why we Choose Glass
Radioactive Waste Management 1 (1980), S. 1-12
- /GRS 80/ Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH:
Deutsche Risikostudie Kernkraftwerke, Fachband 6,
Hrsg.: Der Bundesminister für Forschung und Technologie,
Verlag TÜV Rheinland, Köln 1980
- /IAEA 76/ International Atomic Energy Agency:
Convention on the Prevention of Marine Pollution by Dumping
of Wastes and Other Matter
IAEA, Wien, INFCIRC/205 (1976)

- /IAEA 77/ International Atomic Energy Agency:
Techniques for the Solidification of High Level Wastes
Technical Reports, Series No. 176, IAEA, Wien, 1977
- /IAEA 79/ International Atomic Energy Agency:
Characteristics of Solidified High-Level Waste Products
Technical Reports, Series No. 187, IAEA, Wien, 1979
- /IAEA 81a/ International Atomic Energy Agency:
Underground Disposal of Radioactive Wastes - Basic Guidance-
Recommendations
Safety Series No. 54, Wien, 1981
- /IAEA 81b/ International Atomic Energy Agency:
Evaluation of Solidified High-Level Waste Forms
IAEA, Wien, TECDOC-239 (1981)
- /IAEA 83/ International Atomic Energy Agency:
Characteristics of Radioactive Waste Forms Conditioned
for Storage and Disposal
IAEA, Wien, TECDOC-285 (1983)
- /ICRP 77/ International Commission on Radiological Protection:
Recommendation of the ICRP-Publication No. 26
Annals of the ICRP, Vol. 1, No. 3, 1977
- /JEN 72/ Jenks, G.H.:
Radiolysis and Hydrolysis in Salt Brines
ORNL-TM-3717 (1972)
- /KRA 80/ Krause, H.:
Forschungs- und Entwicklungsarbeiten im Kernforschungs-
zentrum Karlsruhe zur Behandlung radioaktiver Abfälle
aus dem Brennstoffkreislauf
KfK 2940 (1980), S. 94-117

- /LLL 83/ Lawrence Livermore Laboratory:
EQ3NR: A Computer Program for Geochemical Aqueous
Speciation-Solubility Calculations: User's Guide and Docu-
mentation
UCRL-53414 (1983)
- /LUT 79/ Lutze, W.:
Glassy and Crystalline High-Level Nuclear Waste Forms
An Attempt at Critical Evaluation
Proc. Int. Symp. on Ceramics in Nuclear Waste Management
Cincinnati, Ohio/USA
CONF-790420 (1979)
- /MAG 80/ Magnani, N.J., und J.W. Braithwaite:
Corrosion-Resistant Metallic Canisters for Nuclear Waste Iso-
lation
Scientific Basis for Nuclear Waste Management, Vol. 2
(C.J.M. Northrup, Ed.), Plenum Press, New York, 1980,
S. 377-384
- /MAL 80/ Malow, G. et al.:
Testing and Evaluation of the Properties of Various Potential
Materials for Immobilizing High Activity Waste
European Appl. Res. Rept. Nucl. Sci. Technol., Vol. 2,
No. 2, EUR-6617 EN (1980)
- /MOL 81/ Molecke, M.A., et al.:
Sandia HLW Canister/Overpack Studies Applicable for a
Salt Repository
SAND 81-1585 (1981)
- /MOL 84/ Molecke, M.A.:
The Waste Package Materials Field Test in S.E. New Mexico
Salt
Scientific Basis for Nuclear Waste Management
VII. MRS Symposia Proc., Vol. 26, McVay (Ed.), North-
Holland, 1984, S. 69-76

- /MOO 80/ Moore, J.G., G.C. Rogers, J.H. Paehler und H.E. Devaney:
FUETAP Concretes as Hosts for Radioactive Wastes
CONF 790420 (1980), S. 132-135
Außerdem JÜL-CONF-42, Vol. 2 (1981), S. 643-655
- /MOR 84/ Morgan, P.E.D., A.B. Harker, J.F. Flintoff, T.M. Shaw
und R. Clarke:
Developments in Composite Defense Ceramic Radwaste Forms
Advances in Ceramics, Vol. 8, G.G. Wicks and W.A. Ross
(Eds.), The American Ceramic Society, Columbus/Ohio, 1984
- /NOR 83/ Noronha, C.J., und F.J. Pearson Jr.:
PHREEQUE, A Geochemical Speciation and Mass Transfer
Code Suitable for Nuclear Waste Performance Assessment
ONWI-435 (1983)
- /PAE 85/ Projektgruppe Andere Entsorgungstechniken:
Hauptband Systemstudie Andere Entsorgungstechniken
KfK, Karlsruhe, 1985
- /PAR 80/ Parkhurst, D.L., D.C. Thorstenson und K.N. Plummer:
PHREEQUE, A Computer Program for Geochemical Calcula-
tions
U.S. Geochemical Survey Water Resources Investigations,
1980, S. 80-96
- /PNL 84a/ Pacific Northwest Laboratories:
Final Report of the Defense High-Level Waste Leaching
Mechanisms Program
PNL-5157, (1984)
- /PNL 84b/ Pacific Northwest Laboratory:
PROTOCOL, A Numerical Simulator for Glass Dissolution
PNL-5157 (1984), S. 7.1 - 7.35
- /PSE 85/ Projekt Sicherheitsstudien Entsorgung:
Zusammenfassender Abschlußbericht, Kapitel 1, Einführung
und Ergebnisübersicht
HMI, Berlin, 1985, S. 1-59

- /RIN 78/ Ringwood, A.E.:
Safe Disposal of High-Level Nuclear Reactor Waste: A New Strategy
Austr. Natl. Univ. Press, Canberra, 1978, S. 64
- /RIN 81/ Ringwood, A.E., V.M Oversby, S.E. Kesson, W. Sinclair,
N. Ware, W. Hibberson und A. Major:
Immobilization of High-Level Nuclear Wastes in SYNROC:
A Current Appraisal
Nuclear and Chemical Waste Management 2 (1981), Austr.
Natl. Univ. Press, Canberra, Publ. No. 1475 (1981), S. 52
- /SOL 86/ Solomah, A.G., R. Odoj, E. Merz und D. Thiele:
Demonstration of the Fixation of Real High-Level Radio-
active Waste in Sintered Modified SYNROC-B
Crystalline Ceramic Waste Form
Proc. ENC '86 Conference Nuclear Energy of Today and
Tomorrow, Geneva, Switzerland, June 1-6, 1986
- /STR 83/ Strachan, D.M.:
Results from Long-Term Use of the MCC-1 Static Leach Test
Method. Nuclear and Chemical Waste Management 4 (1983),
S. 177-188
- /TYM 77/ Tymochowicz, S.:
A Collection of Results and Methods on the Leachability of
Solidified High-Level Radioactive Waste Forms
HMI-B 241 (1977)
- /VOG 71/ Vogel, W.:
Struktur und Kristallisation der Gläser
VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig, 1971
- /WES 84/ Westerman, R.E., und S.G. Pitman:
Corrosion of Candidate Iron-Base Package Structural Barrier
Materials in Moist Salt Environments
Scientific Basis for Nuclear Waste Management, Boston,
Mass./USA, G. Mc Vay (Ed.), Plenum Press,
New York (1984)

/WIC 82/ Wicks, G.G., W.C. Mosley, P.G. Witkop und K.A. Saturday:
Durability of Simulated Waste Glass. Effects of Pressure
and Formation of Surface Layers
J. Non-Cryst. Solids 49 (1982), S. 413-428

/WOL 79/ Wollery, T.J.:
Calculations of Chemical Equilibrium between Aqueous Solu-
tion and Minerals: The EQ3/EQ6 Software Package National
Technical Information Office
UCRL-52658 (1979)

ANHANG

Verwendete Abkürzungen

Das Periodensystem der Elemente

Erläuterung von Fachbegriffen

Verwendete Abkürzungen

AECL	=	Atomic Energy Canada Ltd. (Industrieunternehmen, Kanada)
AGR	=	Advanced Gas-cooled Reactor
AVH	=	Atelier de Vitrification La Hague
AVM	=	Atelier de Vitrification Marcoule
AVR	=	Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor GmbH, Düsseldorf/ Jülich
BGR	=	Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, Hannover
BNFL	=	British Nuclear Fuels Ltd. (Dienstleistungsunternehmen Risley, Großbritannien)
CEA	=	Commissariat à l'Energie Atomique, Paris
COGEMA	=	Compagnie Générale des Matières Nucléaires (Staatl. Industrieunternehmen, Frankreich)
DWK	=	Deutsche Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen mbH, Hannover
EIR	=	Eidgenössisches Institut für Reaktorforschung, Schweiz
EUROCHEMIC	=	European Company for the Chemical Processing of Irradiated Fuel (Anlage der NEA/OECD in Mol, Belgien)
F&E	=	Forschung und Entwicklung
GSF	=	Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH, Neuherberg
HAW	=	High Active Waste (hochaktiver Abfall)
HMI	=	Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung, Berlin
IAEA	=	International Atomic Energy Agency, Wien
ICRP	=	International Commission on Radiological Protection, Großbritannien
IFT	=	Institut für Tieflagerung der GSF
KFA	=	Kernforschungsanlage Jülich GmbH
KfK	=	Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
KWU	=	Kraftwerk Union AG, Erlangen

LAW	=	Low Active Waste (schwachaktiver Abfall)
LWR	=	Leichtwasserreaktor
MAW	=	Medium Active Waste (mittelaktiver Abfall)
NAGRA	=	Nationale Genossenschaft für die Lagerung Radioaktiver Abfälle, Schweiz
PAMELA	=	Pilotanlage Mol zur Erzeugung lagerfähiger Abfälle
PTB	=	Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig
THTR	=	Thorium-Hochtemperatur-Reaktor
US-DOE	=	United States Department of Energy
WAK	=	Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe

Das Periodensystem der Elemente

H 1	He 2
--------	---------

O	I	II	III	IV	V	VI	VII	O										
He 2	Li 3	Be 4	B 5	C 6	N 7	O 8	F 9	Ne 10										
Ne 10	Na 11	Mg 12	Al 13	Si 14	P 15	S 16	Cl 17	Ar 18										
O	Ia	IIa	IIIa	IVa	Va	VIa	VIIa	VIII	IX	X	IB	IIB	IIIB	IVB	VB	VIB	VIIb	0
Ar 18	K 19	Ca 20	Sc 21	Ti 22	V 23	Cr 24	Mn 25	Fe 26	Co 27	Ni 28	Cu 29	Zn 30	Ga 31	Ge 32	As 33	Se 34	Br 35	Kr 36
Kr 36	Rb 37	Sr 38	Y 39	Zr 40	Nb 41	Mo 42	Tc 43	Ru 44	Rh 45	Pd 46	Ag 47	Cd 48	In 49	Sn 50	Sb 51	Te 52	I 53	Xe 54
Xe 54	Cs 55	Ba 56	La 57	Hf 72	Ta 73	W 74	Re 75	Os 76	Ir 77	Pt 78	Au 79	Hg 80	Tl 81	Pb 82	Bi 83	Po 84	At 85	Rn 86
Rn 86	Fr 87	Ra 88	Ac 89															

- *Metalle der seltenen Erden (Lanthaniden)
- Uran-Metalle (Actiniden)

Ce 58	Pr 59	Nd 60	Pm 61	Sm 62	Eu 63	Gd 64	Tb 65	Dy 66	Ho 67	Er 68	Tm 69	Yb 70	Lu 71
Th 90	Pa 91	U 92	Np 93	Pu 94	Am 95	Cm 96	Bk 97	Cf 98	E 99	Fm 100	Mv 101	No 102	Lw 103

Element	Symbol	Element	Symbol	Element	Symbol
Aktinium	Ac	Helium	He	Quecksilber	Hg
Aluminium	Al	Holmium	Ho	Radium	Ra
Americium	Am	Indium	In	Radon	Rn
Antimon	Sb	Iridium	Ir	Rhenium	Re
Argon	Ar	Jod	J	Rhodium	Rh
Arsen	As	Kalium	K	Rubidium	Rb
Astat	At	Kobalt	Co	Ruthenium	Ru
Barium	Ba	Kohlenstoff	C	Samarium	Sm
Berkelium	Bk	Krypton	Kr	Sauerstoff	O
Beryllium	Be	Kupfer	Cu	Scandium	Sc
Blei	Pb	Lanthan	La	Schwefel	S
Bor	B	Lawrencium	Lw	Selen	Se
Brom	Br	Lithium	Li	Silber	Ag
Cadmium	Cd	Lutetium	Lu	Silizium	Si
Cäsium	Cs	Magnesium	Mg	Stickstoff	N
Californium	Cf	Mangan	Mn	Strontium	Sr
Calcium	Ca	Mendelevium	Md	Tantal	Ta
Cer	Ce	Molybdän	Mo	Technetium	Tc
Chlor	Cl	Natrium	Na	Tellur	Te
Chrom	Cr	Neodym	Nd	Terbium	Tb
Curium	Cm	Neon	Ne	Thallium	Tl
Dysprosium	Dy	Neptunium	Np	Thorium	Th
Einsteinium	Es	Nickel	Ni	Thulium	Tm
Eisen	Fe	Niob	Nb	Titan	Ti
Erbium	Er	Nobelium	No	Uran	U
Europium	Eu	Osmium	Os	Vanadium	V
Fermium	Fm	Palladium	Pd	Wasserstoff	H
Fluor	F	Phosphor	P	Wismut	Bi
Francium	Fr	Platin	Pt	Wolfram	W
Gadolinium	Gd	Plutonium	Pu	Xenon	Xe
Gallium	Ga	Polonium	Po	Ytterbium	Yb
Germanium	Ge	Praseodyn	Pr	Yttrium	Y
Gold	Au	Protactinium	Pa	Zink	Zn
Hafnium	Hf	Promethium	Pm	Zinn	Sn
				Zirkonium	Zr

Erläuterung von Fachbegriffen

Abbrand

Energie, die einer Kernbrennstoffmenge während des Reaktorbetriebes entnommen wird. Der Abbrand wird angegeben in Mega-Watt-Tagen oder Giga-Watt-Tagen pro Tonne eingesetzten Brennstoffs (MWd/tSM bzw. GWd/tSM).

Abklingzeit

Zeitdauer seit Herausnahme der Brennelemente aus einem Kernreaktor bis zum Betrachtungszeitpunkt danach.

Aktivität

Anzahl der Zerfälle von Atomkernen pro Zeiteinheit. Die Maßeinheit für die Aktivität ist das "Becquerel" (Bq); 1 Bq entspricht einem Zerfall pro Sekunde.

Alpha-Strahlung (α -Strahlung)

entsteht beim radioaktiven Zerfall schwerer Atomkerne. Die dabei emittierten Alpha-Teilchen sind mit dem Kern des Heliumatoms identisch, bestehend aus zwei Protonen und zwei Neutronen. Alpha-Teilchen bilden stark ionisierende Strahlung, haben aber aufgrund ihrer elektrischen Ladung und Größe nur eine geringe Reichweite. Sie beträgt in fester Materie nur einige tausendstel Millimeter, in Luft einige Zentimeter.

Aktiniden

Gruppenbezeichnung für die Elemente der Ordnungszahlen 89 (Aktinium) bis 103 (Lawrencium). Hierzu zählen z.B. auch Uran und Plutonium. Die Kerne aller Aktinidenelemente sind instabil und zerfallen überwiegend unter Aussendung eines Alpha-Teilchens.

Beta-Strahlung (β -Strahlung)

Emission von positiv oder negativ geladenen Elektronen (Beta-Teilchen) beim radioaktiven Zerfall. Beta-Strahlen sind weitreichender als Alpha-Strahlen, werden aber bereits durch geringe Schichtdicken wie 1,5 cm Wasser oder 1 cm Aluminium absorbiert.

Brennelement

Kernbrennstoff enthaltendes Bauteil. Bei Leichtwasser- und Brutreaktoren z.B. werden die Brennelemente aus einer Vielzahl von dichten Metallrohren, die den Kernbrennstoff in Tablettenform (Pellets) enthalten (Brennstäbe), montiert. Ein Brennelement bleibt so lange im Reaktor, bis aufgrund der entstandenen Spaltprodukte eine ergiebige Kernspaltung nicht mehr möglich ist.

Extraktion

Chemisches Trennverfahren. Das Prinzip beruht auf der Überführung eines Stoffes aus einer Phase, in der er gelöst ist, in eine andere Phase, wobei die beiden Phasen selbst nicht miteinander mischbar sind. Die Extraktion wird bei der Wiederaufarbeitung mit dem PUREX-Verfahren zur Abtrennung der Spaltprodukte von den Kernbrennstoffen Uran und Plutonium angewendet, wobei die beiden Phasen zur Extraktion Lösungen sind (Solventextraktion). Die wässrige, salpetersaure Lösung des Brennstoffs und der Spaltprodukte wird in innigen Kontakt mit einem organischen Lösungsmittel (z.B. Gemisch aus Tributylphosphat und Kerosin) gebracht. Die Uran- und Plutoniumsalze gelangen dann in die organische Phase, wohingegen die Spaltprodukte in der wässrigen Phase verbleiben.

Gamma-Strahlung (γ -Strahlung)

hochenergetische, kurzwellige elektromagnetische Strahlung, die von Atomkernen ausgesandt wird. Gamma-Strahlen haben ein hohes Durchdringungsvermögen und lassen sich am besten durch Materialien großer Dichte, z.B. Blei oder Beton, abschwächen.

Gebinde

Behälter, Verpackung und die darin befindlichen Abfälle. Bei hochaktiven Spaltprodukten sind das z.B. die Kokille, die Glasmatrix und die darin eingebetteten Spaltprodukte.

Isotope

Atome derselben Kernladungszahl (Protonenzahl) und damit desselben chemischen Elementes, die sich aber in der Anzahl der Neutronen und damit der Masse unterscheiden. So setzt sich z.B. gewöhnlicher Wasserstoff aus drei Isotopen zusammen: H (Atom aus einem Proton und einem Elektron), D (Deuterium) mit einem Kern aus einem Proton und einem Neutron und T (Tritium), dessen Kern ein Proton und zwei Neutronen enthält. Natürliche Isotope sind teils stabil, teils radioaktiv.

Kalzinierung

Zersetzung von Salzen durch Erhitzen. Dabei werden z.B. Wasser und Kohlendioxid ausgetrieben und in einer chemischen Reaktion wandeln sich die Ausgangssubstanzen wie Hydroxide oder Carbonate in Oxide um.

Kontamination

Verunreinigung von Arbeitsflächen, Geräten, Räumen, Wasser, Luft usw. durch radioaktive Stoffe. Um eine radioaktive Kontamination zu beseitigen oder zu verringern (Dekontamination), werden chemische oder physikalische Verfahren herangezogen, wie z.B. Abwaschen oder Reinigung mit Chemikalien oder Filtern der Luft.

Nuklid

Atomkernart, die durch ihre Anzahl an Protonen und Neutronen charakterisiert ist. Zur Zeit sind etwa 1500 verschiedene Nuklide bekannt, die sich auf die 107 bekannten Elemente verteilen. Davon sind über 1200 Nuklide radioaktiv (Radionuklide).

Sintern

Erhitzen von Preßlingen aus pulverförmigen Stoffen in einem Ofen (Sinterofen). Die beim Sintern erforderlichen Temperaturen müssen so hoch sein (zwei Drittel der Schmelztemperatur), daß die einzelnen Teilchen miteinander verschweißt werden, wobei dann kompakte mechanisch stabile Festkörper entstehen.

Spaltprodukte

Nuklide, die bei der Kernspaltung im Brennstoff entstehen. Je Spaltprozeß bilden sich im Kernbrennstoff zwei - manchmal drei - Spaltprodukte und insgesamt einige hundert Radionuklide.

Transurane

Elemente im Periodensystem, die schwerer als Uran (Ordnungszahl 92) sind. Sie kommen in der Natur nicht vor, da sie aufgrund ihrer Halbwertszeit bereits zerfallen sind. Die Transuranelemente entstehen auf künstlichem Wege durch Kernreaktionen und sind alle radioaktiv. Eine Ausnahme bildet das Plutoniumisotop Pu-244 (Halbwertszeit rd. 80 Millionen Jahre), das in sehr geringen Mengen in der Natur nachgewiesen werden konnte.

Zirkaloy

Korrosionsfeste Legierung auf der Basis von Zirkonium und Zinn, die als Werkstoff für Brennstabhüllrohre verwendet wird.

Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH

Schwertnergasse 1
5000 Köln 1

Forschungsgelände
8046 Garching

ISBN 3-923875-16-9