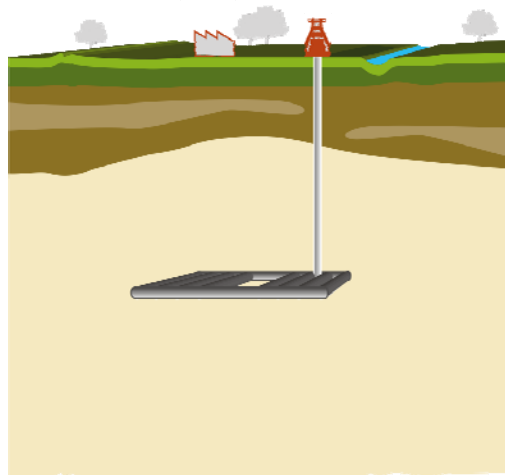


## Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle in Deutschland

### Anhang Behälterstandzeiten

#### Langzeitstabilität von Behältermaterialien und Abfallmatrix



**30.09.2008**

**Bearbeiter:**

Müller-Lyda, I.

Rübel, A.

**Braunschweig / Darmstadt  
September 2008**

**Anhang zu GRS-247  
ISBN 978-3-939355-22-9**

Das diesem Bericht zugrunde liegende FE-Vorhaben wurde im Auftrag des Bundesministeriums für Wirtschaft und Technologie unter den Kennzeichen 02E9783 und 02E9793 durchgeführt. Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei den Autoren.

## Inhaltsverzeichnis

|          |   |           |
|----------|---|-----------|
| <b>1</b> | <b>Langzeitsicherheitsbezogene Anforderungen an endzulagernde Abfälle .....</b> | <b>3</b>  |
| <b>2</b> | <b>Gebinde und Behälterstandzeiten .....</b>                                    | <b>5</b>  |
| <b>3</b> | <b>Langzeitstabilität der Abfallmatrix.....</b>                                 | <b>10</b> |
| 3.1      | Verglaster HLW .....  | 10        |
| 3.2      | Abgebrannte Brennelemente .....   | 12        |
| <b>4</b> | <b>Zeitlicher Verlauf des Aktivitätsinventars und der Wärmeproduktion .....</b> | <b>14</b> |
| <b>5</b> | <b>Literatur.....</b>   | <b>18</b> |
| <b>6</b> | <b>Weiterführende Literatur .....</b>   | <b>21</b> |



## **1 Langzeitsicherheitsbezogene Anforderungen an endzulagernde Abfälle**

Ziel der Endlagerung radioaktiver Abfälle in tiefen geologischen Formationen ist es, die Radionuklide so lange zu isolieren und von der Biosphäre fernzuhalten, bis aufgrund des radioaktiven Zerfalls die potenzielle Gefährdung des Menschen und der Biosphäre auf ein toleriertes Maß zurückgegangen ist. Die Hauptkomponenten eines Abfallgebundes, die Abfallmatrix und der Behälter, stellen eine Barriere zum Einschluss der Radionuklide dar, die insbesondere am Anfang der Nachbetriebsphase des Endlagers zur Isolation der Schadstoffe beiträgt.

Es gibt in Deutschland weder regulatorische Bestimmungen noch sonstige Vorgaben für Anforderungen an das Langzeitverhalten der Behälter und der Matrix wärmeentwickelnder Abfälle. Die langzeitsicherheitsbezogenen Anforderungen ergeben sich vielmehr aus dem der Endlagerung zugrunde liegenden Sicherheitskonzept. Darin wird festgelegt, welche Sicherheitsfunktion von welcher Komponente des Endlagersystems in welchem Zeitraum der Nachbetriebsphase erfüllt wird oder erfüllt werden kann. Eine möglichst lang andauernde Rückhaltung der Radionuklide in der Abfallmatrix und im Abfallbehälter ist sicherheitstechnisch günstig und daher im Sicherheitskonzept prinzipiell anzustreben. Dabei sind jedoch der Sicherheitsgewinn der darauf abzielenden Maßnahmen gegen ihre eventuellen negativen indirekten Auswirkungen oder die Kosten abzuwägen.

Bei einem Endlagerkonzept, bei dem der Einschluss der Radionuklide hauptsächlich durch den einschlusswirksamen Gebirgsbereich erreicht wird, kann geringeres Gewicht auf die Standzeit der Abfallbehälter gelegt werden. Die langzeitsicherheitsbezogenen Anforderungen an die Abfälle hängen somit auch vom gewählten Wirtsgesteinstyp ab. Die tatsächlichen Anforderungen an die Abfallgebände können somit nur über langzeitsicherheitsanalytische Modellrechnungen spezifiziert werden, in denen der Einfluss der einzelnen Komponenten des Endlagers auf die Gesamtsicherheit des Endlagersystems (z. B. durch eine Sensitivitätsanalyse) untersucht wird. Als Beispiel für die unterschiedlichen Anforderungen an die Abfallbehälter für Brennelemente in unterschiedlichen Wirtsgesteinen sind in Tab. 1 die Behälterstandzeiten aufgelistet, die in verschiedenen internationalen langzeitsicherheitsanalytischen Studien zugrunde gelegt wurden.

Tab. 1 Zugrunde gelegte Standzeiten von Brennelementbehältern in unterschiedlichen Studien

| Studie                       | Land | Formation | Standzeit [a] |
|------------------------------|------|-----------|---------------|
| SAM /BUH 91/                 | D    | Steinsalz | 500           |
| Entsorgungsnachweis /NAG 02/ | CH   | Tonstein  | 10.000        |
| SAFIR 2 /OND 01/             | B    | Tonstein  | 2.000         |
| Dossier 2005 Argile /AND 05/ | F    | Tonstein  | 30.000        |
| TILA-99 /VIE 99/             | SF   | Granit    | 100.000       |

Im Rahmen eines Sicherheitsnachweises wird die erwartete Entwicklung des Endlagers in erster Linie auf der Grundlage von Langzeitsicherheitsanalysen bewertet. Die in diesen Langzeitsicherheitsanalysen zugrunde gelegten Daten zur Langzeitstabilität der Abfälle und Abfallbehälter legen somit Anforderungen fest, die später im Endlagerbetrieb eingehalten werden müssen, damit die prognostizierte zukünftige Entwicklung des Endlagersystems tatsächlich eintritt.

Das Verhalten des Behälters unter Endlagerbedingungen während langer Zeiträume wird in Kapitel 2, das Verhalten der Abfallmatrix in Kapitel 3 beschrieben. In diesem Zusammenhang werden die Beiträge der Abfallmatrix und des Behälters zur Rückhaltung der Radionuklide dargestellt. Im Kapitel 4 wird abschließend auf die zeitliche Entwicklung des Aktivitätsinventars und der Wärmeproduktion eingegangen.

## 2 Gebinde und Behälterstandzeiten

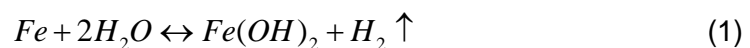
Im Endlager ist ein Abfallbehälter in erster Linie zwei Arten von Beanspruchungen ausgesetzt:

- einer Belastung durch den Gebirgsdruck
- der Korrosion in Gegenwart von Wasser oder Salzlösungen.

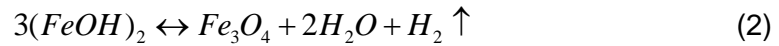
Bei der Endlagerung wärmeentwickelnder Abfälle im Steinsalz ist ein Kontakt der Abfallgebände mit der Lösung und somit eine Mobilisierung der Schadstoffe nur bei einem unterstellten Lösungszutrittsszenario möglich. Das Sicherheitskonzept sieht vor, dass für diesen Fall ein derartiger Kontakt so lange wie möglich verhindert wird. In den Sicherheitskonzepten für Endlager in den übrigen Wirtsgesteinen muss dagegen berücksichtigt werden, dass die Abfälle auch bei ungestörter Entwicklung in Kontakt mit der natürlichen Gebirgsfeuchte kommen.

Die Größe der Druckbelastung hängt von der Art des Wirtsgesteins und dem zugrunde liegenden Endlagerkonzept (und weiteren Parametern) ab. Bei konvergierenden Hohlräumen in plastischen Wirtsgesteinen wie Steinsalz muss der Behälter dem Gebirgsdruck in der Endlagertiefe standhalten. In spröden Festgesteinen ist die Druckbelastung der Abfälle wegen der permanenten Stützwirkung des Gebirges im Allgemeinen geringer als in plastischen Gesteinen. Bei Verwendung von quellfähigem Bentonit als technische Barriere im Festgestein wird der Belastungsdruck auf die Behälter durch den Quelldruck des Bentonits bestimmt.

Bei Kontakt des Endlagerbehälters mit Wasser oder Lösung kommt es zu einer Korrosion des Behälters, bei der sich Wasser und Eisen zu Wasserstoff und Eisenhydroxid umsetzen. Die Bruttoreaktion zwischen Wasser und Eisen läuft nach folgender Reaktionsgleichung ab:



Das gebildete Eisenhydroxid kann sich bei höheren Temperaturen in das thermodynamisch stabilere Endprodukt Magnetit umsetzen, wobei wiederum gasförmiger Wasserstoff entsteht:



Die gasbildenden Korrosionsreaktionen kommen erst bei sehr hohen Wasserstoff-Partialdrücken zum Stillstand, welche die in einem Endlager möglichen Drücke weit übersteigen (ca. 14 MPa für die Bildung von Eisenhydroxid und 80 MPa für Magnetit /PLA 94/).

Durch die Wahl des Behältermaterials können die Korrosionsgeschwindigkeit und somit die Standzeit des Behälters beeinflusst werden. Dabei muss die chemische Zusammensetzung der anstehenden Lösung berücksichtigt werden. Je nachdem, welches Gewicht im Sicherheitskonzept auf die Barrierenwirkung des Endlagerbehälters gelegt wird, können mehr oder weniger korrosionsbeständige Materialien gewählt werden, wobei sich die Verwendung korrosionsbeständiger Behältermaterialien im Allgemeinen kostensteigernd auswirkt.

Bei der anaeroben Korrosion von Endlagerbehältern aus Stahl oder Eisen wird Wasser verbraucht. Wegen des begrenzten Wasserangebots in trockenen, dichten Wirtsgesteinen wird der Behälter daher nicht zwangsläufig immer vollständig durchkorrodieren. In diesem Fall der begrenzten Wasserverfügbarkeit ist die Korrosionsgeschwindigkeit für die Lebensdauer der Behälter nicht relevant.

Pro Kilogramm Eisen werden zur Umwandlung in Magnetit ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) 2,33 kg Wasser benötigt. In Steinsalz ist die maximale Wassermenge, die in ein Bohrloch zutreten kann, unter ungestörten Bedingungen zu gering, um den Behälter vollständig zu korrodieren /RÜB 04a/. Daher ist ein Ausfall der Behälter nur dann möglich, wenn zusätzlich noch Wasser aus z. B. Lösungseinschlüssen Zutritt.

In den Konzepten für die Endlagerung in Steinsalz ist die Hauptanforderung an die Behälter, dass deren Standzeit die Zeitspanne überbrückt, bis der Versatz in den Hohlräumen aufgrund der konvergenzbedingten Kompaktion die zur Isolation der Schadstoffe notwendige niedrige Permeabilität erreicht hat. Danach wird der Zutritt von Wasser an die Behälter und somit deren Korrosion verhindert.

Für die Behälter werden auf internationaler Ebene zurzeit drei unterschiedliche Materialarten in Betracht gezogen. Diese sind

1. korrodierende Behältermaterialien wie unlegierter Stahl (z.B. TStE355),



2. korrosionsarme legierte Stähle, wie z.B. Hastelloy C4 und Ti99.8-Pd,
3. kupferbasierte Legierungen, wie sie z. B. für Endlagerkonzepte mit Granit und Tonstein als Wirtsgestein diskutiert werden /WER 98/.

Da kupferbasierte Behältermaterialien in Deutschland derzeit nicht in Betracht gezogen werden, wird auf diese im Weiteren nicht eingegangen.

Die Geschwindigkeit der Korrosion ist außer vom Material und weiteren Parametern vor allem von der Lösungszusammensetzung und somit von der Art des Wirtsgesteins abhängig. Im Folgenden werden einige Ergebnisse von Korrosionsexperimenten für eine Endlagerung in Steinsalz kurz dargestellt und daraus Behälterstandzeiten unter Endlagerbedingungen abgeleitet.

Für die Endlagerung in Steinsalz wurden Korrosionsversuche sowohl in situ in der Schachtanlage Asse als auch in verschiedenen Labors durchgeführt /SMA 95/, /SCO 98/. In den Experimenten in /SMA 95/ wurden der integrale Materialabtrag am unlegierten Stahl TStE355 und am legierten Stahl Ti99.8-Pd gravimetrisch bestimmt. Die angegebenen Korrosionsraten (in  $\mu\text{m/a}$ ) sind insofern Mittelwerte über den jeweiligen Versuchszeitraum. Beide Stahlsorten zeigen unabhängig von der Lösungszusammensetzung keinen Lochfraß, sondern eine gleichmäßige Korrosion auf der gesamten Oberfläche.

Die Korrosionsraten bei 90 °C wurden für den Stahl TStE355 zu 5  $\mu\text{m/a}$  in NaCl-Lösung und zu 70  $\mu\text{m/a}$  in  $\text{MgCl}_2$ -Lösung bestimmt. Die Korrosionsraten nehmen mit der Temperatur deutlich zu und erreichen bei 170°C Werte von 46  $\mu\text{m/a}$  bzw. 224  $\mu\text{m/a}$  /SMA 99/. Die Korrosionsrate zeigt bei beiden Lösungsarten keine Abhängigkeit vom pH-Wert. Die Korrosionsrate erhöht sich bei Anwesenheit verschiedener chemischer Spezies, wie  $\text{B(OH)}_4^-$ ,  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{H}_2\text{O}_2$  oder  $\text{ClO}^-$ . Sowohl  $\text{H}_2\text{O}_2$  als auch  $\text{ClO}^-$  werden radioaktiv erzeugt, wodurch sich eine Abhängigkeit der Korrosionsrate von der Energiedosisleistung ergeben kann. Bei einer Energiedosisleistung von 50 Gy/h wurde in einer  $\text{MgCl}_2$ -Lösung bei 150 °C eine Erhöhung der Korrosionsrate um 50 % festgestellt, während in einer NaCl-Lösung die Korrosionsrate unverändert blieb.

Bei einer Wandstärke eines Behälters von beispielsweise 5 cm ergeben die gemessenen Korrosionsraten für den Stahl TStE355 im günstigsten Fall eine vollständige Korrosion der Behälterwand nach  $10^4$  a, im ungünstigsten Fall nach ca. 220 a.

Für den Stahl Ti99.8-Pd wurde unabhängig vom Typ der Salzlösung eine Korrosionsrate von  $0,5 \pm 0,3 \mu\text{m/a}$  bestimmt. Eine Untersuchung der Abhängigkeit von der  $\text{H}_2\text{O}_2$ -Konzentration zeigt keine Veränderung der Rate für Konzentrationen unter  $5 \cdot 10^{-4} \text{ mol/l}$ . Bei der gemessenen Korrosionsrate ergibt sich für einen Behälter mit einer Wandstärke von 5 cm eine maximale Behälterlebensdauer von  $10^5$  Jahren. Ti99.8-Pd ist somit ein geeignetes Material für ein Konzept mit korrosionsbeständigen Behältern /SMA 99/. Zusätzliche Fragen und Forschungsbedarf ergeben sich jedoch bei der Konstruktion der Behälter aus einer Kombination von Ti99.8-Pd- und TStE355-Stahl zu dem dann durch galvanische Effekte mitgeprägten Korrosionsverhalten an den Kontaktflächen beider Materialien.

In den Sicherheitsanalysen stellt Verwendung konstanter Mittelwerte für Korrosionsraten, die experimentell in zeitlich begrenzten Messungen ermittelt wurden, eine konservative Näherung dar. Die Experimente mit Messung der zeitabhängigen Bildungsrate von Korrosionswasserstoff /SCO 95/ haben gezeigt, dass die Korrosion in der Realität anfänglich mit relativ hoher Geschwindigkeit abläuft und dann durch Deckschichtenbildung auf den Metalloberflächen und weitere Effekte verlangsamt wird (siehe Abb.1). Da in den Mittelwerten dieser Anfangspeak immer enthalten ist, sind diese im Allgemeinen höher als die Korrosionsgeschwindigkeiten, die für spätere Zeiten der Nachbetriebsphase repräsentativ sind.

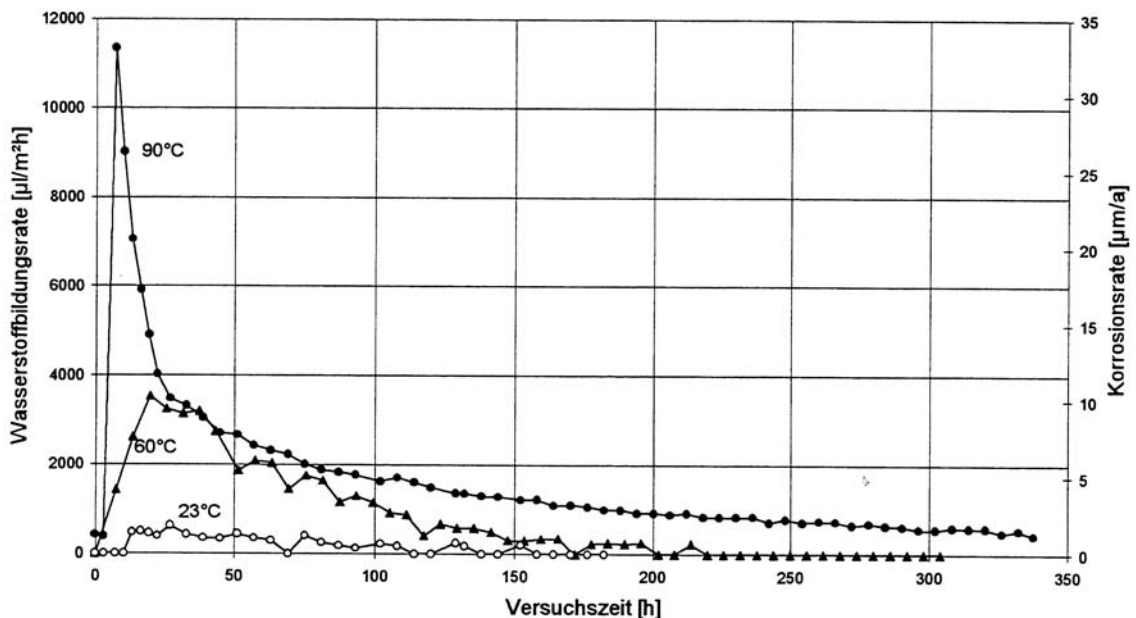


Abb. 1 Gemessene Wasserstoffbildungsrate und daraus abgeleitete Korrosionsraten für den unlegierten Baustahl 1.0038 in gesättigter Steinsalzlösung bei unterschiedlichen Temperaturen (aus /SCO 98 /)

Eine genaue Vorhersage der Lebensdauer eines Endlagerbehälters, die über die einfache Abschätzung auf Grundlage der Korrosionsrate oder des Wasserangebots hinausgeht, erfordert eine detaillierte Modellierung des Korrosionsprozesses. Diese steht zurzeit noch nicht zur Verfügung. Für die langzeitsicherheitsanalytische Betrachtung in der Studie „Systemanalyse Mischkonzept“ wurde daher als konservativer Schätzwert für einen Pollux-Behälter eine mittlere Lebensdauer von 500 Jahren angenommen /BUH 91/.

### **3 Langzeitstabilität der Abfallmatrix**

Bei den hochradioaktiven Abfällen besteht der Beitrag der Abfallmatrix zur Isolation der Radionuklide darin, die Freisetzung der Radionuklide aus der Abfallmatrix zu begrenzen. Eine Freisetzung aus der Abfallmatrix setzt einen Zutritt von Wasser an die Abfallmatrix voraus. Somit kann eine Freisetzung aus der Abfallmatrix erst dann beginnen, wenn der Abfallbehälter bereits ausgefallen ist.

Die verglasten Wiederaufarbeitungsabfälle und die abgebrannten Brennelemente machen den größten Teil der in Deutschland vorkommenden wärmeentwickelnden Abfälle aus. Die chemischen, physikalischen und mechanischen Eigenschaften der Abfallmatrix dieser beiden Abfallarten stehen zum gegenwärtigen Zeitpunkt schon fest, da die Abfälle bereits vorliegen oder eine weitere Behandlung der zukünftig ankommenden Abfälle derzeit nicht vorgesehen ist. Daraus folgt, dass die Langzeitstabilität der Abfallmatrix nicht mehr beeinflusst werden kann und im Sicherheitskonzept für das Endlager als feste Vorgabe berücksichtigt werden muss. In den folgenden beiden Abschnitten werden Untersuchungen und deren Ergebnisse zum Langzeitverhalten von verglasten hochradioaktiven Wiederaufarbeitungsabfällen (HLW) und abgebrannten Brennelementen unter Endlagerbedingungen beschrieben.

#### **3.1 Verglaster HLW**

Bei der Verglasung der bei der Wiederaufarbeitung bestrahlter Brennelemente extrahierten radioaktiven Stoffe werden diese mit einer Glassubstanz zu HLW-Glas verschmolzen. Für die Glasmatrix werden Borsilikat- und Phosphatgläser in Betracht gezogen. Bei dem Glas der deutschen Abfälle, dem sogenannten Cogema-Glas, handelt es sich um ein Borsilikatglas mit einem Siliziumoxidanteil von etwa 50 %. Die Glasmatrix ist relativ homogen und enthält nur wenige Phasenausscheidungen. Diese Phasenausscheidungen enthalten vor allem Edelmetalle.

Bei einem Kontakt von wässrigen Lösungen mit der Glasmatrix setzt eine Korrosion ein. Experimente zur Korrosion der Glasmatrix wurden sowohl mit entionisiertem Wasser /GRA 01/, mit gesättigter NaCl-Lösung, als auch mit Lösungen durchgeführt, wie sie in einem Endlager in einer Salzformation in Betracht kommen /LOI 99/.

Im Verlauf der Korrosion werden die Glasmatrix aufgelöst und neue Feststoffe durch Ausfällung gebildet. Dieser Vorgang wird als inkongruente Glasauflösung bezeichnet. Das Glas wird somit in ein neues Gemisch fester Substanzen umgewandelt. Die durchgeführten Untersuchungen zeigen, dass die Freisetzung der Radionuklide aus der Glasmatrix zu Beginn des Korrosionsvorgangs am größten ist. Die Korrosion führt zu einer Zunahme der Siliziumkonzentration in der Lösung. Nach Erreichen der Sättigungskonzentration für Silizium fällt die Korrosionsrate deutlich auf einen Wert ab, der als „Langzeirate“ bezeichnet wird. Experimentelle Befunde zeigen, dass auch diese Langzeirate mit der Zeit noch abnimmt. Die Zeitspanne der Experimente ist jedoch begrenzt und eine Extrapolation der Daten für große Zeiträume nicht möglich. Daher kann als zeitlich konstante Langzeirate der Glaskorrosion in siliziumgesättigten Lösungen als konservative Annahme nur der niedrigste bisher gemessene Wert herangezogen werden.

Die anfängliche Rate der Glaskorrosion bis zum Erreichen der Siliziumsättigung ist vor allem von der Lösungszusammensetzung, der Temperatur, der Lösungsmenge und der Beschaffenheit der Glasoberfläche abhängig. Eine Vergrößerung der Lösungsmenge und der Glasoberfläche, z. B. durch Risse in der Matrix, führt zu einer Erhöhung der Korrosionsgeschwindigkeit. Die Lösungszusammensetzung und die Temperatur verändern die Sättigungskonzentration von Silizium und somit die insgesamt bis zum Erreichen der Sättigung aufgelöste Glasmenge. Die Sättigungskonzentration wurde für unterschiedliche Lösungstypen und unterschiedliche Temperaturen bestimmt /GRA 97a/. In entionisiertem Wasser nimmt die Menge des aufgelösten Glases von 300 g Glas pro Kubikmeter Lösung bei 90 °C auf 700 g Glas pro Kubikmeter Lösung bei 150 °C zu.

Für die Langzeirate der Korrosion wird ein Wert angenommen, dessen Größe von der Temperatur abhängig ist. Die Temperaturabhängigkeit der Langzeit-Korrosionsrate  $j$  lässt sich mit einem Arrhenius-Gesetz beschreiben:

$$j = j_0 \cdot \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (3)$$

mit

|       |                     |                               |
|-------|---------------------|-------------------------------|
| $j_0$ | Vorfaktor           | 206.809 kg/(m <sup>2</sup> a) |
| $Q$   | Aktivierungsenergie | 61,5 kJ/mol                   |

|     |                         |  |
|-----|-------------------------|--|
| $R$ | allgemeine Gaskonstante | 8,315 m <sup>2</sup> kg/s <sup>2</sup> K mol |
| $T$ | Temperatur              | K  |

Aufgrund der Zeitabhängigkeit der Temperatur ist auch die Langzeitrate der Korrosion zeitabhängig. Bei einer Temperatur von 100°C beträgt der Massenverlust somit etwa 0,5 g/(a m<sup>2</sup>) und bei 200°C etwa 33,5 g/(a m<sup>2</sup>).

Während der Herstellung der Glasmatrix führt die Abkühlung der Glasschmelze zu thermischen Spannungen, die wiederum zur Rissbildung führen und letztlich die Oberfläche der Glasmatrix erhöhen. Der Oberflächenvergrößerung wird durch die Betrachtung einer „effektiven“ Oberfläche Rechnung getragen, die etwa einen Faktor 10 über der geometrischen Größe der Oberfläche liegt /FRE 85/.

Für eine Kokille mit einer Glasmasse von 412 kg und einer effektiven Oberfläche von 17 m<sup>2</sup> ergibt sich mit dem oben angeführten Wert für den Massenverlust bei 200 °C eine Dauer von etwas mehr als 700 Jahren bis zur vollständigen Auflösung.

### 3.2 Abgebrannte Brennelemente

Abgebrannte Brennelemente unterscheiden sich hinsichtlich ihrer Langzeitstabilität unter Endlagerbedingungen deutlich von der Glasmatrix von verglastem HLW. Bei den Brennelementen müssen mehrere Bereiche unterschieden werden. Ein Teil der Spaltprodukte sammelt sich bevorzugt im Spaltgas-Sammelraum der Brennstäbe (dem „Gasplenum“) oder direkt an der Oberfläche der Brennstoffmatrix an. Diese Radionuklide können im Endlager relativ schnell freigesetzt werden. Dieser Anteil der Radionuklide wird auch als „instant release fraction“ bezeichnet. Einen überdurchschnittlich hohen Anteil an der „instant release fraction“ haben Radioisotope von Cs und I. Für Cs wurde dieser Anteil zu 2 bis 4 Gew.% bestimmt /GRA 97b/.

Ein weiterer Teil der Radionuklide befindet sich in den Metallteilen wie Hülsen und Strukturteilen des Brennelements. Diese Radionuklide sind im Allgemeinen Aktivierungsprodukte, die während des Betriebs im Reaktor durch Neutroneneinfang entstehen. Die Radionuklide können im Endlager mit konstanter Rate durch die Metallkorrosion aus den Metallteilen freigesetzt werden. Die Korrosionsrate der Zircaloy- und Zirkonbestandteile der Strukturteile in gesättigter NaCl-Lösung wurde zu 0,1 - 0,4 µm/a

bestimmt. Die Korrosionsraten liegen damit im gleichen Bereich wie die für die korrosionsarmen Behältermaterialien, die im Kapitel 2 beschrieben sind.

Der übrige Teil der Radionuklide ist in der Brennstoffmatrix fixiert und wird erst bei deren Auflösung freigesetzt. Bei den Brennelementen besteht die Abfallmatrix aus Uranoxid. Die Löslichkeit des Urans bestimmt somit auch einen Teil des Freisetzungsprozesses. Sie ist stark abhängig von den geochemischen Bedingungen und daher auch von der Art des Wirtsgesteins. Es gibt zwei verschiedene Arten der Auflösung von Uran: unter oxidierenden Bedingungen ist  $\text{UO}_2$  thermodynamisch instabil und es bilden sich in kurzer Zeit gelöste U(VI)-Phasen sowie sekundäre feste U(VI)-Phasen. Unter reduzierenden Bedingungen bilden sich gelöste U(IV)-Phasen. Wenn keine festen U(IV)-Phasen gebildet werden, wird das  $\text{UO}_2$  thermodynamisch stabil, sobald die Löslichkeitsgrenze erreicht wird.

Die Auflösung der Brennstoffmatrix wurde experimentell untersucht, wobei als Maß für den Auflösungsprozess die Konzentration von Strontium-90 oder von anderen Radionukliden in der Flüssigphase als Indikator verwendet wurde. Die Auflösungsexperimente wurden mit NaCl-Lösung, Q-Lösung und Lösungen aus dem Salzstock Gorleben durchgeführt. Die Raten zeigen eine relativ große Bandbreite von  $10^{-7}$  -  $10^{-5}$  /d. Mit Lösungen aus dem Salzstock Gorleben gemessene Korrosionsraten liegen bei  $2 \cdot 10^{-6}$  /d. Aus diesem Wert berechnet sich eine Zeitspanne bis zur vollständigen Auflösung der Brennstoffmatrix von etwa 1370 Jahren.

## 4 Zeitlicher Verlauf des Aktivitätsinventars und der Wärme- produktion

Der radioaktive Zerfall führt zu einer Abnahme der Aktivität des endgelagerten Abfalls mit der Zeit und ist damit ein bestimmender Prozess bei der Ausbreitung von Radionukliden. Der zeitliche Rückgang der Aktivität von hochradioaktiven Abfällen hängt nur von der Abfallzusammensetzung ab, d. h. von dem Mengenverhältnis der einzelnen Radionuklide. Das Mengenverhältnis kann durch den Abbrand im Reaktor und durch die Wiederaufarbeitung beeinflusst werden. Begrenzungen der spezifischen Aktivität des Abfalls gibt es für die Einlagerung in ein Endlager für hochradioaktiven Abfall derzeit nicht. Aufgrund der sicherheitsanalytischen Rechnungen und des Genehmigungsverfahrens wird in den Endlagerkonzepten üblicherweise eine Obergrenze für die Gesamtaktivität des eingelagerten Inventars festgelegt.

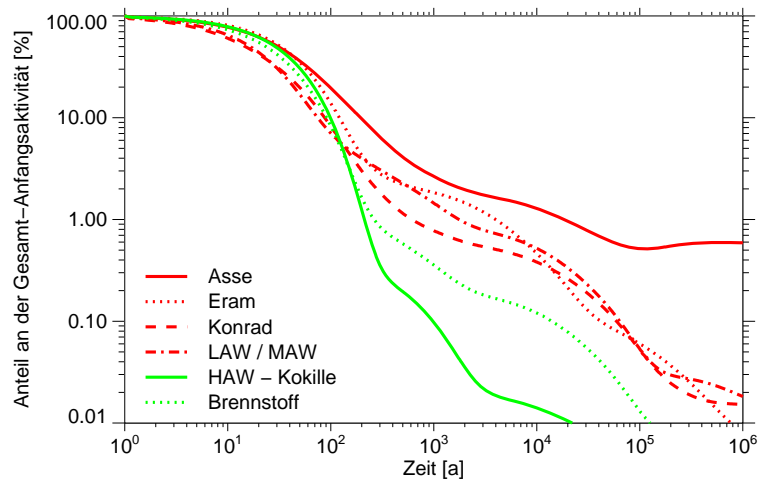


Abb. 2 Abnahme des Aktivitätsinventars in Deutschland vorkommender Abfälle.

Die Zeitverläufe der auf die Anfangsaktivität normierten relativen Aktivität sind für die Inventare verschiedener Standorte in Deutschland und typische deutsche Abfälle in Abb. 2 dargestellt /RÜB 04/. Die Kurve für die HLW-Kokille bezieht sich auf einen Abbrand von  $40 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  direkt nach der Wiederaufarbeitung, sieben Jahre nach der Entnahme aus dem Reaktor und die Kurve für die abgebrannten Leichtwasserreaktor (LWR)-Brennelemente auf einen Abbrand von  $45 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ , direkt nach der Entnahme aus dem Reaktor.

Die Kurven für die einzelnen Abfälle bzw. -inventare zeigen einen ähnlichen Verlauf. Typischerweise geht die Aktivität radioaktiver Abfälle innerhalb von tausend Jahren auf



1 % und innerhalb von einer Million Jahren auf 0,1 ‰ bis 1 ‰ der Anfangsaktivität zurück. Dieses gilt unabhängig von der Abfallart sowohl für die in Deutschland anfallenden schwachradioaktiven als auch die hochradioaktiven Abfälle.

Die Tatsache, dass sich die Verläufe wenig voneinander unterscheiden, ist insofern bemerkenswert, als es sich um sehr unterschiedliche Abfallarten handelt. So reicht der Aktivitätsbereich der dargestellten Abfälle von den schwachradioaktiven Abfällen im ERA Morsleben mit einer spezifischen Aktivität von ca.  $4.220 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$  bis hin zu hochradioaktiven Abfällen wie der HLW-Kokille mit  $3,7\cdot 10^7 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ . Dieses ähnliche Verhalten ist darin begründet, dass alle hier dargestellten Abfälle vergleichbare Anteile an den langlebigen Radionukliden Ni-59 (Halbwertszeit 75.000 Jahre) oder Tc-99 (Halbwertszeit 215.000 Jahre) haben.

Mit der Aktivität der Abfälle geht auch deren Wärmeleistung zurück. Die Wärmeproduktion der Abfälle führt nach deren Einlagerung zu einer Aufheizung des Verfüllmaterials um die Behälter und des umgebenden Wirtsgesteins. Je nach Endlagerkonzept und Wirtsgestein werden maximale Temperaturen festgelegt, die nicht überschritten werden dürfen. Die Grenztemperatur ergibt sich aus den mineralogischen Eigenschaften des Wirtsgesteins bzw. des Verfüllmaterials derart, dass bei deren Überschreiten eine Schädigung des Wirtsgesteins oder der Verfüllung auftreten würde. Im Allgemeinen kann kein fester Schwellenwert angegeben werden, ab dem solche schädlichen Prozesse einsetzen. Üblicherweise wird die Forderung gestellt, dass im Steinsalz die Temperatur im Wirtsgestein im Kontaktbereich zu den Abfällen die Temperatur von  $200 \text{ }^\circ\text{C}$  und in Tonstein  $100 \text{ }^\circ\text{C}$  nicht überschreiten darf.

Neben der Aufheizung des Wirtsgesteins verursacht die Temperaturerhöhung weitere Effekte, die bei der Auslegung des Endlagers und in der Langzeitsicherheitsanalyse berücksichtigt werden müssen. So erhöht sich die Geschwindigkeit temperaturabhängiger Prozesse, wie z. B. der Diffusion, der Versatzkompaktion oder der Rissausheilung; es können ferner konvektive Transportphänomene auftreten und es vergrößert sich die Konvergenzrate von Hohlräumen im Salzgestein.

Die im Wirtsgestein auftretende maximale Temperatur kann durch drei Parameter beeinflusst werden: die Zwischenlagerzeit, den Behälterabstand in den Strecken bzw. Bohrlöchern und durch den Abstand der Strecken und Bohrlöcher. Aus den Anforderungen für die Maximaltemperatur ergibt sich somit zum einen eine Anforderung an die maximale Wärmeproduktion des Abfalls, die durch eine längere Zwischenlagerung ver-

ringert werden kann. Zum anderen ergeben sich Anforderungen an die Konzeption der Einlagerungsbereiche im Endlagerbergwerk. Diese Anforderungen müssen standortspezifisch mit Hilfe von Temperaturberechnungen überprüft werden. Neben der Wärmeleistung des Abfalls werden für diese Berechnungen standortspezifische Daten zur Wärmeleitfähigkeit des Wirtsgesteins und der Verfüllmaterialien sowie für den geothermischen Gradienten am Standort benötigt.

Abb. 3 stellt den zeitlichen Verlauf der Wärmeleistung von verglastem HLW aus der Wiederaufarbeitung von Brennelementen mit einem Abbrand von  $40 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  und den Verlauf für abgebrannte Druckwasser-Brennelemente mit einem Abbrand von  $45 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$ , bezogen auf  $1 \text{ t}_{\text{SM}}$ , einander gegenüber /KFK 89/. Entsprechend der geringfügig schnelleren Abnahme der Aktivität des verglasten HLW nimmt auch dessen Wärmeleistung schneller ab als die Wärmeleistung der Brennelemente.

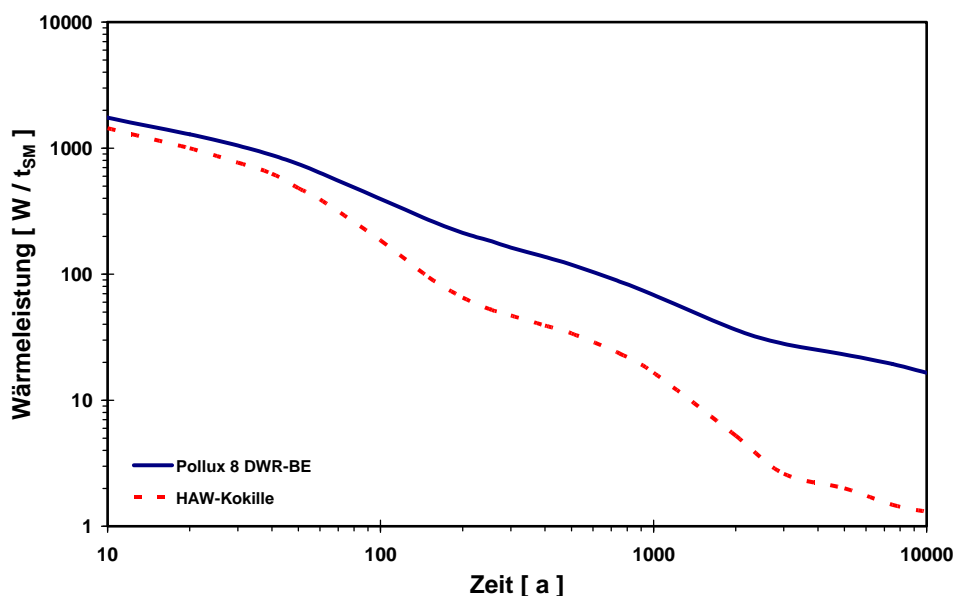


Abb. 3 Zeitliche Entwicklung der Wärmeleistung verschiedener Endlagerbehälter (Daten aus /KFK 89/)

Der zeitliche Verlauf der Temperaturerhöhung in der Wirtsgesteinsformation aufgrund des Wärmeeintrags in ein Bohrloch durch die dort eingelagerten Abfälle ist beispielhaft in Abb. 4 für ein Endlager im Salz dargestellt. Die Temperaturkurven sind für vier verschiedene Positionen innerhalb des Bohrlochs aufgetragen. Die Berechnungen zeigen, dass die Temperatur des Wirtsgesteins an der heißesten Stelle (Nr. 2) in den ersten 100 Jahren auf fast  $200 \text{ °C}$  ansteigt und dann in den folgenden 1 000 Jahren wieder

auf einen Wert von etwa 20 °C oberhalb der ursprünglichen Gebirgstemperatur zurückgeht /STO 88/.

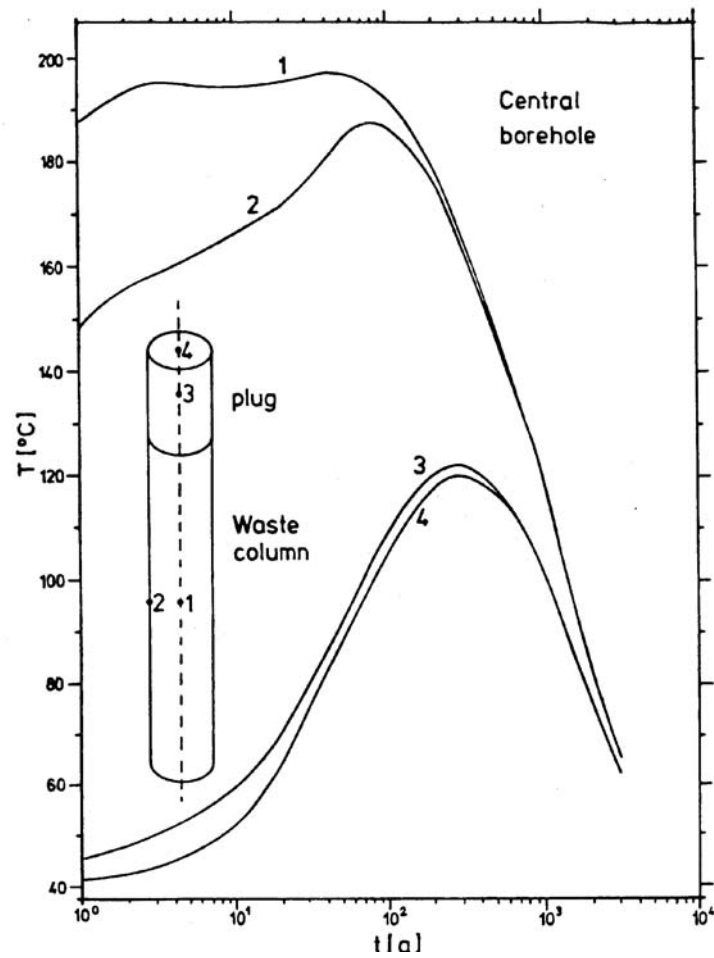


Abb. 4 Zeitliche Entwicklung der Temperatur an unterschiedlichen Stellen eines verschlossenen Bohrlochs in einem HLW-Einlagerungsfeld /STO 88/.

## 5 Literatur

(Hinweis: dieses Literaturverzeichnis enthält alle in diesem Anhang zitierte Literatur)

- /AND 05/ Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs (ANDRA): Dossier 2005 Argile. Tome Safety evaluation of a geological repository. – Paris, 2005.
- /BUH 91/ Buhmann, D.; Nies, A.; Storck, R.: Analyse der Langzeitsicherheit von Endlagerkonzepten für wärmeerzeugende radioaktive Abfälle. – GSF - Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, GSF-27/91, Neuherberg, 1991.
- /FRE 85/ Freude, E.: Quellterm für die Mobilisierung von Radionukliden aus verglastem HAW. – Projekt Sicherheitsstudien Entsorgung PSE, Fachband 10, Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung GmbH, Berlin, 1985.
- /GRA 01/ Grambow, B.; Müller, R.: First-order dissolution rate law and the role of surface layers in glass performance assessment. – Journal of Nuclear Materials, Vol. 298, S. 112-124, 2001.
- /GRA 97a/ Grambow, B.: Vorläufiger Quellterm Glas - Beschreibung der kinetischen Barrierenwirkung von HAW-Glas im integrierten Nahfeldmodell. – Forschungszentrum Karlsruhe, Institut für Nukleare Entsorgungstechnik (INE), FZK-INE 015/97, Karlsruhe, 1997.
- /GRA 97b/ Grambow, B.; Loida, A.; Geckeis, H.; Gago, J.; Casas, I.; de Pablo, J.; Giménez, J.; Torrero, M.E.: Chemical reaction of fabricated and high burn-up spent UO<sub>2</sub> fuel with saline brines. – Office for Official Publications in the European Communities, EUR 17111, Luxembourg, 1997.
- /LOI 99/ Loida, A.; Luckscheiter, B.; Kienzler, B.: Erstellung eines integrierten Nahfeldmodells von Gebinden hochaktiver Abfälle im Salzstock Gorleben: geochemisch fundierter Quellterm für HAW-Glas, abgebrannte Brennelemente und Zement. – Forschungszentrum Karlsruhe, Institut für Nukleare Entsorgungstechnik (INE), FZK-INE 012/99, Karlsruhe, 1999.

- /NAG 02/ National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste (NAGRA): Project Opalinus clay - Safety Report - Demonstration of disposal feasibility for spent fuel, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level waste (Entsorgungsnachweis). – NAGRA Technical Report 02-05, Wettingen, 2002.
- /OND 01/ ONDRAF/NIRAS: SAFIR 2. Safety Assessment and Feasibility Interim Report 2. – NIROND 2001-6E, Brüssel, 2001.
- /PLA 94/ Platts, N. u. a.: Anaerobic oxidation of carbon steel in granitic groundwaters: A review of the relevant literature. – Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB), Technical Report 94-01, Stockholm, 1994.
- /RÜB 04a/ Rübél, A.; Noseck, U; Müller-Lyda, I.; Kröhn, K.-P.; Storck, R.: Konzeptioneller Umgang mit Gasen im Endlager. – Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-205, Köln, 2004.
- /RÜB 04b/ Rübél, A.; Müller-Lyda, I.; Storck, R.: Die Klassifizierung radioaktiver Abfälle hinsichtlich der Endlagerung. – Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit (GRS) mbH; GRS-203, Köln; 2004.
- /SCO 98/ Schon, Th.; Heidendael, M.: Wasserstoffbildung durch Metallkorrosion. – Forschungszentrum Jülich, JÜL-3495, Jülich, 1998.
- /SMA 95/ Smailos, E.; Gago, J.A.; Azkarate, I.; Fieh, B.: Corrosion Studies on Selected Packaging Materials for Disposal of Heat-Generating Radioactive Wastes in Rock-Salt Formations. – Forschungszentrum Karlsruhe, FZKA 5587, Karlsruhe, 1995.
- /SMA 99/ Smailos, E.; Martínez-Esparanza, A.; Kursten, B.; Marx, G.; Azkarate, I.: Corrosion evaluation of metallic materials for long-lived HLW / spent fuel disposal containers. – Office for Official Publications in the European Communities, EUR 19112, Luxembourg, 1999.

- /STO 88/ Storck, R.; Aschenbach, J.; Hirsekorn, R.-P.; Nies, A.; Stelte, N.: Performance Assessment of Geological Isolation Systems for Radioactive Waste (PAGIS): Disposal in Salt Formations. - Office for Official Publications in the European Communities, EUR 11778 EN / GSF - Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH, GSF-23/88, Luxembourg / Neuherberg, 1988.
- /VIE 99/ Vieno, T.; Norman, H.: Safety Assessment of Spent Fuel Disposal in Hästholmen, Kivetty, Olkiluoto and Romuvaara. - TILA-99, POSIVA 99-07, 253 p., Helsinki, 1999.
- /WER 98/ Werme, L.: Design premises for canister for spent nuclear fuel. – Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co., SKB TR 98-08, Stockholm, 1998.

## 6 Weiterführende Literatur

(Hinweis: Dieses Verzeichnis enthält als Ergänzung wichtige weiterführende Literatur zum Thema dieses Anhangs, die in diesem Anhang nicht explizit zitiert wurde. Zitierte Literatur findet sich im "Literaturverzeichnis")

Grambow, B.; Loida, A.; Martínez-Esparza, A.; Díaz-Arocas, P.; de Pablo, J.; Paul, J.-L.; Marx, G.; Glatz, J.P.; Lemmens, K.; Ollila, K.; Christensen, H.: Source term for performance assessment of spent fuel as a waste form. - Office for Official Publications in the European Communities, EUR 19140, Luxembourg, 2000.

Hauser, W.; Fiehn, B.; Drobnik, S.; Wieme, D.: Korrosionsverhalten lackbeschichteter Normalstahlbehälter bei der Zwischen- und Endlagerung schwachradioaktiver Abfälle. - Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK 4300, Karlsruhe, 1988.

Kursten, B. u. a.: Corrosion Evaluation of Metallic Materials for Long-Lived HLW/Spent Fuel Disposal Containers: Review of 15-20 Years of Research. - Proc. Int. Conf EURADWASTE04, Luxemburg, 29. -31. März 2004  
[ftp://ftp.cordis.europa.eu/pub/fp6-euratom/docs/euradwaste04pro\\_6-7-kursten\\_en.pdf](ftp://ftp.cordis.europa.eu/pub/fp6-euratom/docs/euradwaste04pro_6-7-kursten_en.pdf)

International Atomic Energy Agency (IAEA): Spent Fuel and High Level Waste: Chemical Durability and Performance under simulated Repository Conditions. Results of a Coordinated Research Project 1998 - 2004. - IAEA-Tecdoc-1563, Wien, 2007.

Oversby, V.M. (ed): Rates and mechanisms of radioactive release and retention inside a waste disposal canister (In Can Processes). Final Report. - European Commission. Contract No. FIKW-CT-2000-00019 ISBN-91-974708-5-6, October 31, 2003. Aufgerufen am 23.09.2008  
<http://www.skb.se/upload/publications/pdf/EuropeanCommissionU.pdf>

Poinsot, C. u. a.: Development of Radionuclides Source Term for Spent Fuel in Geological Disposal. Major Outcomes of the European Projects « In Can Processes » and « Spent Fuel Stability ». - Proc. Int. Conf EURADWASTE04, Luxemburg, 29. -31. März 2004. Aufgerufen am 23.09.2008

[ftp://ftp.cordis.europa.eu/pub/fp6-euratom/docs/euradwaste04pro\\_6-7-cavedon\\_en.pdf](ftp://ftp.cordis.europa.eu/pub/fp6-euratom/docs/euradwaste04pro_6-7-cavedon_en.pdf)

Poinsot, C. u. a.: Final report of the European Project Spent Fuel Stability under repository conditions. - Contract FIKW-CT-2001-00192 SFS, Report CEA-R-6093, CEA, 2005.

Projektgruppe Andere Entsorgungstechniken, Kernforschungszentrum Karlsruhe (KfK) GmbH: Systemanalyse Mischkonzept, Technischer Anhang 9, Datensammlung. Kernforschungszentrum Karlsruhe, KWA Nr. 2190 A1, Karlsruhe, 1989.

Ribet, I. u. a.: Long-term behaviour of glass: Improving the glass source term and substantiating the basic hypotheses (GLASTAB). Final Report. - Contract No. FIKW-CT-2000-00007. European Commission, (2007). Aufgerufen am 23.09.2008

[ftp://ftp.cordis.europa.eu/pub/fp5-euratom/docs/glastab\\_projrep\\_en.pdf](ftp://ftp.cordis.europa.eu/pub/fp5-euratom/docs/glastab_projrep_en.pdf)

Ribet, I. u. a.: GLASTAB, CORALUS-II, GLAMOR: Long-Term Behaviour Studies of Vitrified High-Level Waste. - Proc. Int. Conf EURADWASTE04, Luxemburg, 29. -31. März 2004. Aufgerufen am 22.09.2008

[ftp://ftp.cordis.europa.eu/pub/fp6-euratom/docs/euradwaste04pro\\_6-7-cavedon\\_en.pdf](ftp://ftp.cordis.europa.eu/pub/fp6-euratom/docs/euradwaste04pro_6-7-cavedon_en.pdf)

Smailos, E.; Fiehn, B.: Korrosionsuntersuchungen an der Werkstoffkombination des POLLUX-Behälters zur Direkten Endlagerung abgebrannter Brennelemente in Steinsalzformationen. - Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK 4552, Karlsruhe, 1989.



Smailos, E. u. a.: Long-Term Performance of Candidate Materials for HLW/Spent Fuel Disposal Containers. - Contract n°: FIKW-CT-2000-00004. Final Report.  
Aufgerufen am 22.09.2008  
[ftp://ftp.cordis.europa.eu/pub/fp5-euratom/docs/container-corrosion\\_projrep\\_en.pdf](ftp://ftp.cordis.europa.eu/pub/fp5-euratom/docs/container-corrosion_projrep_en.pdf)

Smart, N.R.; Blackwood, D.J.; Werme, L. The anaerobic Corrosion of carbon steel and cast iron in artificial groundwaters. - SKB Technical Report, TR-01-22, Stockholm, July 2001.