

## **EMIL**

**Forschung und  
Entwicklung zu  
Methoden und  
Instrumenten des  
Langzeitsicherheits-  
nachweises**

## EMIL

### Forschung und Entwicklung zu Methoden und Instrumenten des Langzeitsicherheits- nachweises

Guido Bracke  
Thomas Beuth  
Peter-Jürgen Larue  
Helge Moog  
Holger Seher  
Torben Weyand

Oktober 2016

#### **Anmerkung:**

Das diesem Bericht zugrunde liegende Forschungsvorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit (BMU) unter dem Kennzeichen R3614R03200 durchgeführt.

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt beim Auftragnehmer.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers übereinstimmen.

**Deskriptoren**

PHREEQC, Radionuklidspeziation, Reaktive Transportmodellierung, Szenarientwicklung, TOUGHREACT

## Kurzfassung

Mit Forschungs- und Entwicklungsvorhaben entwickelt die Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH den Stand von Wissenschaft und Technik zur Führung und Bewertung von Langzeitsicherheitsnachweisen für die Endlagerung radioaktiver Abfälle weiter. Im Vorhaben „Forschung und Entwicklung zu Methoden und Instrumenten des Langzeitsicherheitsnachweises (EMIL)“, Förderkennzeichen 3614R03200, wurden folgende Schwerpunkte bearbeitet:

1. die Weiterentwicklung der Simulation thermohydraulischer, geochemischer oder geomechanischer Prozesse im Endlagersystem mit einschlusswirksamen Gebirgsbereich und der umgebenden Geosphäre (AP 1),
2. die Untersuchung zum Radionuklidtransportverhalten in Süß-/Salzwassersystemen unter Berücksichtigung von Dichte- und Viskositätsunterschieden (AP 2) sowie
3. die Weiterentwicklung des Instrumentariums zur Durchführung von Sicherheitsanalysen im Arbeitskreis „Szenarientwicklung“ (AP 3).

Die Ergebnisse sind:

1. Thermodynamische Daten für Eisenphasen wurden für geochemische Transportmodellierungen entwickelt und sollen in die Datenbank THEREDA aufgenommen werden. Die Konvertierung der Datensätze aus THEREDA für eine Verwendung mit TOUGHREACT wurde programmtechnisch gelöst und qualitätsgesichert. Eine Parametereingabemaske in Excel wurde erstellt. Die rechnerische Nachmodellierung eines Diffusionsexperimentes konnte mittels TOUGHREACT erfolgreich erreicht werden. Die Arbeiten zur Qualitätssicherung für eine geochemische Transportmodellierung mit TOUGHREACT sind erfolgt.

Ein erster Ansatz zur Modellierung möglicher Veränderungen der Radionuklidspesiation in Festphasen während der Zwischen- und Endlagerung wurde mit Parametervariationen modelltechnisch entwickelt. Der radioaktive Zerfall ging in die Berechnung der Radionuklidspesiation der Festphase ein. Eine Weiterentwicklung bleibt erforderlich, da codespezifische Annahmen getroffen werden mussten.

2. Die Weiterentwicklungen des GRS Instrumentariums am Programmcode SPRING, die für die Untersuchung des Radionuklidtransportverhalten in Süß-/Salzwassersystemen unter Berücksichtigung von Dichte- und Viskositäts-

unterschieden erfolgen sollten, wurden umgesetzt bzw. implementiert. Die Programmänderungen wurden einer Verifizierung erfolgreich unterzogen.

Die Testrechnungen an einem selbst erstellten repräsentativen Vertikalmodell (Prinzipmodell) waren erfolgreich. Die Eignung der implementierten Modellansätze ist somit gegeben.

3. Der Arbeitskreis „Szenarientwicklung“ hat einen Beitrag mit dem Titel „Position des Arbeitskreises zum Thema: Anforderungen an die Methode zur Ableitung von Szenarien für ein Endlager für radioaktive Abfälle“ zur Veröffentlichung in der Fachzeitschrift „atw – Internationale Zeitschrift für Kernenergie“ eingereicht.

Mit der Weiterentwicklung und Qualifizierung ihres Instrumentariums hat die GRS ihre Kompetenz erhalten, um Langzeitsicherheitsnachweise auf dem Stand von Wissenschaft und Technik zu beurteilen und nachvollziehen zu können.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung .....</b>	<b>1</b>
1.1	Motivation und Aufgabenstellung .....	1
1.1.1	AP 1 Geochemie und reaktive Transportprozesse .....	2
1.1.2	AP 2 Radionuklidtransportverhalten in Süß- und Salzwassersystemen unter Berücksichtigung von Dichte- und Viskositätsunterschieden.....	3
1.1.3	AP 3 Arbeitskreis „Szenariientwicklung“ .....	4
1.2	Veröffentlichungen und Publikationen aus dem Vorhaben .....	5
1.3	Fachtagungen.....	8
<b>2</b>	<b>Ergebnisse .....</b>	<b>9</b>
2.1	Geochemie und reaktive Transportprozesse.....	9
2.1.1	Thermodynamische Daten für eisenhaltige Phasen in hochsalinaren, wässrigen Systemen.....	9
2.1.2	Konvertierung der thermodynamischen Daten von THEREDA für TOUGHREACT .....	11
2.1.3	Modellierung eines Gegendiffusionsexperimentes zur Bildung sekundärer Eisenphasen aus wässrigen Lösungen .....	12
2.1.4	Modellierung zur Speziation der Radionuklide in Abfallbinden für hoch radioaktive Abfälle.....	14
2.1.5	Code-Entwicklungsarbeiten zu TOUGHREACT .....	15
2.1.6	Automatisierte Erstellung von Eingabedateien für TOUGHREACT .....	16
2.2	Untersuchungen zum Transportverhalten von Schadstoffen in Süß/Salzwassersystemen unter Berücksichtigung von Dichte- und Viskositätsunterschieden .....	17
2.3	Szenariientwicklung .....	19
<b>3</b>	<b>Ausblick .....</b>	<b>21</b>
3.1	Geochemie und reaktive Transportprozesse.....	21
3.1.1	Thermodynamische Daten für eisenhaltige Phasen .....	21
3.1.2	Modellierung reaktiver Transportprozesse .....	22

3.1.3	Speziation von Radionukliden.....	23
3.1.4	Codeentwicklung .....	24
3.2	Transportverhalten von Schadstoffen in Süß/Salzwassersystemen .....	24
3.3	Szenarienentwicklung .....	25
	<b>Literaturverzeichnis.....</b>	<b>27</b>
	<b>Abbildungsverzeichnis.....</b>	<b>35</b>
<b>A</b>	<b>Anhang:</b>	
	<b>Beitrag zur atw – Internationale Zeitschrift für Kernenergie .....</b>	<b>37</b>

# 1 Einleitung

Das Vorhaben „Forschung und Entwicklung zu Methoden und Instrumenten des Langzeitsicherheitsnachweises (EMIL)“ (Förderkennzeichen 3614R03200, Laufzeit Juli 2014 bis Oktober 2016) beschäftigte sich mit spezifischen Aspekten der Langzeitsicherheitsanalyse, um den Stand von Wissenschaft und Technik zu technischen Fragen der Endlagerung in tiefen geologischen Formationen weiter zu entwickeln. Die Schwerpunkte der Arbeitspakete (AP) des Vorhabens EMIL waren

- die Geochemie und reaktive Transportprozesse (Kap. 2.1),
- das Radionuklidtransportverhalten in Süß- und Salzwassersystemen unter Berücksichtigung von Dichte- und Viskositätsunterschieden (Kap. 2.2) und
- die Fortführung des Arbeitskreises Szenarienentwicklung (Kap. 2.3).

Zuwendungsgeber des Vorhabens EMIL ist das Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB).

Die Motivation sowie Aufgabenstellung der drei Arbeitspakete beschreibt Kap. 1.1. Zu den Arbeitspaketen wurden Fachberichte und weitere Veröffentlichungen erstellt (siehe Literaturzitate in Kap. 1.2) sowie Konferenzen und Workshops besucht (Kap. 1.3).

Die erzielten Ergebnisse sind in Kap. 2 nach den Arbeitspaketen dargestellt.

Zur Verwendung der Ergebnisse wird abschließend in Kap. 3 ein Ausblick gegeben und es werden offene Forschungs- und Entwicklungsarbeiten genannt.

## 1.1 Motivation und Aufgabenstellung

Alle Arten von radioaktiven Abfällen sollen in tiefen geologischen Formationen in Deutschland endgelagert werden, um die darin enthaltenen radio- und chemotoxischen Stoffe über lange Zeiträume vom Schutzgut (Biosphäre) zu isolieren /KOM 16/. Die Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung für wärmeentwickelnde radioaktive Abfälle /BMU 10/ fordern Sicherheitsnachweise für verschiedene Betriebszustände eines Endlagers, insbesondere für die Nachbetriebsphase. Die Untersuchung der Langzeitsicherheit soll im Sicherheitsnachweis für die Nachbetriebsphase über einen Zeitraum

von bis zu einer Million Jahre erfolgen. Der Nachweis wird in der Regel mittels numerischer Analysen der ablaufenden physikalischen und chemischen Prozesse geführt, da dieser Zeitraum einer experimentellen Untersuchung nicht zugänglich ist. Es wird dabei eine möglichst realitätsnahe Abbildung der Prozesse in Modellen angestrebt.

### **1.1.1 AP 1 Geochemie und reaktive Transportprozesse Eisenkorrosion**

In einem Endlager für hoch radioaktive Abfälle treten bei Kontakt zwischen Endlagerbehältern und Feuchtigkeit (Wasser) Korrosionsprozesse auf. Diese Korrosion des Behältermaterials setzt unter anaeroben Bedingungen Eisen-Ionen und Wasserstoff frei und findet daher in allen numerischen Modellierungen Berücksichtigung. Die gelösten eisenhaltigen Spezies können je nach den sich einstellenden geochemischen Bedingungen wieder als Festphase ausfallen. Diese Festphasen können Radionuklide in das Kristallgitter einbauen oder adsorbieren. Dadurch kann ein denkbarer Transport der Radionuklide verlangsamt und letztlich die berechnete potentielle Strahlenexposition in der Biosphäre verringert sein. Daher sollte im Vorhaben EMIL die Bildung von eisenhaltigen Festphasen mithilfe von geochemischen Modellrechnungen für endlagerrelevante geochemische Bedingungen näher untersucht werden.

Codes aus der TOUGH-Familie werden zur Analyse solcher Fragestellungen der Langzeitsicherheit von Endlagern für hoch radioaktive Abfälle eingesetzt. Einzelne Codes, wie z. B. TOUGH2-GRS, werden dazu kontinuierlich mit Modulen zur Abbildung endlagerrelevanter Prozesse weiterentwickelt (z. B. /KOC 16a/, /LAR 13/, /NAV 16/). TOUGH2-GRS kann jedoch geochemische Prozesse nicht modellieren. Als geochemischer Code aus der TOUGH-Familie steht TOUGHREACT zur Verfügung.

Für die geochemischen Modellrechnungen mit eisenhaltigen Phasen war daher die Entwicklung einer geeigneten thermodynamischen Datenbasis Voraussetzung (Kap. 2.1.1), sowie deren Konvertierung für den gewählten und geeigneten Transportcode TOUGHREACT (Kap. 2.1.2) und die abschließende numerische Modellierung eines Experimentes zur Bildung von Eisenphasen (Kap. 2.1.3) zur Demonstration der Anwendbarkeit.

## **Radionuklidspeziation**

Während der verlängerten Zwischenlagerung als auch bei einer späteren Endlagerung von hoch radioaktiven Abfällen sind durch den radioaktiven Zerfall und durch sich zeitlich ändernde Randbedingungen langfristig Veränderungen in der chemischen Zusammensetzung der Abfallbestandteile möglich. Dies betrifft unter anderem die Speziation der Radionuklide. Experimentelle Untersuchungen zur Speziation von Radionukliden in einem beladenen Behälter mit hoch radioaktiven Abfällen nach einer Zwischenlagerung sind bisher nicht oder nur in sehr geringem Umfang vorhanden.

Daher sollte auf Basis einer Literaturrecherche nationaler und internationaler Forschungsarbeiten und eigenen Modellierungen die Speziation von Radionukliden und deren mögliche Veränderung während einer Zwischenlagerung (z. B. in CASTOR-Behältern) und während der Endlagerung studiert werden. Als Radionuklidinventar konnte auf das bereits in der VSG erarbeitete Radionuklidinventar /LAR 13/ als Grundlage für die geochemischen Rechnungen zur Modellierung der Veränderungen (z. B. infolge des radioaktiven Zerfalls oder des Redoxmilieus) in den Abfallgebinden zurückgegriffen werden.

Auf Basis dieser Arbeiten kann ein Quellterm, der eine Freisetzung von Radionukliden bei Versagen von Behältern beschreibt, besser abgeleitet werden.

## **Code-Entwicklungsarbeiten**

Numerische Simulationen sind ein wichtiger Bestandteil von Langzeitsicherheitsuntersuchungen für Endlager von hoch radioaktiven Abfällen. Die zur Analyse verwendeten Programmcodes müssen hohe Qualitätsanforderungen erfüllen, um die Plausibilität von Ergebnissen für Sicherheitsuntersuchungen für eine Bewertung zu gewährleisten. Daher sollte eine Qualitätssicherung eines Programmcodes erfolgen und Änderungen im Quellcode nachvollziehbar dokumentiert werden.

### **1.1.2 AP 2 Radionuklidtransportverhalten in Süß- und Salzwassersystemen unter Berücksichtigung von Dichte- und Viskositätsunterschieden**

Eine Dichteschichtung in Süß-/Salzwassersystemen wird aufgrund zunehmender Salinität mit der Teufe in Tiefenwässern als ein qualitatives Argument für geringe Transportgeschwindigkeiten bzw. für diffusionsdominante Prozesse von aus einem Endlager

in die Geosphäre freigesetzten Radionuklide in Sicherheitsnachweisen verwendet. Mögliche dann ausschließlich noch diffusiv stattfindende Radionuklidtransporte sind gekennzeichnet durch kleine Transportgeschwindigkeiten und das Vorkommen von dichtegetriebenen Konvektionszellen, die den Transport verzögern können /VOG 96/.

Ein quantitativer Nachweis, der dieses Argument untermauert, wurde bisher nicht geführt, da die derzeitigen in bisherigen Genehmigungsverfahren angewendeten Rechenprogramme diese Prozesse in komplexen Modellgeometrien nicht oder nur mit inakzeptabel hohen Rechenzeiten auflösen können.

Deshalb sollte untersucht werden, inwieweit die in der GRS für Langzeitsicherheitsanalysen entwickelten Modelle und Codes (SPRING bzw. TOUGH2) zur gutachterlichen Bewertung von dichteabhängigen Strömungsvorgängen auf dem aktuellen Stand nach Wissenschaft und Technik anzupassen bzw. weiterzuentwickeln sind. Hierzu sollten zunächst die im Zusammenhang mit den Langzeitsicherheitsanalysen entwickelten Modellansätze hinsichtlich dichteabhängiger Strömungsvorgänge erfasst werden. Anschließend sollte ein Katalog von Minimalanforderungen für die Modellierung dichteabhängiger Strömungs- und Transportvorgänge in Sicherheitsanalysen abgeleitet werden. Auf Basis dieser Recherche und Auswertungen sollte ein geeigneter Code ausgewählt und ein Modell entwickelt werden. Hierzu gehören auch die Durchführung von Modellrechnungen an Prinzipmodellen und die Validierung von Experimenten bzw. natürlichen Analoga.

### **1.1.3 AP 3 Arbeitskreis „Szenarientwicklung“**

Nach wie vor besteht auf dem Themenfeld der Szenarientwicklung weiterer Verständigungs- und Harmonisierungsbedarf. Dies betrifft u. a. die vom Arbeitskreis „Szenarientwicklung“ (AK) identifizierten Aspekte „Definitionen und Terminologie“, „Rolle von Sicherheitsfunktionen bei der Szenarientwicklung“, „Umgang mit Szenariensicherheiten“, „Umgang mit Eintrittshäufigkeiten vor dem Hintergrund langer Zeiträume“ und „Festlegung von repräsentativen bzw. abdeckenden Szenarien“. Der AK behandelt insbesondere das methodische Vorgehen im Rahmen aller der mit der Szenarientwicklung verbundenen Themengebiete wie z. B. FEP-Datenbasis, Ableitung von Szenarien, Umsetzung der Szenarien in Rechenfälle und das unbeabsichtigte menschliche Eindringen in ein Endlager. Bezüglich der Vorgehensweise bei der Szenarientwicklung

lung und der Umsetzung von Szenarien in Rechenfälle gibt es keinen vorgeschriebenen bzw. allgemeingültigen methodischen Ansatz.

Im Arbeitspaket sollte daher durch den AK ein Verständnis zu spezifischen Aspekten bzw. Teilgebieten der Szenarientwicklung erarbeitet werden, die bisher noch nicht vorliegen. Hierzu sollte insbesondere die Erarbeitung einer konzeptionellen und methodischen Herangehensweise zur Klärung bzw. Behandlung von fachspezifischen Fragestellungen (z. B. Bestimmung eines repräsentativen Szenariums) gehören. Diskutiert werden sollten Ansätze zur systematischen Ableitung von Rechenfällen aus entwickelten Szenarien und die Vorgehensweise zur Ermittlung von abdeckenden Rechenfällen. Ferner sollten Sicherheitsfunktionen als Grundlage für einen diversitären Ansatz zur Ableitung von Szenarien und ein Verfahren zur Gruppierung von Szenarien entwickelt werden.

## **1.2 Veröffentlichungen und Publikationen aus dem Vorhaben**

### **GRS-Berichte im Entwurf (nach Veröffentlichung verfügbar unter [www.grs.de](http://www.grs.de))**

- /LAR 16/ Larue, J., Mayer, K.-M.: Untersuchungen zum Transportverhalten von Schadstoffen in Süß-/Salzwassersystemen unter Berücksichtigung von Dichteunterschieden, GRS-436, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, ISBN 978-3-946607-18-2: Köln, 2016.
- /MOO 16/ Moog, H.C.: Thermodynamic database for iron in high-saline, aqueous systems. Entwurf. Fertigstellung geplant in 2017, GRS-438, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, ISBN 978-3-946607-20-5: Braunschweig, 2017.
- /SEH 16c/ Seher, H., Navarro, M.: SITA, version 0.1.a test. A simulation and code testing assistant for TOUGH2 and MARNIE, GRS-400, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, ISBN 978-3-944161-81-5: Köln, 2016.
- /SEH 16d/ Seher, H., Weyand, T., Bracke, G.: Anwendung thermodynamischer Daten aus THEREDA mit TOUGHREACT, GRS-435, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, ISBN 978-3-946607-17-5: Köln, 2016.

/WEY 16b/ Weyand, T., Bracke, G., Seher, H.: Modellierung zur Speziation von Radionukliden in Abfallgebinden mit hoch radioaktiven Abfällen, GRS-427, ISBN 978-3-946607-09-0, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Köln, 2016.

### **Konferenzbeiträge (erschienen)**

/FIS 15/ Fischer-Appelt, K., Bracke, G., Larue, P.-J., Kock, I., Beuth, T.: Preliminary Safety Analysis for the Gorleben Site. In: Key topics in deep geological disposal. Conference report, Köln 2014. KIT Scientific Reports, Bd. 7696, Hrsg: Fanghänel, S., S. 4–11, ISBN 9783731503835, Deutsche Arbeitsgemeinschaft für Endlagerforschung; International conference "Key topics in deep geological disposal", KIT Scientific Publishing; Technische Informationsbibliothek u. Universitätsbibliothek: Karlsruhe, Hannover, 2015.

/WEY 15/ Weyand, T., Bracke, G., Reichert, B.: A one-dimensional transport model of CO<sub>2</sub> in highly saline solutions in a final repository for radioactive waste, Goldschmidt Conference Abstracts, Nr. 3304: Prag, Tschechien, 2015.

/WEY 16a/ Weyand, T., Bracke, G., Seher, H.: Determining the speciation of radionuclides of high-level radioactive waste using different geochemical codes, Goldschmidt Conference Abstracts, Nr. 3403: Yokohama, Japan, July 2016.

/MAY 16/ Mayer, K.-M., Seher, H., Bracke, G., Moog, H. C.: An approach for a simplified calculation of the density of brines, Goldschmidt Conference Abstracts, Nr. 2019: Yokohama, Japan, July 2016.

/BRA 16a/ Bracke, G.: Are deep boreholes an option for disposal of high-level radioactive waste in Germany?, Goldschmidt Conference Abstracts, Nr. 294: Yokohama, Japan, July 2016.

/BRA 16d/ Bracke, G., Schilling, F.: Are criteria for site selection applicable for disposal of high-radioactive waste in deep boreholes?, 2nd Conference on Key Topics in Deep Geological Disposal, S. 22: Cologne, 26 – 28 September 2016.

/SEH 16b/ Seher, H., Bracke, G., Weyand, T.: How to implement temperature-dependent Pitzer interaction coefficients into TOUGHREACT?, Goldschmidt Conference Abstracts, Nr. 2791: Yokohama, Japan, July 2016.

/SEH 15/ Seher, H., Weyand, T., Bracke, G., Fischer, H., Moog, H. C.: Iron diffusion in a porous medium. Reactive transport modeling with different codes, Migration Conference 2015: Santa Fe, New Mexico, 13. - 18. September 2015.

### **Veröffentlichungen (eingereicht)**

/AKS 16/ Arbeitskreis Szenarienentwicklung: Position des Arbeitskreises zum Thema: Anforderungen an die Methode zur Ableitung von Szenarien für ein Endlager für radioaktive Abfälle, eingereicht bei der atw – Internationale Zeitschrift für Kernenergie, 2016.

### **Veröffentlichungen (erschienen)**

/BRA 16c/ Bracke, G., Hurst, S., Merkel, B., Müller, B., Schilling, F.: Proceedings of the Workshop "Final Disposal in Deep Boreholes Using Multiple Geological Barriers: Digging Deeper for safety" Juni 2015, Berlin, GRS-405, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, 319 S., ISBN 978-3-944161-87-7: Köln, Garching b. München, Berlin, Braunschweig, März 2016.

/BRA 16b/ Bracke, G.: Deep Borehole Disposal of Radioactive Waste as an Alternative Option for Germany? Regulation and Challenges, Proceedings of the Workshop "Final Disposal in Deep Boreholes Using Multiple Geological Barriers: Digging Deeper for safety" Juni 2015, Berlin, S. 31–47.

/KIE 16/ Kienzler, B., Schäfer, T., Bracke, G.: Conceptual ideas about the radio-geochemical monitoring in deep borehole disposal, Proceedings of the Workshop "Final Disposal in Deep Boreholes Using Multiple Geological Barriers: Digging Deeper for safety" Juni 2015, Berlin, S. 231–250.

### 1.3 Fachtagungen

Es wurden folgende Fachtagungen während des Vorhabens EMIL besucht:

- First Nuclides / Spent Fuel Workshop, 1. - 5. Sept. 2014, Karlsruhe, Deutschland
- Deutsche Arbeitsgemeinschaft Endlagerforschung (DAEF), Tagung, 25. - 26. Sept. 2014, Köln, Deutschland
- Workshop on Actinide-Brine-Chemistry, ABC-Salt IV, 13. - 16. April 2015, Heidelberg, Deutschland
- Workshop „Final Disposal in Deep Boreholes Using Multiple Geological Barriers: Digging Deeper for safety“, 5. – 6. Juni 2015, Berlin, Deutschland
- Goldschmidt Conference, 14. - 21. August 2015, Prag, Tschechische Republik
- Migration 2015, 12. - 20. Sept. 2015, Santa Fe, USA
- Nuclear Waste Technical Review Board (NWTRB), International Technical Workshop on Deep Borehole Disposal of Radioactive Waste, 19. – 23. Oktober 2015, Washington DC, USA
- Fachtagung „Kriterien für die Standortauswahl“, 29. - 30. Januar 2016, Berlin, Deutschland
- International Meeting on Deep Borehole Disposal of High-Level Radioactive Waste, 13. – 15. Juni 2016, Sheffield, Großbritannien
- Goldschmidt Conference, 26. Juni - 01. Juli 2016, Yokohama, Japan
- Summer Workshop, 1. - 4. August 2016, Edinburgh, Großbritannien
- Deutsche Arbeitsgemeinschaft Endlagerforschung (DAEF), Tagung, 26. - 28. September 2016, Köln, Deutschland
- CAST Workshop, 26. - 28. Oktober 2016, Luzern, Schweiz

## 2 Ergebnisse

### 2.1 Geochemie und reaktive Transportprozesse

#### 2.1.1 Thermodynamische Daten für eisenhaltige Phasen in hochsalinaren, wässrigen Systemen

Die neue thermodynamische Datenbasis /MOO 16/ repräsentiert zweiwertiges Eisen als Spezies  $\text{Fe}^{2+}$  und  $\text{FeCO}_3(\text{aq})$ . Die Verwendung der Spezies  $\text{FeCO}_3(\text{aq})$  erlaubt die Berechnung der Löslichkeit von Eisencarbonat (Siderit). Dreiwertiges Eisen wird allein durch die Spezies  $\text{Fe}(\text{OH})_4^-$  repräsentiert. Nicht-ideale Pitzer-Wechselwirkungskoeffizienten wurden für die Systeme ( $\text{Fe}^{2+} - \text{Na}^+, \text{K}^+, \text{Mg}^{2+}, \text{Ca}^{2+} - \text{Cl}^- - \text{H}_2\text{O}$ ) und ( $\text{Fe}^{2+} - \text{SO}_4^{2-} - \text{H}_2\text{O}$ ) implementiert. Dies erlaubt für diese beiden Systeme die Berechnung der Speziation in hochsalinaren, wässrigen Lösungen. Es hat sich herausgestellt, dass für die Eisenspezies  $\text{FeCO}_3(\text{aq})$  und  $\text{Fe}(\text{OH})_4^-$  die Berücksichtigung von Pitzer-Koeffizienten nicht notwendig ist, da deren Einfluss auf die Berechnung der Löslichkeit sehr gering ist. Für das binäre System ( $\text{Fe}^{2+} - \text{Cl}^- - \text{H}_2\text{O}$ ) hingegen besitzen die Pitzer-Koeffizienten einen entscheidenden Einfluss auf die Berechnungen und sollten berücksichtigt werden. Diese binären Pitzer-Koeffizienten sind bis zu einer Temperatur von 373,15 K gültig.

Die folgenden Festphasen wurden zur Beschreibung endlagerrelevanter Korrosionsprozesse als wichtigste Korrosionsprodukte in die Datenbasis implementiert: Siderit, Magnetit, Ferrihydrit, Goethit, Hämatit, "Weißer Rost", Chukanovit, und Hibbingit. Die Implementierung dieser Festphasen erfolgte mit dem Wissen, dass diese nur unter jeweils stark begrenzten Eh-pH-Temperatur-Bedingungen stabil sind oder gar keine stabile Domäne aufweisen. Bei der Betrachtung der Langzeitsicherheit eines Endlagers für radioaktive Abfälle können allerdings selbst metastabile Festphasen über sehr lange Zeiträume auftreten. Die spezifische Auswahl der Festphasen für eine geochemische Modellrechnung muss allerdings vom Anwender auf Grundlage der getroffenen Modellannahmen und Randbedingungen erfolgen. Kriterien hierfür sind zum Beispiel der Betrachtungs- und Simulationszeitraum aufgrund bekannter Reaktionskinetiken oder chemische Randbedingungen wie etwa der anteilige Gehalt der Lösung an Carbonat, Chlorid und Hydroxid sein.

Die nachfolgenden Berechnungen der Löslichkeit eisenhaltiger Phasen basiert auf der thermodynamischen Referenzdatenbasis THEREDA /MOO 15/ für die die entsprechenden thermodynamische Daten nach /MOO 16/ zusammengestellt und entwickelt wurden. Die ausgewählten thermodynamischen Daten wurden entweder bereits in von Experten begutachteten Fachartikeln verwendet oder stammen aus der Auswertung von publizierten experimentellen Ergebnissen. Es wurde ein vereinfachtes Modell für die Speziation des Eisens in wässriger Lösung verwendet, da der Verwendungszweck der thermodynamischen Datenbasis ausschließlich der Berechnung von Löslichkeiten des Eisens dienen sollte.

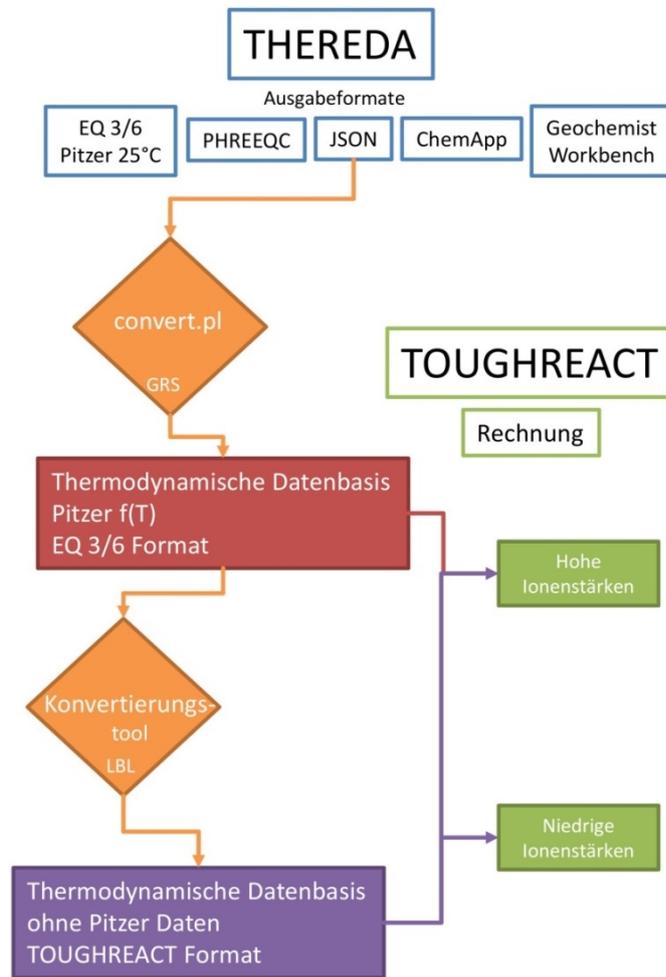
### **2.1.2 Konvertierung der thermodynamischen Daten von THEREDA für TOUGHREACT**

Geochemische Rechnungen benötigen thermodynamische Daten, um die entsprechenden geochemischen Prozesse modellieren zu können. Hierfür wurden in nationalen und internationalen Vorhaben qualitätsgesicherte thermodynamische Daten entwickelt (z. B. /ALT 11/, /THO 14/). Um diese und aktualisierte thermodynamischen Daten für unterschiedliche geochemische Systeme in Modellrechnungen mit TOUGHREACT verwenden zu können, müssen sie in einem für TOUGHREACT geeigneten Format vorliegen. In Deutschland wurde die Datenbasis THEREDA entwickelt, die neben der NEA-Datenbasis besonderen Qualitätsansprüchen unterliegt.

Für geochemische Modellrechnungen in hochsalinaren Lösungen stellt das Projekt THEREDA qualitätsgesicherte thermodynamische Daten mit Pitzer-Parametern zur Verfügung, die auch in vorgefertigten Datenbasen für spezifische Systeme und unterschiedliche geochemische Codes (z. B. PHREEQC, Geochemist's Workbench, ChemApp) vorliegen /ALT 11/. Für den Code TOUGHREACT lagen die thermodynamischen Daten bislang in keinem geeigneten Format vor. Im Bericht /SEH 16d/ werden die Arbeiten zur Konvertierung von thermodynamischen Daten aus THEREDA für TOUGHREACT beschrieben.

Die Umformatierung der thermodynamischen Daten aus THEREDA für TOUGHREACT erfolgt mit dem neu entwickelten Programm `convert.pl` /SEH 16d/. Dieses Programm wurde in der Sprache Perl geschrieben und konvertiert eine von THEREDA im JSON-Format ausgegebene Datei zunächst in eine Datei im Format des geochemi-

schen Codes EQ 3/6. Diese wird anschließend mit einem existierenden Konvertierungstool des LBL in ein für TOUGHREACT geeignetes Format konvertiert (Abb. 2.1).



**Abb. 2.1** Schematischer Ablauf der Konvertierung von thermodynamischen Daten aus THEREDA für TOUGHREACT /SEH 16d/

Während der Entwicklung des Programms `convert.pl` wurden Unterschiede bei der mathematischen Beschreibung der Temperaturabhängigkeit der Pitzer-Koeffizienten und der Löslichkeitskonstanten zwischen THEREDA und TOUGHREACT festgestellt. THEREDA nutzt sechs Koeffizienten zur Beschreibung der Temperaturabhängigkeit und TOUGHREACT vier. Um keine Neuanpassung der Koeffizienten vornehmen zu müssen, wurde die Eingabe im Code TOUGHREACT so erweitert, dass vier und sechs Koeffizienten in der Eingabe erlaubt sind. Dadurch können alle sechs Koeffizienten aus THEREDA übernommen werden. Ältere Eingabedateien mit vier Koeffizienten können ebenfalls verwendet werden.

Die Überprüfung des Konvertierungs-Tools erfolgte anschließend mit Benchmark-Rechnungen /SEH 16d/ mit dem bereits in /BRA 14/, /FIS 14/ zur Beschreibung endlagerrelevanter Prozesse verwendete System Na-Mg-Ca-Cl-Am(III)-Nd(III)-Cm(III)-H<sub>2</sub>O(l). Die Randbedingungen für die Benchmark-Rechnungen wurden von THEREDA übernommen /ALT 12a/, /ALT 12b/. Diese Benchmark-Rechnungen erfolgten bereits mit einer Vielzahl geochemischer Codes (CHEMAPP /ERI 03/, PHREEQC /PAR 13/, Geochemist's Workbench (GWB) /BET 15/, EQ3/6 /WOL 03/) und stellen durch den Abgleich mit experimentellen Daten /NEC 09/ eine hohe Qualitätsgüte sicher. Die Benchmark-Rechnungen von /ALT 12a/, /ALT 12b/ wurden mit einer inzwischen aktualisierten Version von PHREEQC nachgerechnet und wiesen eine sehr gute Übereinstimmung auf. Anschließend wurde die verwendete thermodynamische Datenbasis mit dem Werkzeug `convert.pl` konvertiert und die Benchmark-Rechnungen unter den gleichen Randbedingungen mit TOUGHREACT durchgeführt. Die Ergebnisse mit TOUGHREACT wiesen eine sehr gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen von PHREEQC auf /SEH 16d/.

Dies zeigt, dass das Werkzeug `convert.pl` eingesetzt werden kann, um thermodynamische Daten aus THEREDA in das geeignete Format für TOUGHREACT zu konvertieren und geochemische Berechnungen in hochsalinaren Lösungen durchzuführen. Somit können mit TOUGHREACT auch reaktive Transportmodellierungen in komplexen Grubengebäuden in Anwesenheit hochsalinärer Lösungen durchgeführt werden.

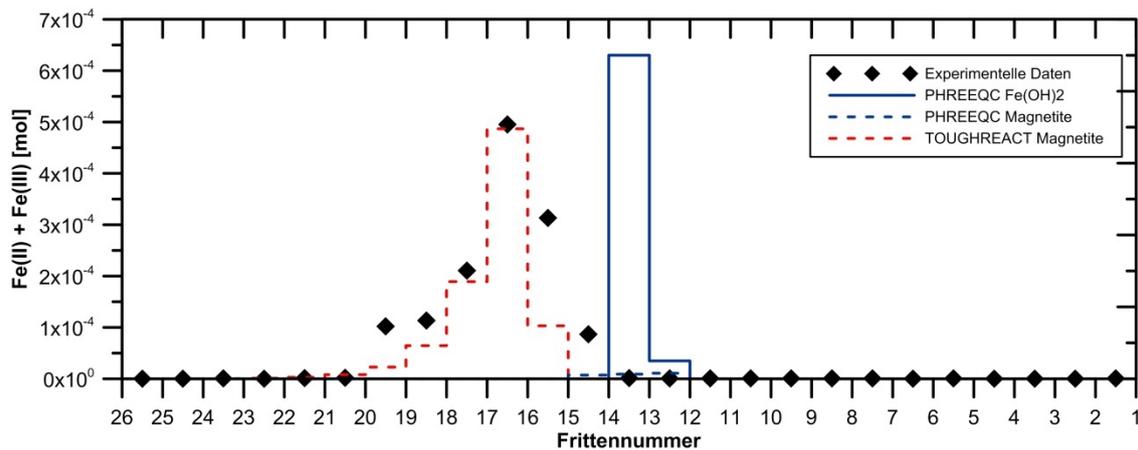
### **2.1.3 Modellierung eines Gegendiffusionsexperimentes zur Bildung sekundärer Eisenphasen aus wässrigen Lösungen**

Die in Kap. 2.1.1 entwickelte thermodynamische Datenbasis mit eisenhaltigen Phasen /MOO 16/ wurde für das Programm PHREEQC bereitgestellt und mit dem in Kap. 2.1.2 beschriebenen Werkzeug in das für TOUGHREACT geeignete Format konvertiert. Mit den geochemischen Codes PHREEQC und TOUGHREACT wurde ein Gegendiffusionsexperiment von FeCl<sub>2</sub> und NaOH zur Ausfällung von Fe<sup>2+</sup> und Fe<sup>3+</sup> Phasen in einem porösen Medium modelliert /SEH 16d/.

Die räumliche und zeitliche Bildung von Eisen-Phasen in einem porösen Medium (HDPE-Frittenmaterial) eines U-Rohr-Versuchssystems wurde als Gegendiffusionsexperiment im Labor untersucht /SEH 05/. Die Bedingungen waren anoxisch und die Diffusion der wichtigste Transportmechanismus. Der Laboraufbau und die chemischen

Bedingungen dienen als Grundlage für den Aufbau des Modells und die getroffenen Modellannahmen für PHREEQC und TOUGHREACT /SEH 16d/. Es handelt sich um ein eindimensionales, reaktives Stofftransportmodell mit Diffusion als Transportmechanismus.

Die experimentellen Ergebnisse /SEH 05/ zeigten eine Ausfällung von  $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$ -Festphasen im porösen Medium. Die Ausfällungszone befand sich in der Mitte des porösen Mediums, leicht nach links versetzt in Richtung der NaOH-Säule. Mit TOUGHREACT konnte sowohl die absolute Fe-Stoffmenge in der Festphase als auch die Verteilung der Ausfällung auf Gitterelement bzw. Fritten in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen /SEH 05/ berechnet werden (Abb. 2.2). Mit PHREEQC wurde näherungsweise die absolute Fe-Stoffmenge in der Festphase übereinstimmend mit dem Experiment bestimmt. Die rechnerische Ausfällung eisenhaltiger Festphasen mit PHREEQC erfolgte nahezu vollständig in einem Gitterelement im Unterschied zum Experiment. Sowohl das Gitterelement als auch die Verteilung der Ausfällung konnten mit PHREEQC somit nicht übereinstimmend mit dem Experiment modelliert werden. Dies lässt sich auf die unterschiedliche Transportberechnung der Programme zurückzuführen. PHREEQC wurde ursprünglich für Batch-Reaktionen konzipiert und ist nur eingeschränkt für eindimensionale Säulenversuche verwendbar. TOUGHREACT hingegen ist eine Erweiterung des Zweiphasen-Transportprogramms TOUGH2. Daher können tatsächliche poröse Medien und weitere relevante Parameter wie z. B. die Tortuosität berücksichtigt werden.



**Abb. 2.2** Experimentelle Fe-Stoffmenge und numerisch bestimmte Fe-Festphasen im porösen Medium

Die Ergebnisse der Modellierung des Gegendiffusionsexperimentes zeigen, dass die entwickelte thermodynamische Datenbasis mit eisenhaltigen Phasen und das Konvertierungstool mit TOUGHREACT eingesetzt werden können, um die Ausfällung eisenhaltiger Festphasen in einem porösen Medium zu berechnen. Die Verwendung von TOUGHREACT zur Berechnung eines reaktiven Transportmodelles für ein Endlager erscheint geeignet, da mit diesem die komplexen Prozesse (wie z. B. die Verteilung der Ausfällung) abgebildet werden können.

#### 2.1.4 Modellierung zur Speziation der Radionuklide in Abfallgebinden für hoch radioaktive Abfälle

Die Speziation der Radionuklide (Aktinide und Spaltprodukte) in den Abfallgebinden für hoch radioaktive Abfälle für beschädigte und unbeschädigte Brennstäbe und verschiedene Brennstoffmatrizes wurde mittels eines numerischen Modellierungsansatzes untersucht. Die Methoden und Ergebnisse dokumentiert /WEY 16b/.

Auf Basis einer Literaturrecherche zum Abfallinventar von hoch radioaktiven Abfällen mit bestrahlten Brennelementen aus Leistungs-, Prototyp- und Forschungsreaktoren sowie Abfällen aus der Wiederaufbereitung von bestrahlten Brennelementen wurde eine mögliche Anfangszusammensetzung der Festphasen abgeleitet. Das Radionuklidinventar entspricht dem bereits in der VSG verwendeten Radionuklidinventar /LAR 13/.

Die Lagerung der Abfallstoffe in unterschiedlichen Behältertypen und in Zwischenlagern in Deutschland wurde in den Annahmen berücksichtigt. Aus den Modellinventaren für hoch radioaktive Abfallstoffe in unterschiedlichen Behältern wurden typische Radionuklid- und Elementmassen für mit Abfallstoffen beladene Behälter für die Modellierung ermittelt.

Die geochemischen Modellrechnungen unter Verwendung von PHREEQC /PAR 13/ ermittelten dann eine zeitabhängige Änderung der Festphasenzusammensetzungen der hoch radioaktiven Abfallstoffe in den Behältern für unterschiedliche Annahmen, z. B. bzgl. Redoxmilieu, Wasserstoffgehalt, in mehreren Variationsrechnungen. Dabei zeigte sich erwartungsgemäß, dass insbesondere die zeitliche Veränderung der Nuklidzusammensetzung infolge des radioaktiven Zerfalls von Bedeutung ist.

Die qualitätsgesicherten, thermodynamischen Daten zur Bildung der Festphasen /THO 14/ wurden in den geochemischen Berechnungen verwendet. Im Basisfall wurden reduzierende Bedingungen für unterschiedliche Modellinventare (DWR-MOX, DWR-UO<sub>2</sub>, SWR-MOX, SWR-UO<sub>2</sub>) angenommen, die in einem intakten Behälter für hoch radioaktive Abfälle erwartet werden. Die Variationsrechnungen berücksichtigten nur wasserstofffreie Festphasen, da der Feuchtigkeitsgehalt in einem Behälter für hoch radioaktive Abfälle zu gering ist, um Hydroxide oder wasserhaltige Festphasen zu bilden. Der Einfluss eines Defekts eines Behälters auf die Festphasenzusammensetzung wurde in einer Variationsrechnung gewürdigt, indem ein Luftkontakt mit einer einhergehenden Oxidation (unter Vernachlässigung der Reaktionskinetik) der Metalle angenommen wurde.

### **2.1.5 Code-Entwicklungsarbeiten zu TOUGHREACT**

Numerische Simulationen sind ein wichtiger Bestandteil von Langzeitsicherheitsuntersuchungen für Endlager von hoch radioaktiven Abfällen. Die zur Analyse verwendeten Programmcodes müssen hohe Qualitätsanforderungen erfüllen, um die Plausibilität von Ergebnissen für Sicherheitsuntersuchungen zu gewährleisten. Daher ist es notwendig, dass eine Qualitätssicherung eines Programmcodes erfolgt und Änderungen im Quellcode nachvollziehbar dokumentiert sind.

Ein Aspekt der Qualitätssicherung ist die Validierung des Programmcodes. Dies bedeutet das Erbringen des Nachweises, dass die numerische Implementierung von phy-

sikalischen oder chemischen Modellen die vorgesehenen Prozesse wiedergibt. Validierungstests sollten nicht nur Standardsystemzustände, sondern auch sehr spezielle und selten vorkommende Systemzustände überprüfen, die selten verwendete und meist auch weniger getestete Teile bzw. Zustände eines Programmcodes aktivieren.

Jeder Programmcode muss vor einem Release verifiziert werden /HOT 16b/. Verifikationstests benötigen eine hohe Zahl an Testfällen, die in häufigen Abständen wiederholt werden müssen. Außerdem können auch regelmäßige Performance-Tests mit noch größerer Häufigkeit, z. B. nach jedem Meilenstein in der Codeentwicklung, durchgeführt werden. Die hohe Anzahl der Testfälle und die häufige Durchführung der Tests insbesondere bei den komplexen Programmen der TOUGH-Familie zeigen die Notwendigkeit der Entwicklung eines automatisierten Ablaufes.

Um automatisierte Tests für die in der GRS verwendeten Programmcodes MARNIE /MAR 02/ und TOUGH2-GRS /NAV 16/ durchzuführen, ist im Rahmen der Vorhaben ZIESEL (FKZ UM13A03400) und EMIL das Programm SITA entwickelt (A simulation and code testing assistant for TOUGH2 and MARNIE) worden /SEH 16c/. SITA ermöglicht es Simulationsergebnisse mit analytischen Lösungen und Ergebnissen anderer Codeversionen zu vergleichen. Der Vergleich erfolgt durch versionsunabhängige Verifikationstests mit versionsabhängigen Programmcodes. SITA führt hierfür spezifische Schnittstellen für jede Codeversion ein. Die Entwicklung von SITA ist Teil der Qualitätssicherung von Softwareprojekten in der GRS /GRS 13/.

Im Rahmen des Vorhabens EMIL wurde SITA um die Anbindung der Codes MARNIE und TOUGHREACT erweitert. MARNIE ist mit Abschluss des Vorhabens SITA vollständig in SITA integriert. Dies bedeutet, dass numerische Berechnungen in unterschiedlichen Codeversionen mit SITA für MARNIE durchgeführt werden können und die Rechenläufe von Testfällen automatisiert ausgewertet werden. Für TOUGHREACT ist eine Ansteuerung unterschiedliche Codeversionen mit SITA möglich, allerdings konnte die automatisierte Auswertung der Testfälle nicht vollständig abgeschlossen werden.

### **2.1.6 Automatisierte Erstellung von Eingabedateien für TOUGHREACT**

Die Durchführung numerischer Simulationen mit TOUGHREACT benötigt Eingabedateien mit Modellparametern /PRU 99/. Hierbei handelt es sich um Textdateien, deren

Inhalte für den Code in einer spezifischen Struktur vorliegen müssen. Diese werden für die im Vorhaben EMIL verwendete Codeversion bislang ohne graphische Benutzeroberfläche händisch erstellt. Die hohe Komplexität und Anzahl der Eingabeparameter macht eine manuelle Eingabe fehleranfällig, zeitlich aufwendig und führt in der Folge auch zu zeitaufwendigen Fehlersuchen.

Daher wurde im Rahmen des Vorhabens EMIL mit der Sprache „Visual Basic“ eine Excel-Applikation entwickelt mit der die Erstellung der Eingabedateien für TOUGHREACT vereinfacht und beschleunigt wird. In thematisch gruppierten Excel-Tabellenblättern werden die Modellparameter eingegeben. Ein Excel-Makro erzeugt anschließend aus den Eingaben der Modellparameter die Eingabedateien für TOUGHREACT bzw. SITA in einem geeigneten Format. Für die Erstellung von Rechenfällen mit einer Parametervariation bietet die Excel-Applikation die Möglichkeit mehrere Eingabedateien simultan zu erstellen und dabei einzelne Modellparameter zu variieren. Dadurch können ohne einen stark erhöhten zeitlichen Aufwand die Eingabedateien für eine Vielzahl von Variationsrechnungen erzeugt werden. Dieses Verfahren wird über eine ähnliche bereits existierende Excel-Applikation für TOUGH2 angewendet (z. B. /KOC 16b/) und wurde nun für den Code TOUGHREACT erweitert.

## **2.2 Untersuchungen zum Transportverhalten von Schadstoffen in Süß-/Salzwassersystemen unter Berücksichtigung von Dichte- und Viskositätsunterschieden**

Nationale und internationale Erfahrungen zum Transportverhalten von Schadstoffen in Süß-/Salzwassersystemen unter Berücksichtigung von Dichte- und Viskositätsunterschieden und eine Erfassung der im Zusammenhang mit den Langzeitsicherheitsanalysen bei der Endlagerung radioaktiver Stoffe entwickelten Modellansätze hinsichtlich dichteabhängiger Grundwasserströmungsvorgänge sind in /LAR 16/ zusammengestellt.

Die Berücksichtigung der Dichte bei Grundwassermodellierungen ist nicht nur im Falle einer Endlagerung radioaktiver Abfälle in Salzformationen bzw. in unmittelbarer Nähe zu solchen von Bedeutung /HER 88/, /LEI 92/, /SCH 04/ sondern auch für die Trinkwassergewinnung in Küstennähe, bei Grundwasserschadensfällen u. a. durch Depo-nien und bei geothermischen Fragestellungen von Bedeutung. Dichteunterschiede, hervorgerufen durch Konzentrationsvariationen oder thermische Gradienten, können

einen signifikanten Einfluss auf Strömungs- und Transportprozesse ausüben /HER 88/, /JAV 00a/. Deshalb ist es erforderlich, ihren Einfluss in den Modellierungen zur Langzeitsicherheit von Endlagern radioaktiver Abfälle zu berücksichtigen, falls hochsalinare Lösungen im weiträumigen Untersuchungsgebiet zu erwarten sind. Nur so können mögliche Verbreitungswege von Schadstoffen in dichtebeeinflussten Grundwasserleitern verlässlich bewertet werden /FEI 99/, /JAV 00b/.

Die Viskosität stellt eine weitere wichtige Einflussgröße zur Quantifizierung von Strömungs- und Transportprozessen dar. Neben ihrer Temperaturabhängigkeit besitzt sie auch eine Abhängigkeit von der Konzentration und von ionenspezifischen Wechselwirkungen, die im Besonderen bei hochsalinaren Lösungen von Bedeutung sind. So können beispielsweise Salzlösungen gleicher Dichte aufgrund unterschiedlicher chemischer Zusammensetzung eine abweichende Viskosität aufweisen /LEI 92/, /ABD 05/, /SEH 16a/, /WEI 16/.

Der Bericht /LAR 16/ stellt die Grundlagen zur Modellierung dichtegetriebener Strömung dar und beschreibt eine Reihe von Anwendungsbeispielen von unterschiedliche Programmcodes in ihrer Verwendung auf reale Standorte u. a. im Zusammenhang mit den Langzeitsicherheitsanalysen. Den Anwendungsbeispielen werden als Qualitätsanforderung, die die verwendeten Programmcodes in ihrer speziellen Anwendung erfüllen müssen, bestimmten Verifizierungsmodelle zugeordnet. Auf der Basis nationaler und internationaler Erfahrungen zum Transportverhalten von Schadstoffen in Süß/Salzwassersystemen und den dort verwendeten Programmcodes wird eine Übersicht zu den verschiedenen numerischen Ansätzen der Berechnung der Dichte und Viskosität aufgezeigt. Die Programmcodes werden anhand von Qualifizierungsanforderungen und Ansätze zur Verifizierung ausgewählt. Verifikationsmodelle wie das ‚Henry-Problem‘, das ‚Elder-Problem‘, das ‚Salt Dome-Problem‘ und das ‚Saltpool-Problem‘ zur Qualitätsprüfung neuer Ansätze werden beschrieben. Es werden vergleichende Analysen mit den Programmcodes d<sup>3f</sup>, TOUGH2, PHREEQC und SPRING dargestellt. Wie die Verifizierungsbeispiele und vergleichende Analysen zeigen, erfüllen die unterschiedlichen Modellansätze in den Programmcodes die erforderlichen Anforderungen zur Modellierung dichtegetriebener Transportprozesse, benötigen jedoch weiterhin in Abhängigkeit der Dimension bzw. der Größe des Modellgitters und des Simulationszeitraumes trotz verbesserter Hardware sehr lange Rechenzeiten. Im Ergebnis bedeutet dies ein wesentliches Anwachsen des Rechenaufwandes und damit die Notwendigkeit die verwendeten Rechenprogramme erheblich zu beschleunigen.

In der Folge werden Empfehlungen zur Weiterentwicklung des GRS-Instrumentariums gegeben. Die Weiterentwicklungen des GRS Instrumentariums, die im Rahmen des Vorhabens erfolgen sollten, wurden für den Programmcode SPRING umgesetzt bzw. implementiert und die Programmänderungen einer Verifizierung unterzogen /SEI 15/.

Testrechnungen wurden an einem selbst erstellten repräsentativen Vertikalmodell (Prinzipmodell) durchgeführt und die implementierten Modellansätze auf ihre Eignung erfolgreich überprüft.

Die Testrechnungen zum zweidimensionalen Prinzipmodell erfolgten u. a. zur Erstellung einer stationären Dichteverteilung durch Einstrom von Süßwasser in einem salzgesättigten Grundwasser bzw. durch Salzaufsättigung eines Süßwassereinstroms über eine Konzentrationsrandbedingung. Zur Ermittlung des Einflusses von Dichteeffekten auf die Grundwasserbewegung wurden Parameterdatensätze für das Prinzipmodell generiert. Auf Basis dieses Modells erfolgten Modellvariationen und Parametervariationen und die Ergebnisse der Simulation des hydraulischen Systems wurden unter Berücksichtigung der Dichteeffekte dargestellt.

### **2.3 Szenarientwicklung**

Der sichere Einschluss von radioaktiven Abfällen in einem Endlager ist im Rahmen eines Langzeitsicherheitsnachweises zu belegen. Hierbei werden u. a. numerische Analysen durchgeführt. Voraussetzung hierfür sind Vorstellungen zur zukünftigen Entwicklung des Endlagersystems. Die tatsächliche Entwicklung des Endlagersystems lässt sich allerdings für den Nachweiszeitraum nicht belastbar in allen Einzelaspekten und Details prognostizieren. Daher werden in einer Szenarientwicklung die sicherheitsrelevanten Entwicklungen eines Endlagersystems abgeleitet. Die Szenarientwicklung bildet eine wesentliche Komponente in Sicherheitsuntersuchungen, die für potenzielle Endlagerstandorte im Standortauswahlprozess und bei entsprechender Standortfestlegung nach bestimmten Phasen und ggf. Perioden eines Endlagervorhabens durchzuführen sind. In diesem Zusammenhang stellte sich die Frage nach den Erfordernissen oder möglichen Vorzügen einer universellen, für unterschiedliche Phasen des Auswahlverfahrens sowie für unterschiedliche Standorte, Wirtsgesteine, Sicherheits- und Endlagerkonzepte anwendbaren bzw. übertragbaren Methode zur Ableitung von Szenarien, die in mehreren Treffen des AK Szenarientwicklung diskutiert wurden.

Der AK Szenarienentwicklung identifizierte eine Reihe von Anforderungen, die sich einerseits auf Eigenschaften / Leistungsvermögen und andererseits auf Qualitätsmerkmale / Qualitätseinschätzung einer entsprechenden Methode ausrichten. So soll die Methode u. a. eine systematische Vorgehensweise beinhalten, möglichst wenige subjektive Entscheidungsprozesse erfordern und eine Einordnung der entwickelten Szenarien in Wahrscheinlichkeitsklassen erlauben. Anhand von zu identifizierenden Qualitätsmerkmalen soll eine Einschätzung in Bezug auf eine umfassende Szenarienentwicklung ermöglicht werden.

Die Ergebnisse dieser Diskussion wurden in einem Beitrag festgehalten, der zur Veröffentlichung in der Fachzeitschrift „atw – Internationale Zeitschrift für Kernenergie“ eingereicht wurde. Der Beitrag befindet sich auch im Anhang des vorliegenden Abschlussberichtes.

### **3 Ausblick**

#### **3.1 Geochemie und reaktive Transportprozesse**

##### **3.1.1 Thermodynamische Daten für eisenhaltige Phasen**

Die Entwicklung der thermodynamischen Datenbasis für eisenhaltige Phasen, insbesondere für die geochemische Modellierung der Bildung von Korrosionsphasen in hochsalinaren Lösungen, ist nicht abgeschlossen und bleibt Gegenstand fortlaufender Forschungsvorhaben. Die entwickelte Datenbasis von /MOO 16/ sollte um weitere potentiell für endlagerrelevante Prozesse wichtige Festphasen ergänzt werden. Die Datenbasis gibt für hochsalinare Lösungen nicht die reale Eisenspeziation (insbesondere für dreiwertiges Eisen) wieder, da in der Literatur Pitzer-Koeffizienten für zahlreiche Hydroxo-, Carbonato- und weitere Komplexe fehlen. Durch zusätzliche experimentelle Untersuchungen könnten die Unsicherheiten reduziert und zusätzliche Pitzer-Koeffizienten zur Berechnung der Speziation in hochsalinaren Lösungen bestimmt werden.

Da im Nahfeld eines Endlagers für radioaktive Abfälle meist reduzierende Bedingungen vorliegen, kann nicht ausgeschlossen werden, dass in Lösung reduzierter Schwefel (Sulfid, S(-II)) auftritt. Zweiwertiges Eisen kann mit Sulfiden sehr schwerlösliche Festphasen bilden und in Anwesenheit von gelöstem Schwefelwasserstoff ( $\text{H}_2\text{S}(\text{aq})$  oder  $\text{HS}^-$ ) Auswirkungen auf die metallische Korrosion haben. Daher wird empfohlen in zukünftigen Forschungsvorhaben die Datenbasis um Sulfide zu ergänzen.

Zur Beschreibung der Wechselwirkungen zwischen zweiwertigem Eisen und Sulfat in hochsalinaren Lösungen fehlen experimentelle Daten, um einen belastbaren Modellansatz nach Pitzer zu entwickeln. Daher besteht Forschungsbedarf bei isopiethischen Versuchen und elektrochemischen Messungen mit zweiwertigem Eisen und Sulfat.

Die thermodynamischen Daten für Oxid- und Hydroxid-Phasen mit dreiwertigem Eisen werden aktuell auf Grundlage von experimentellen Messwerten mit einer großen Streuung ermittelt. Die Auswirkungen der Streuungen auf die Unsicherheiten der daraus abgeleiteten thermodynamischen Daten und somit auf die Unsicherheit von berechneten Löslichkeiten bzw.  $E_{\text{H}}$ - und pH-Werten sind nicht bekannt. Daher werden auch die Berechnungen von Löslichkeiten der Aktinoide mit Unsicherheiten behaftet

sein, da diese von den Gleichgewichts-  $E_H$ - und pH-Werten abhängen. Zur Charakterisierung der Unsicherheiten wird empfohlen in zukünftigen Forschungs- und Entwicklungsvorhaben die Unsicherheiten der in der aktuellen Datenbasis enthaltenen thermodynamischen Datenbasis zu ermitteln bzw. aus den experimentellen Daten Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen durchzuführen.

### **3.1.2 Modellierung reaktiver Transportprozesse**

Zur reaktiven, mehrdimensionalen Zweiphasenstrommodellierung ist der Code TOUGHREACT grundsätzlich geeignet. Zur Berechnung des nichtreaktiven Transportes wird in der GRS seit vielen Jahren der Code TOUGH2-GRS eingesetzt, der um viele Module erweitert wurde, um endlagerrelevante Prozesse wie Konvergenz und Kompaktion abbilden zu können. Zur Implementierung dieser für TOUGH2-GRS entwickelten Module in TOUGHREACT ist Entwicklungsbedarf notwendig. Auch die Verwendung moderner Multi-Prozessor-Anwendungen ist erforderlich, um den exponentiell steigenden Rechenaufwand bei reaktiven Stofftransportberechnungen in komplexeren Gittermodellen bewältigen zu können.

Während des Vorhabens EMIL wurden bei den geochemischen Berechnungen mit TOUGHREACT und temperaturabhängigen, thermodynamischen Daten von THEREDA numerische Probleme bei der Berücksichtigung von zweiwertigen Ionen für Temperaturen ober- bzw. unterhalb von 25 °C identifiziert. Hierdurch wurden numerische Simulationen nicht vollständig abgeschlossen oder der Start einer Simulation war nicht möglich. Es besteht Entwicklungsbedarf, um den numerischen Löser des Codes zu analysieren und eine programmiertechnische Lösung zu entwickeln, um auch bei den in einem Endlager erwarteten höheren Temperaturen numerische Berechnungen durchführen zu können.

Die Ergebnisse einer geochemischen Modellrechnung sind stark von den verwendeten thermodynamischen Daten abhängig. Für TOUGHREACT existieren im Vergleich zu anderen geochemischen Codes wenige in einem geeigneten Format veröffentlichte thermodynamische Datenbasen (mit Pitzer-Koeffizienten). Analog zur Entwicklung des Konvertierungstools (s. Kap. 2.1.5) könnte eine Erweiterung der Einleseroutine von TOUGHREACT erfolgen, um Formatierungen für andere gängige geochemische Codes (wie z. B. PHREEQC) direkt in TOUGHREACT einzulesen.

Im Vorhaben EMIL wurden temperaturabhängige, thermodynamische Daten aus THEREDA in ein geeignetes Format für TOUGHREACT konvertiert und Codeanpassungen vorgenommen. Diese ermöglichen geochemische Berechnungen bei Temperaturen über 25 °C für hochsalinare Bedingungen. In zukünftigen Forschungs- und Entwicklungsvorhaben ist es daher grundsätzlich möglich temperaturabhängige, geochemische Prozesse in einem vereinfachten Endlagerkonzept zu berücksichtigen. Auf diese Weise könnte der Einfluss eines sich zeitlich ändernden Temperaturfeldes infolge der Wärmeabgabe eines Endlagerbehälters mit hoch radioaktiven Abfällen auf das Transportverhalten von Radionukliden analysiert werden.

In /BRA 14/ wurde für ein vereinfachtes Endlagerkonzept ein reaktives Transportmodell unter Berücksichtigung der Wechselwirkungen zwischen CO<sub>2</sub> und hochsalinaren Lösungen entwickelt und numerische Berechnungen mit PHREEQC durchgeführt. Im Vorhaben EMIL wurde gezeigt, dass TOUGHREACT im Vergleich zu PHREEQC die Möglichkeit besitzt auch komplexere Transportprozesse abzubilden. Hierzu gehört zum Beispiel der mehrdimensionale Zweiphasenflusstransport, der mit PHREEQC nicht abgebildet werden kann. In zukünftigen Forschungs- und Entwicklungsvorhaben könnte das eindimensionale und einphasige Transportmodell mit PHREEQC auf TOUGHREACT übertragen werden. Durch die Anwendung mit TOUGHREACT könnte ein mehrdimensionaler, zweiphasiger Transport berechnet und die Wechselwirkungen zwischen CO<sub>2</sub> und hochsalinaren Lösungen während des Transportes detaillierter beschrieben werden.

### **3.1.3 Speziation von Radionukliden**

Wegen der getroffenen, codespezifischen Annahmen ist eine Überprüfung der Ergebnisse des entwickelten, ersten Ansatzes mit weiteren geochemischen Codes zu empfehlen. Geochemische Codes wie CHEMAPP existieren, die auch ein thermodynamisches Gleichgewicht für Festphasen ohne die zwingende Annahme einer Lösungsphase berechnen können. Die thermodynamische Datenbasis von /THO 14/ ist allerdings nicht mit CHEMAPP kompatibel.

Der Einfluss des Redoxmilieus (reduzierend oder oxidierend) ist ebenfalls wichtig für die Berechnung der Festphasenzusammensetzung. Elemente / Radionuklide in unterschiedlichen Oxidationsstufen bilden unterschiedliche Festphasen. Dies ist für die Ableitung eines Quellterms und der Freisetzung von Radionukliden aus einem Behälter

von Interesse, da unterschiedliche Oxidationsstufen von Elementen einen Einfluss auf die Löslichkeit haben, sollte es zum Luft- oder Lösungskontakt mit den hoch radioaktiven Abfällen kommen. Auch hier besteht weiterhin Aktualisierungs- und Entwicklungsbedarf, um die getroffenen Annahmen zu untersetzen.

Die verwendeten thermodynamischen Daten gelten für eine konstante Temperatur. Da Bildungsreaktionen von Festphasen stark temperaturabhängig sein können, sollten die thermodynamischen Datenbasen mit temperaturabhängigen Koeffizienten erweitert werden. Dies gilt insbesondere vor dem Hintergrund, dass es sich bei den hoch radioaktiven Abfällen um wärmeentwickelnde Abfälle handelt, und sich Temperaturen über längere Zeiträume ändern.

#### **3.1.4 Codeentwicklung**

Um zur Qualitätssicherung der Codeversionen von TOUGHREACT Testfälle zu berechnen und automatisiert mit SITA auszuwerten, sind ergänzende programmieretechnische Erweiterungen in SITA notwendig. Analog zu den Maßnahmen zur Qualitätssicherung des Codes TOUGH2-GRS /HOT 16a/, /HOT 16b/ sollten auch für TOUGHREACT Testfälle entwickelt werden. In diesen Testfällen sollen endlagerrelevante (physikalische und chemische) Prozesse dargestellt werden. Ferner könnten Verifikationstests die Qualität des Codes TOUGHREACT aufzeigen.

Die automatisierte Auswertung von Testfällen mit SITA ist noch nicht abgeschlossen und sollte weiter entwickelt bzw. fertiggestellt werden. Hierzu gehört z. B. eine automatisierte Fehlermeldung bei der Überschreitung von vorgegebenen Grenzwerten. Des Weiteren können die Tests mit SITA bei der Softwareentwicklung z. B. nach Änderungen in der Stammversion des Codes die Tests zur Qualitätssicherung automatisch erfolgen.

#### **3.2 Transportverhalten von Schadstoffen in Süß/Salzwassersystemen**

Die Berechnung der Viskosität nach der Mischung von aufeinander treffenden verschiedenen Lösungen stellt ein weiteres rechenintensives Problem bei der Modellierung des Schadstofftransports dar. Bisher wurde die Viskosität eines Mischsystems z. B. NaCl-MgCl<sub>2</sub> über eine empirische lineare oder exponentielle Beziehung, die an experimentelle Daten angepasst wurde, berechnet. Diese berücksichtigen bisher im

NaCl-MgCl<sub>2</sub> System eine konzentrationsabhängige Änderung der Dichte und Viskosität des Mischungsmediums. Dies führt bei der Modellierung von Fließbewegungen an Schichtgrenzen von Lösungen unterschiedlicher Dichte (steiler Dichtegradient) und dem Stofftransport über diese Schichtgrenzen zu numerischen Problemen (Beispiel: lösungserfüllte Schächte).

Um ebenfalls Transportrechnungen in Anwesenheit von verschiedenen Salzlösungen durchführen zu können, muss die Berechnung der Viskosität auf mehrere Komponenten und Zusammensetzungen anwendbar sein. Dafür geeignete Modellansätze sind in /SEH 16a/ dargestellt, die programmtechnisch gegebenenfalls einfach umgesetzt werden könnten. Ein Anwachsen des Rechenaufwandes bedeutet weiterhin die Notwendigkeit die verwendeten Rechenprogramme weiterzuentwickeln.

### **3.3 Szenarienentwicklung**

Die Diskussionsergebnisse über die Anforderungen an eine Methode zur Szenarienentwicklung konnten in einem Entwurf zur Veröffentlichung festgehalten werden (siehe Beitrag im Anhang). Die Diskussionen zu den Ansätzen einer systematischen Ableitung von Rechenfällen aus entwickelten Szenarien und die Vorgehensweise zur Ermittlung von abdeckenden Rechenfällen konnten nicht abgeschlossen werden, ebenso die Diskussion zu Sicherheitsfunktionen als Grundlage für einen diversitären Ansatz zur Ableitung von Szenarien und zu einem Verfahren zur Gruppierung von. Eine weitere Verfolgung dieser Aspekte ist daher zu empfehlen.



## Literaturverzeichnis

- /ABD 05/ Abdulagatov, I.M., Azizov, N.D.: Viscosities of aqueous LiI solutions at 293–525K and 0.1–40MPa, *Thermochimica Acta*, Bd. 439, 1-2, S. 8–20, DOI 10.1016/j.tca.2005.08.036, 2005.
- /AKS 16/ Arbeitskreis Szenarienentwicklung (AKS): Anforderungen an die Methode zur Ableitung von Szenarien für ein Endlager für radioaktive Abfälle. Eingereichter Fachartikel bei der *atw - Internationale Zeitschrift für Kernenergie*, 2016.
- /ALT 11/ Altmaier, M., Brendler, V., Bube, C., Neck, V., Marquardt, C., Moog, H.C., Richter, A., Schrage, T., Voigt, W., Wilhelm, S., Willms, T., Wollmann, G.: THEREDA - Thermodynamische Referenz-Datenbasis. Abschlussbericht, Hrsg.: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-265, 863 S.: Braunschweig, 1. März 2011.
- /ALT 12a/ Altmaier, M., Bok, F., Bube, C., Marquardt, C., Moog, H.C.: Am(III), Cm(III), Nd(III) in MgCl<sub>2</sub> and CaCl<sub>2</sub> solutions at 298.15K, Benchmark number 01, Revision 3.0, THEREDA - Benchmark calculation, Hrsg.: Thermodynamische Referenzdatenbasis (THEREDA), 84 S., 25. Mai 2012.
- /ALT 12b/ Altmaier, M., Bok, F., Bube, C., Marquardt, C., Moog, H.C.: Am(III), Cm(III), Nd(III) in NaCl solutions at 298.15K, Benchmark number 02, Revision 3.0, THEREDA - Benchmark calculation, Hrsg.: Thermodynamische Referenzdatenbasis (THEREDA), 51 S., 25. Mai 2012.
- /BET 15/ Bethke, C.M., Yeakel, S.: *The Geochemist's Workbench® Release 10.0. Reference Manual*, Hrsg.: Aqueous Solutions, L.L., 446 S.: Champaign, Illinois, USA, 15. Juni 2015.
- /BMU 10/ Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU): Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle, 22 S.: Bonn, 30. September 2010.

- /BRA 14/ Bracke, G., Fischer, H., Frieling, G., Hansmeier, C., Hotzel, S., Kock, I., Seher, H., Weyand, T.: Entwicklungen und Untersuchungen zu (T)HMC-Prozessen eines Endlagers für Wärme entwickelnde radioaktive Abfälle, GRS-350, 73 S., ISBN 9783944161303, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 2014.
- /BRA 16a/ Bracke, G.: Are deep boreholes an option for disposal of high-level radioactive waste in Germany?, Goldschmidt Conference Abstracts 2016, Nr. 294: Yokohama, Japan, July 2016.
- /BRA 16b/ Bracke, G.: Deep Borehole Disposal of Radioactive Waste as an Alternative Option for Germany ? Regulation and Challenges. In: Proceedings of the Workshop “Final Disposal in Deep Boreholes Using Multiple Geological Barriers: Digging Deeper for safety” Juni 2015, Berlin. GRS-405, Hrsg: Bracke, G., Hurst, S., Merkel, B., Müller, B., Schilling, F., S. 31–47, ISBN 978-3-944161-87-7, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Köln, März 2016.
- /BRA 16c/ Bracke, G., Hurst, S., Merkel, B., Müller, B., Schilling, F. (Hrsg.): Proceedings of the Workshop “Final Disposal in Deep Boreholes Using Multiple Geological Barriers: Digging Deeper for safety” Juni 2015, Berlin, GRS-405, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, 278 S., ISBN 978-3-944161-87-7: Köln, März 2016.
- /BRA 16d/ Bracke, G., Schilling, F.: Are criteria for site selection applicable for disposal of high-radioactive waste in deep boreholes?, 2nd Conference on Key Topics in Deep Geological Disposal, S. 22: Cologne, 26 – 28 September 2016.
- /ERI 03/ Eriksson, G.: ChemApp - The Thermochemistry Library for your Software. GTT-Technologies: Herzogenrath, Germany, 2003.
- /FEI 99/ Fein, E., Schneider, A.: d3f – Ein Programmpaket zur Modellierung von Dichteströmungen. Abschlussbericht, Hrsg.: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-139, 243 S.: Braunschweig, 1. Januar 1999.

- /FIS 14/ Fischer, H., Seher, H., Bracke, G.: Untersuchungen zur Kopplung des Transportprogrammes MARNIE mit dem geochemischen Rechencode PHREEQC, GRS-334, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, 103 S., ISBN 978-3-944161-14-3: Köln, 2014.
- /FIS 15/ Fischer-Appelt, K., Bracke, G., Larue, P.-J., Kock, I., Beuth, T.: Preliminary Safety Analysis for the Gorleben Site. In: Key topics in deep geological disposal. Conference report, Köln 2014. KIT Scientific Reports, Bd. 7696, Hrsg: Fanghänel, S., S. 4–11, ISBN 9783731503835, Deutsche Arbeitsgemeinschaft für Endlagerforschung; International conference "Key topics in deep geological disposal", KIT Scientific Publishing; Technische Informationsbibliothek u. Universitätsbibliothek: Karlsruhe, Hannover, 2015.
- /GRS 13/ Software Management Group: Maßbahmen zur Qualitätssicherung bei der Erstellung von Computerprogrammen in der GRS (QM-richtlinien Programmentwicklung). QM-Handbuch, Teil 3: FA 03 "Fachliche Qualitätssicherung von Arbeitsergebnissen", Anlage IV, 8 S., Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 21. November 2013.
- /HER 88/ Herbert, A.W., Jackson, C.P., Lever, D.A.: Coupled Groundwater Flow and Solute Transport with Fluid Density Strongly Dependent on Concentration, Water Resources Research, Bd. 24, Nr. 10, S. 1781–1795, DOI 10.1029/WR024i010p01781, 1988.
- /HOT 16a/ Hotzel, S., Eckel, J., Fischer, H., Navarro, M.: Test Handbook for the Code TOUGH2-GRS, GRS-402, ISBN 978-3-944161-83-9, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Köln, 2016.
- /HOT 16b/ Hotzel, S., Navarro, M., Seher, H.: QS-Handbuch für den Programmcode TOUGH2-GRS, GRS-401, ISBN 978-3-944161-82-2, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Köln, 2016.
- /JAV 00a/ Javeri, V.: Analysen zum Nuklidtransport bei salzanteilabhängiger Adsorption in einem heterogenen porösen Medium mit dem Rechenprogramm TOUGH2, Hrsg.: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-A-2757, 34 S.: Köln, Januar 2000.

- /JAV 00b/ Javeri, V., Pörtl, B.: Vergleichende Analysen zur Grundwasserströmung bei variabler Salinität mit den Rechenprogrammen d3f und TOUGH2, Hrsg.: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-A-2857, 25 S.: Köln, Dezember 2000.
- /KIE 16/ Kienzler, B., Schäfer, T., Bracke, G.: Conceptual ideas about the radio-geochemical monitoring in deep borehole disposal. In: Proceedings of the Workshop "Final Disposal in Deep Boreholes Using Multiple Geological Barriers: Digging Deeper for safety" Juni 2015, Berlin. GRS-405, Hrsg: Bracke, G., Hurst, S., Merkel, B., Müller, B., Schilling, F., S. 231–250, ISBN 978-3-944161-87-7, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Köln, März 2016.
- /KOC 16a/ Kock, I., Frieling, G.: Fluidströmung und Radionuklidtransport in komplexen Endlagerbergwerken, GRS-399, ISBN 978-3-944161-80-8, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Köln, 2016.
- /KOC 16b/ Kock, I., Navarro, M., Frieling, G., Hotzel, S., Seher, H., Lambers, L., Fischer, H., Weyand, T.: Zweiphasenfluss in einem salinaren Endlager am Beispiel des ERAM. Abschlussbericht, GRS-404, ISBN 978-3-944161-85-3, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Köln, 2016.
- /KOM 16/ Kommission Lagerung hoch radioaktiver Abfallstoffe: Abschlussbericht der Kommission Lagerung hoch radioaktiver Abfallstoffe, K-Drs. 268, 683 S.: Berlin, 30. August 2016.
- /LAR 13/ Larue, J., Baltés, B., Fischer, H., Frieling, G., Kock, I., Navarro, M., Seher, H.: Radiologische Konsequenzenanalyse. Bericht zum Arbeitspaket 10, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben, GRS-289, 267 S., ISBN 978-3-939355-65-6, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 2013.
- /LAR 16/ Larue, J., Mayer, K.-M.: Untersuchungen zum Transportverhalten von Schadstoffen in Süß-/Salzwassersystemen unter Berücksichtigung von Dichteunterschieden, GRS-436, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, ISBN 978-3-946607-18-2: Köln, 2016.

- /LEI 92/ Leijnse, T.: Comparison of solution methods for coupled flow and transport in porous media. In: Computational Methods in Water Resources IX. Two Volume Set. Hrsg: Russell, T.F., Ewing, R.E., Brebbia, C.A., Gray, W.G., Pinder, G.F., S. 273–280, ISBN 978-1851668717, Springer, 1992.
- /MAR 02/ Martens, K.-H., Fischer, H., Romstedt, P.: Beschreibung des Rechenprogrammes MARNIE, GRS-A-3027, 135 S., Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 1. Januar 2002.
- /MAY 16/ Mayer, K.-M., Seher, H., Bracke, G., Moog, H.C.: An approach for a simplified calculation of the density of brines, Goldschmidt Conference Abstracts 2016, Nr. 2019: Yokohama, Japan, July 2016.
- /MOO 15/ Moog, H.C., Bok, F., Marquardt, C.M., Brendler, V.: Disposal of nuclear waste in host rock formations featuring high-saline solutions – Implementation of a thermodynamic reference database (THEREDA), Applied Geochemistry, Bd. 55, S. 72–84, DOI 10.1016/j.apgeochem.2014.12.016, 2015.
- /MOO 16/ Moog, H.C.: Thermodynamic database for iron in high-saline, aqueous systems. Entwurf. Fertigstellung geplant in 2017, GRS-438, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, ISBN 978-3-946607-20-5: Braunschweig, 2016.
- /NAV 16/ Navarro, M., Eckel, J.: TOUGH2-GRS Version 01 User Manual, GRS-403, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, ISBN 978-3-944161-84-6, 2016.
- /NEC 09/ Neck, V., Altmaier, M., Rabung, T., Lützenkirchen, J., Fanghänel, T.: Thermodynamics of trivalent actinides and neodymium in NaCl, MgCl<sub>2</sub>, and CaCl<sub>2</sub> solutions. Solubility, hydrolysis, and ternary Ca-M(III)-OH complexes, Pure and Applied Chemistry, Bd. 81, Nr. 9, S. 1555–1568, DOI 10.1351/PAC-CON-08-09-05, 2009.
- /PRU 99/ Pruess, K., Oldenburg, C., Moridis, G.: TOUGH2 User's Guide, Version 2.0, LBNL-43134, 198 S., Lawrence Berkeley National Laboratory (LBNL): Berkeley, California, USA, 1. November 1999, revised September 2012.

- /PAR 13/ Parkhurst, D.L., Appelo, C.A.J.: Description of input and examples for PHREEQC version 3. A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations, U.S. Geological Survey Techniques and Methods 6-A43, 497 S., U.S. Department of the Interior, U.S. Geological Survey: Denver, 2013.
- /SCH 04/ Schneider, A., Fein, E.: Modelling density-driven flow using d3f, 18th Salt Water Intrusion Meeting, S. 127–138, Salt Water Intrusion Meeting: Cartagena, Spain, 31.05. - 03.06.2004.
- /SEH 05/ Seher, H.: Gegendiffusionsexperimente zur Bildung sekundärer Eisen(II)-Phasen aus wässrigen Lösungen in einer chemisch inerten porösen Polyethylenmatrix. Experimentelle Validierung geochemischer Modellrechnungen. Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (UKA): Karlsruhe, 22.11.2005.
- /SEH 15/ Seher, H., Weyand, T., Bracke, G., Fischer, H., Moog, H.C.: Iron diffusion in a porous medium. Reactive transport modeling with different codes, Migration Conference 2015: Santa Fe, New Mexico, 13. - 18. September 2015.
- /SEH 16a/ Seher, H., Beuth, T., Bracke, G., Kock, I., Mayer, K.-M., Moog, H.C., Uhlmann, S., Weyand, T.: Weiterentwicklung des internationalen Stands von Wissenschaft und Technik zu Methoden und Werkzeugen für Betriebs- und Langzeitsicherheitsnachweise. Abschlussbericht, GRS-429, 33 S., ISBN 978-3-946607-11-3, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Köln, 2016.
- /SEH 16b/ Seher, H., Bracke, G., Weyand, T.: How to implement temperature-dependent Pitzer interaction coefficients into TOUGHREACT?, Goldschmidt Conference Abstracts 2016, Nr. 2791: Yokohama, Japan, July 2016.
- /SEH 16c/ Seher, H., Navarro, M.: SITA, version 0.1.a. A simulation and code testing assistant for TOUGH2 and MARNIE, GRS-400, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, ISBN 978-3-944161-81-5: Köln, 2016.

- /SEH 16d/ Seher, H., Weyand, T., Bracke, G.: Anwendung thermodynamischer Daten aus THEREDA mit TOUGHREACT, GRS-435, ISBN 978-3-946607-17-5, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Köln, 2016.
- /SEI 15/ Seidel, T., König, C.M.: Verifizierung der dreidimensionalen, dichteabhängigen Stofftransportberechnung. XTRA, Hrsg.: delta h Ingenieurgesellschaft mbH, interner Bericht an die GRS, 9. Juni 2015.
- /THO 14/ Thoenen, T., Hummel, W., Berner, U., Curti, E.: The PSI/Nagra Chemical Thermodynamic Database 12/07, PSI Bericht, Hrsg.: Paul Scherrer Institut (PSI), 14-04, 416 S.: Villingen, Switzerland, Dezember 2014.
- /VOG 96/ Vogel, P., Schelkes, K.: Modelling of brine transport in an aquifer crossing the Gorleben salt dome. Influence of initial conditions and hydrogeological settings. Posterpräsentation, Sammlung der Vorträge anlässlich der Abschlussveranstaltung am 7. und 8. Dezember 1995 in Karlsruhe, Sammlung der Vorträge anlässlich der Abschlussveranstaltung am 7. und 8. Dezember 1995 in Karlsruhe: Karlsruhe, Dezember 1995.
- /WEI 16/ Weisbrod, N., Yechieli, Y., Shandalov, S., Lensky, N.: On the viscosity of natural hyper-saline solutions and its importance. The Dead Sea brines, Journal of Hydrology, Bd. 532, S. 46–51, DOI 10.1016/j.jhydrol.2015.11.036, 2016.
- /WEY 15/ Weyand, T., Bracke, G., Reichert, B.: A one-dimensional transport model of CO<sub>2</sub> in highly saline solutions in a final repository for radioactive waste, Goldschmidt Conference Abstracts, Nr. 3304: Prag, Tschechien, 2015.
- /WEY 16a/ Weyand, T., Bracke, G., Seher, H.: Determining the speciation of radionuclides of high-level radioactive waste using different geochemical codes, Goldschmidt Conference Abstracts, Nr. 3403: Yokohama, Japan, July 2016.

/WEY 16b/ Weyand, T., Bracke, G., Seher, H.: Modellierung zur Speziation von Radionukliden in Abfallgebinden mit hoch radioaktiven Abfällen, GRS-427,

ISBN 978-3-946607-09-0, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Köln, 2016.

/WOL 03/ Wolery, T.W., Jarek, R.L.: Software User's Manual EQ 3/6. Version 8.0, U.S. Department of Energy (DOE): Las Vegas, 1. Januar 2003.

## Abbildungsverzeichnis

Abb. 2.1	Schematischer Ablauf der Konvertierung von thermodynamischen Daten aus THEREDA für TOUGHREACT /SEH 16d/ .....	11
Abb. 2.2	Experimentelle Fe-Stoffmenge und numerisch bestimmte Fe-Festphasen im porösen Medium .....	14
Abb. A.3.1	Auszug aus den „Sicherheitsanforderungen“ /BMU 10/ .....	46
Abb. A.3.2	Auszug aus den schwedischen Regularien (SSMFS 2008:21) /SSM 08/ .. ..	49



## **A Anhang: Beitrag zur atw – Internationale Zeitschrift für Kernenergie**

**Arbeitskreis:**

**"Szenarientwicklung"**

**Position des Arbeitskreises zum Thema:**

**Anforderungen an die Methode zur Ableitung von  
Szenarien für ein Endlager für radioaktive Abfälle**

**Verfasser:**

Thomas Beuth

**Kontakt:**

Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH

## **Kurzfassung**

Der sichere Einschluss von radioaktiven Abfällen in einem Endlager ist im Rahmen eines Langzeitsicherheitsnachweises zu belegen. Hierbei werden u. a. numerische Analysen durchgeführt. Voraussetzung hierfür sind Vorstellungen zur zukünftigen Entwicklung des Endlagersystems. Die tatsächliche Entwicklung des Endlagersystems lässt sich allerdings für den Nachweiszeitraum nicht belastbar in allen Einzelaspekten und Details prognostizieren. Daher werden in einer Szenarienentwicklung die sicherheitsrelevanten Entwicklungen eines Endlagersystems abgeleitet. Die Szenarienentwicklung bildet eine wesentliche Komponente in Sicherheitsuntersuchungen, die für potenzielle Endlagerstandorte im Standortauswahlprozess und bei entsprechender Standortfestlegung nach bestimmten Phasen und ggf. Perioden eines Endlagervorhabens durchzuführen sind. In diesem Zusammenhang stellt sich die Frage nach den Erfordernissen oder möglichen Vorzügen einer universellen, für unterschiedliche Phasen des Auswahlverfahrens sowie für unterschiedliche Standorte, Wirtsgesteine, Sicherheits- und Endlagerkonzepte anwendbaren bzw. übertragbaren Methode zur Ableitung von Szenarien. Hierzu wurden eine Reihe von Anforderungen identifiziert, die sich einerseits auf Eigenschaften/ Leistungsvermögen und andererseits auf Qualitätsmerkmale/ Qualitätseinschätzung einer entsprechenden Methode ausrichten. So soll die Methode u. a. eine systematische Vorgehensweise beinhalten, möglichst wenige subjektive Entscheidungsprozesse erfordern und eine Einordnung der entwickelten Szenarien in Wahrscheinlichkeitsklassen erlauben. Anhand von zu identifizierenden Qualitätsmerkmalen soll eine Einschätzung in Bezug auf eine umfassende Szenarienentwicklung ermöglicht werden.

## **Abstract**

The safe containment of radioactive waste in a disposal system has to be proven in the Safety Case. This has to be done inter alia by numerical analyses. In this respect, it is a prerequisite to know how the disposal system will develop over time. However, the real development of the disposal system cannot be predicted in detail. Therefore, the safety relevant scenarios will be derived in the so called scenario development. The scenario development is an essential component in safety analyses which have to be performed for potential disposal sites in the site selection process and if a disposal site is selected after certain phases and periods. In this context, the question arises of what would be the requirements and assets of a universal method that can be applied in the different phases of the site selection process as well as for different sites, host rocks, and safety and disposal concepts for the development of scenarios. To answer this question, a set of requirements were identified which focus on one hand on properties/ performance and on the other hand on quality characteristics/ quality evaluation of an appropriate method. In this respect, a method is to include inter alia a systematic procedure, require as few as possible subjective decisions and allow a classification of developed scenarios in probability classes. In terms of a comprehensive scenario development, a respective evaluation is to be facilitated by quality characteristics which have to be identified.

## **A.1 Motivation/ Sachstand zur Thematik**

Die in Bezug auf die Endlagerung von radioaktiven Abfällen vorliegenden regulatorischen Grundlagen in Form von Gesetzen, Verordnungen, Richtlinien, Sicherheitsanforderungen etc. geben die zu beachtenden allgemeinen und spezifischen Rahmenbedingungen bzw. Anforderungen vor. Insbesondere die Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle /BMU 10/, die im Folgenden kurz „Sicherheitsanforderungen“ /BMU 10/ genannt werden, beinhalten spezifische Vorgaben. Die „Sicherheitsanforderungen“ /BMU 10/ umfassen einige Aspekte die sich auf die Szenarientwicklung für die Nachverschlussphase beziehen. Anforderungen hinsichtlich der Entwicklung und Anwendung einer Methode zur systematischen Ableitung von Szenarien werden jedoch nicht erhoben.

Eine Anforderung in /BMU 10/ ist, dass der sichere Einschluss von radioaktiven Abfällen in einem Endlager im Rahmen eines Langzeitsicherheitsnachweises zu belegen ist. Dazu wird unter Einbeziehung der zeitlichen Veränderungen, die ein Standort und das Endlagersystem in dem zugrundeliegenden Nachweiszeitraum erfahren können, nachgewiesen, dass die „Sicherheitsanforderungen“ /BMU 10/ eingehalten werden. Dabei stellen numerische Analysen in den Sicherheitsuntersuchungen mit der Berechnung von verschiedenen Indikatorwerten wichtige Elemente dar. Voraussetzung für die Durchführung dieser numerischen Analysen sind Vorstellungen zur zukünftigen Entwicklung des Endlagersystems. In der Realität wird ein Standort mitsamt einem Endlager zukünftig genau eine Entwicklung durchlaufen. Trotz der umfangreichen Kenntnisse der verschiedenen Einflussfaktoren kann diese tatsächliche Entwicklung des Endlagersystems für den Nachweiszeitraum nicht belastbar in allen Einzelaspekten und Details prognostiziert werden. Aus diesem Grund wird auf der Basis einer systematischen Analyse relevanter Einflussfaktoren eine begrenzte Anzahl schlüssiger Zukunftsbilder entworfen. Dies geschieht mit Hilfe einer Szenarientwicklung, deren Ziel die Identifizierung, ausführliche Beschreibung und Auswahl von Szenarien zu möglichen Entwicklungen des Endlagersystems ist, die für eine zuverlässige Beurteilung der Sicherheit relevant sind.

Die Szenarientwicklung bildet somit eine wesentliche Komponente in Sicherheitsuntersuchungen, die für potenzielle Endlagerstandorte im Standortauswahlprozess und bei entsprechender Standortfestlegung nach bestimmten Phasen und ggf. Perioden eines Endlagervorhabens durchzuführen sind.

So werden im Rahmen des Standortauswahlgesetzes /SAG 13/ für die zu erkundenden Standortregionen und Standorte vorläufige Sicherheitsuntersuchungen für die Betriebsphase und die Nachverschlussphase gefordert, die im abschließenden Standortvergleich und dem Standortvorschlag zu berücksichtigen sind. In diesem Zusammenhang stellt sich die Frage nach den Erfordernissen oder möglichen Vorzügen einer universellen, für unterschiedliche Phasen des Auswahlverfahrens sowie für unterschiedliche Standorte, Wirtsgesteine, Sicherheits- und Endlagerkonzepte anwendbaren bzw. übertragbaren Methode zur Ableitung von Szenarien. Aber auch die allgemeinen Anforderungen an eine solche Methode in Bezug auf die Qualität sowie die Möglichkeiten zur Beurteilung dieser Merkmale sind bisher nicht thematisiert. Ebenfalls von Interesse ist die Klärung der Fragestellung, in wie weit die Qualität des Ergebnisses, das mit einer entsprechenden Methode produziert wurde, verifiziert bzw. eingeschätzt werden kann.

Ein ebenso mit der Szenarienentwicklung verbundenes und vieldiskutiertes Thema beinhaltet die Darstellung und Vermittlung der potenziellen Entwicklungen eines Endlagersystems. In diesem Zusammenhang werden immer wieder allgemeine Forderungen hinsichtlich Nachvollziehbarkeit, Reproduzierbarkeit und Vollständigkeit der den Sicherheitsanalysen zugrunde liegenden Szenarien genannt. Darüber hinaus vertritt der Arbeitskreis die Auffassung, dass eine methodische Vorgehensweise als unterstützendes Element in der öffentlichen Diskussion einen wesentlichen Beitrag leistet.

Welche Anforderungen an eine methodische Vorgehensweise zur Ableitung von Szenarien für Endlager zur Bewertung ihrer Sicherheit in der Nachverschlussphase zu stellen sind, wird in der nachfolgenden Position des Arbeitskreises „Szenarienentwicklung“<sup>1</sup> dargestellt.

---

<sup>1</sup> Teilnehmer des Arbeitskreises zum Zeitpunkt der Erstellung des Positionspapiers:  
Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Orzechowski, J.; Stolzenberg, G.; Wollrath, J.;  
Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR): Mrugalla, S.; Weber, J. R.;  
Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB): Böttcher, I.;  
DBE Technology GmbH (DBE TEC): Lommerzheim, A.;  
Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit gGmbH (GRS): Beuth, T.; Bracke, G.; Mönig, J.; Rübel, A.; Wolf, J. W.;  
Karlsruher Institut für Technologie – Institut für Nukleare Entsorgung (KIT-INE): Metz, V.; Schäfer, T.;  
Technische Universität Clausthal - Institut für Endlagerforschung: Chaudry, S.; Plischke, E.; Röhlig, K.-J.;

## **A.2 Position des Arbeitskreises**

### **Anspruch**

Die für eine Szenarienentwicklung anzuwendende Methode soll aufbauend auf den zum Endlagersystem vorhandenen Informationen die systematische Vorgehensweise zur Ableitung von Szenarien und deren Einordnung in Wahrscheinlichkeitsklassen ermöglichen.

### **Randbedingung**

Die Festlegungen zur Methode sollen nur soweit im Detail ausgeführt werden, dass eine standort- bzw. projektspezifische Anpassung jederzeit durchführbar bleibt bzw. machbar ist.

### **Begriffsbestimmungen**

Methode:

Eine Methode ist eine systematische Vorgehensweise, die unter gegebenen Bedingungen die Erreichung eines Zieles mit einer festgelegten Schrittfolge beschreibt.

Nachvollziehbarkeit:

Nachvollziehbarkeit ist die Möglichkeit der Rückverfolgung und des Verstehens einer Entscheidung, einer Argumentation, eines Vorgehens oder eines Verhaltens über eine bestimmte Entwicklung.

Reproduzierbarkeit:

Die Reproduzierbarkeit ist die Möglichkeit übereinstimmende Ergebnisse bei gleichen Rand- und Ausgangsbedingungen wieder zu erzielen.

Vollständigkeit:

Vollständigkeit ist dadurch gekennzeichnet, dass die zugrunde liegende Menge (Ausgangs-, Zwischen- oder Zielmenge) alle zugehörigen möglichen Elemente, z. B. Aspekte, Einflüsse und Entwicklungen, enthält.

Umfassend:

Unter dem Begriff umfassend ist die Einbeziehung aller zugehörigen relevanten Elemente aus der möglichen Menge zu verstehen.

Transparenz:

Die Transparenz ist durch eine umfassende Offenlegung und eindeutige Darstellung einer Handlung bzw. Vorgehensweise gekennzeichnet.

### **A.3 Anforderungen an die Szenarientwicklung und Einfluss auf die Methode**

Hinsichtlich der Spezifizierung von Anforderungen an eine Methode zur Ableitung von Szenarien ist es essenziell insbesondere diejenigen Anforderungen, die seitens des Regelwerks an die Szenarientwicklung gestellt werden, zu berücksichtigen. Insbesondere die „Sicherheitsanforderungen“ /BMU 10/ gehen in einigen Anforderungen auf die Szenarientwicklung ein. Diese beziehen sich auf die Aspekte Durchführung einer Szenarientwicklung (A), Berücksichtigung bestimmter Entwicklungen (B) und Umgang mit Szenarien (C). Hinsichtlich der Entwicklung und Anwendung einer Methode zur systematischen Ableitung von Szenarien werden jedoch keine spezifischen Anforderungen erhoben. In Tab. A.3.1 werden die Anforderungen gemäß den „Sicherheitsanforderungen“ /BMU 10/ und der Bezug zu den o. g. Aspekten, die im Kontext (implizit und explizit) mit der Szenarientwicklung stehen, kurz benannt. Anforderungen mit implizitem Kontext beinhalten einen indirekten Bezug zu Szenarientwicklung, Szenarien oder den Umgang mit Szenarien. Als Beispiel hierfür ist die Anforderung 5.1 in den „Sicherheitsanforderungen“ /BMU 10/ zu nennen, die die Optimierung auf der Basis von Sicherheitsanalysen fordert, wobei die Szenarientwicklung eine Komponente der Sicherheitsanalysen darstellt. Der explizite Kontext ist dadurch gekennzeichnet, dass dieser Aussagen und Informationen, die in direkter Verbindung mit der Szenarientwicklung, Szenarien oder dem Umgang mit Szenarien stehen, beinhaltet. Ein Beispiel hierfür ist die Anforderung 7.2 in den „Sicherheitsanforderungen“ /BMU 10/, die zum Nachweis der Langzeitsicherheit eine umfassende Identifizierung und Analyse sicherheitsrelevanter Szenarien fordert.

**Tab. A.3.1** Auflistung der „Sicherheitsanforderungen“ /BMU 10/, die im Zusammenhang mit der Szenarientwicklung, unter Nennung des Aspektbezugs (A= Szenarientwicklung, B = Berücksichtigung bestimmter Entwicklungen, C = Umgang mit Szenarien), stehen

<b>Kapitel</b>	<b>Beschreibung</b>	<b>Aspekt (A, B, C)</b>
5.1	Optimierung des Endlagerkonzeptes auf der Basis von Sicherheitsanalysen	A
5.2	Zukünftige menschliche Aktivitäten	B
6.2	Nachweis für wahrscheinliche Entwicklungen	B
6.3	Nachweis für weniger wahrscheinliche Entwicklungen	B
6.4	Unwahrscheinliche Entwicklungen	B
6.5	Entwicklungen aufgrund eines unbeabsichtigten Eindringens	B
7.2	Nachweis der Langzeitsicherheit (umfassende Identifizierung und Analyse sicherheitsrelevanter Szenarien)	A
7.2.1	Langzeitaussage zur Integrität (für wahrscheinliche Entwicklungen)	B
7.2.2	Radiologische Langzeitaussage (für wahrscheinliche und weniger wahrscheinliche Entwicklungen)	B
7.2.4	Kritikalitätsausschluss für wahrscheinliche und weniger wahrscheinliche Entwicklungen	B
7.3	Numerische Analyse (deterministische Rechnungen, zusätzlich Unsicherheits- und Sensitivitätsanalysen, Referenzbiosphäre)	C
8.6	Handhabbarkeit der Abfallbehälter für wahrscheinliche Entwicklungen	B
10.1	Dokumentation (Prognosen für Entwicklungen, Nachweise für Betriebssicherheit und Langzeitsicherheit)	C
10.2	Informationserhalt als Schutz vor menschlichen Eingriffen	C

Aus den in Tab. A.3.1 genannten Sicherheitsanforderungen können sich Anforderungen an eine Methode zur Ableitung von Szenarien ergeben. Im Folgenden werden die wesentlichen Einflussgrößen aus den Sicherheitsanforderungen auf eine Methode zur Ableitung von Szenarien herausgestellt:

Die Sicherheitsanforderung 7.2 in den „Sicherheitsanforderungen“ /BMU 10/ fordert zum Nachweis der Langzeitsicherheit die Durchführung einer umfassenden Sicherheitsanalyse vor jeder wesentlichen Festlegung. Ein wesentlicher Bestandteil der Sicherheitsanalyse ist dabei die umfassende Identifizierung und Analyse sicherheitsrelevanter Szenarien und ihre Einordnung in die Wahrscheinlichkeitsklassen.

In den Sicherheitsanalysen sind unterschiedliche Entwicklungen (Abb. A.3.1) zu berücksichtigen:

- Wahrscheinliche Entwicklungen,
- Weniger wahrscheinliche Entwicklungen,
- Unwahrscheinliche Entwicklungen und
- Entwicklungen aufgrund eines unbeabsichtigten menschlichen Eindringens.

6.2 Für die Nachverschlussphase ist nachzuweisen, dass für wahrscheinliche Entwicklungen durch Freisetzung von Radionukliden, die aus den eingelagerten radioaktiven Abfällen stammen, für Einzelpersonen der Bevölkerung nur eine zusätzliche effektive Dosis im Bereich von 10 Mikrosievert im Jahr auftreten kann. Dabei sind Einzelpersonen mit einer heutigen Lebenserwartung, die während der gesamten Lebenszeit exponiert werden, zu betrachten.

6.3 Für weniger wahrscheinliche Entwicklungen in der Nachverschlussphase ist nachzuweisen, dass die durch Freisetzung von Radionukliden, die aus den eingelagerten radioaktiven Abfällen stammen, verursachte zusätzliche effektive Dosis für die dadurch betroffenen Menschen 0,1 Millisievert pro Jahr nicht überschreitet. Dabei sind ebenfalls Einzelpersonen mit einer heutigen Lebenserwartung, die während der gesamten Lebenszeit exponiert werden, zu betrachten.

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

6.4 Für unwahrscheinliche Entwicklungen wird kein Wert für zumutbare Risiken oder zumutbare Strahlenexpositionen festgelegt. Soweit diese Entwicklungen aber zu hohen Strahlenexpositionen führen können, ist im Rahmen der Optimierung zu prüfen, ob eine Reduzierung dieser Auswirkungen mit vertretbarem Aufwand möglich ist. Hierdurch darf die Optimierung bezogen auf die anderen Entwicklungen jedoch nicht beeinträchtigt werden.

Unwahrscheinliche Entwicklungen sind Entwicklungen, deren Eintreten am Standort selbst unter ungünstigen Annahmen nicht erwartet wird und die bei vergleichbaren Standorten oder vergleichbaren geologischen Situationen nicht beobachtet wurden. Zustände und Entwicklungen für technische Komponenten, die durch zu treffende Maßnahmen praktisch ausgeschlossen werden können sowie das gleichzeitige unabhängige Versagen von mehreren Komponenten werden den unwahrscheinlichen Entwicklungen zugeordnet.

6.5 Für Entwicklungen aufgrund eines unbeabsichtigten Eindringens in den einschlusswirksamen Gebirgsbereich wird kein Wert für zumutbare Risiken oder zumutbare Strahlenexpositionen festgelegt.

**Abb. A.3.1** Auszug aus den „Sicherheitsanforderungen“ /BMU 10/

Hinsichtlich der letztgenannten Gruppe von Entwicklungen besteht Konsens darüber, dass eine verlässliche Prognose zukünftiger menschlicher Aktivitäten nicht möglich ist /IAEA 12/, /NEA 12/, /EU 11/, /AKS 08/, /BMU 10/ und /GRS 12/. Dieser Umstand ist allerdings mit dem Anspruch an eine Methode, die eine systematische Vorgehensweise zur Ableitung von Szenarien ermöglichen soll, nicht vereinbar. Aus diesem Grunde ist die Berücksichtigung von Entwicklungen auf der Basis eines unbeabsichtigten menschlichen Eindringens in ein Endlager nicht Gegenstand der zu betrachtenden Methode, die in diesem Dokument im Fokus steht. Derartige Entwicklungen sind separat von den anderen o. g. Entwicklungen zu behandeln /EU 11/, /AKS 08/ und /GRS 12/. Dies korrespondiert auch mit den Aussagen der „Sicherheitsanforderungen“ /BMU 10/ zu derartigen Szenarien (Kapitel 5.2: Nachrangigkeit der Optimierung bzgl. zukünftiger menschlicher Aktivitäten).

Bei den unwahrscheinlichen Entwicklungen verhält es sich ähnlich, da gemäß der Definition nach den „Sicherheitsanforderungen“ /BMU 10/ (siehe 6.4 in Abb. A.3.1) im Prinzip unendlich viele, oft hoch spekulative, dieser Entwicklungen in Frage kommen, was eine methodische und umfassende Erfassung verhindert. Ein geringer Teil der unwahrscheinlichen Entwicklungen lässt sich vermutlich auch im Rahmen einer systematischen Szenarienentwicklung erschließen, wie z. B. die Betrachtung von unwahrscheinlichen Ausprägungen oder unwahrscheinliches Eintreten von Prozessen und/ oder Ereignissen. Der weitaus größere Teil, der gemäß der „Sicherheitsanforderungen“ /BMU 10/ zu berücksichtigen sein wird, bezieht sich auf Entwicklungen, die nicht bei vergleichbaren Standorten oder vergleichbaren geologischen Situationen beobachtet wurden. Solche Entwicklungen lassen sich mit einem systematischen Ansatz nicht erfassen. Auch erscheint eine Optimierung des Endlagersystems mit Blick auf hoch spekulative Entwicklungen nicht sinnvoll.

Aus diesen Gründen kommt der Arbeitskreis zu dem Schluss, die unwahrscheinlichen Entwicklungen separat von den anderen Entwicklungen zu behandeln. So könnten beispielsweise verschiedene Varianten hinsichtlich eines gleichzeitigen Ausfalls mehrerer technischer und/oder geotechnischer Barrieren für weitere Sicherheits- oder auch Robustheitsbetrachtungen des Endlagersystems zugrunde gelegt werden. Insbesondere diejenigen Betrachtungen, die auf die Robustheit des Systems abzielen, werden häufig von verschiedenen Nationen unter verschiedenen Begriffen wie z. B. „What-if cases“, „What-if scenarios“, „Very unlikely scenarios“ und „Residual scenarios“ geführt und analysiert /NEA 16/.

Unter Berücksichtigung der genannten Aspekte wird an die Methode die Anforderung gestellt, dass durch deren Anwendung eine umfassende Ableitung von sicherheitsrelevanten Szenarien ermöglicht werden soll. Die sicherheitsrelevanten Szenarien müssen dabei wahrscheinliche und weniger wahrscheinliche Entwicklungen umfassen.

### **Anwendbarkeit und Qualitätseinschätzung**

Vor Anwendung der Methode ist zu prüfen und zu dokumentieren, ob es Einschränkungen hinsichtlich der Anwendbarkeit gibt, z. B. in Bezug auf das Wirtsgestein und Sicherheitskonzept. Weiterhin ist zu prüfen, ob die für die Methode erforderlichen Grundlagen (z. B. Standortbeschreibung und Endlagerkonzept) vorliegen. Die Qualität dieser Informationen ist hinsichtlich des Standortbezugs und der Ungewissheiten zu bewerten und zu dokumentieren.

Die mittels der Methode abzuleitenden Szenarien sollen die sicherheitsrelevanten Entwicklungen des Endlagersystems über den in Sicherheitsanalysen zugrunde zu legenden Nachweiszeitraum umfassen.

Um die Qualität einer Methode beurteilen zu können, sind anerkannte Qualitätsmerkmale als Beurteilungsgrößen festzulegen. Solche Qualitätsmerkmale können z. B. Plausibilität, Nachvollziehbarkeit und Reproduzierbarkeit von Ergebnissen, die Dokumentation der Methode, die Transparenz damit verbundener Entscheidungsprozesse und die Vermittelbarkeit des Vorgehens gegenüber verschiedenen Zielgruppen sein. So wird von der IAEA /IAEA 12/ unter dem Aspekt der Integration von Sicherheitsargumenten die detaillierte Diskussion hinsichtlich Qualität und Verlässlichkeit von Sicherheitsuntersuchungen inklusive der Szenarienentwicklung für erforderlich erachtet.

Die getrennte Anwendung einer Methode von unterschiedlichen Expertengruppen auf die gleiche Fragestellung kann ebenso Hinweise für eine umfassende Ableitung von Szenarien und die potenzielle Identifizierung von anwendungsspezifischen Abhängigkeiten bzw. Einflussgrößen auf das Resultat geben.

Es besteht internationaler Konsens, dass die Vollständigkeit der abgeleiteten Szenarien nicht nachgewiesen werden kann /NEA 16/. Auch der Nachweis, dass eine Ableitung von sicherheitsrelevanten Entwicklungen umfassend erfolgt ist, wird vermutlich nur sehr schwer zu führen sein. Gleichwohl sollten Qualitätsmerkmale identifiziert werden, die eine Einschätzung der Szenarienentwicklung als umfassend ermöglichen.

So wird in der Synopsis aus dem Workshop der OECD/NEA zur Szenarientwicklung /NEA 16/ folgendes zur Thematik "umfassend" ausgeführt:

- "reasonable measures have been taken to minimise the possibility that potentially significant phenomena have been overlooked"
- „ensuring that the set of scenarios is sufficient for the application at hand and that no important phenomena or uncertainties have been overlooked“

Die generellen Möglichkeiten zur Einschätzung, ob eine Ableitung von Szenarien umfassend ist, stützen sich auf die Verwendung systematischer Methoden bei der Szenarientwicklung unter Einbeziehung der wissenschaftlichen Expertise, die Diskussion der Szenarien mit der nationalen und internationalen Fachwelt sowie interne und externe Überprüfungen (Reviews). Ein Qualitätsmerkmal ist dann gegeben, wenn im Rahmen dieser Diskussionen und Überprüfungen die abgeleiteten Szenarien bestätigt werden und keine grundsätzlich abweichenden und insbesondere keine zusätzlichen sicherheitsrelevanten Szenarien aufkommen.

Zusätzlich kann die Anwendung von methodisch unterschiedlichen Ansätzen auf die gleiche Fragestellung (Endlagersystem, Rahmenbedingungen) zur Einschätzung einer umfassenden Szenarientwicklung hilfreich sein, wenn diese im Ergebnis z. B. die abgeleiteten Szenarien quantitativ und qualitativ bestätigen.

In den schwedischen Regularien (SSMFS 2008:21) /SSM 08/ werden ähnliche Vorgehensweisen für Berechnungsmodelle gemäß der o. g. Optionen bereits gefordert (Abb. A.3.2).

“... In cases where there is doubt as to the applicability of a model, several models should be used to illustrate the impact of the uncertainty involved in the choice of model.”

“... Consequently, the estimates should be substantiated through the use of several methods, for example assessments by several independent experts. ...”

**Abb. A.3.2** Auszug aus den schwedischen Regularien (SSMFS 2008:21) /SSM 08/

Um zu prüfen, ob der Vergleich der Ergebnisse durch die Anwendung diversitärer Methoden oder verschiedener Expertengruppen zielführend ist, sollen die folgenden Fragen in zukünftigen Forschungsarbeiten behandelt werden:

- Wann gelten zwei Methoden als unterschiedlich, welche gemeinsamen Eckpfeiler sind zu definieren?
- Welche Aussagen können getroffen bzw. Schlüsse gezogen werden, wenn die unterschiedlichen Methoden oder Expertengruppen zu gleichen/ ähnlichen/ unterschiedlichen Ergebnissen gelangen?
- Reichen zwei unterschiedliche Methoden bzw. zwei Expertengruppen aus?
- Kann eine Prüfmethode entwickelt werden, mit der der Einfluss von Vorwissen/ Vorurteilen der Anwender einer Methode auf das Ergebnis identifiziert werden kann?
- Wie kann bzw. soll mit Expertendissens umgegangen werden?
- Welche Randbedingungen (Datenbasis, Informationsstand, Grundlagen usw.) sind für die Durchführung beider Optionen festzulegen?

### **Einschätzungs- und Entscheidungsprozesse**

Die Ableitung von Szenarien unter Zugrundlegung einer systematischen Vorgehensweise beinhaltet keinen inhärenten Automatismus, der die sicherheitsrelevanten Szenarien selbständig generiert oder identifiziert. Bereits zu Beginn der methodischen Anwendung sind Grundlagen bereitzustellen bzw. Randbedingungen festzulegen, wie z. B. eine mögliche Klimaentwicklung, die in vielerlei Hinsicht fachliche Einschätzungen und Entscheidungen abverlangen. Aber auch der Weg zur Ableitung von Szenarien ist teilweise mit der fachlichen Auseinandersetzung zu äußerst komplexen Prozessen mit einer Vielzahl von Einflussgrößen verbunden. Hierbei wird insbesondere zur Einschätzung von einflussnehmenden Faktoren auf das Endlagersystem und deren Wechselwirkungen sowie zur Beurteilung zeitlicher Einwirkungen und des Verhaltens von Barrieren über lange Zeiträume der interdisziplinäre Austausch von Expertenwissen unumgänglich.

Die Anwendung der Methoden zur Entwicklung von Szenarien wird daher von zu treffenden unvermeidbaren Entscheidungen, meist auf der Grundlage von fachlichen Beurteilungen, begleitet sein. Derartige Entscheidungen enthalten einen subjektiven Charakter, der auf aus der Anwendung der Methode das resultierende Ergebnis Einfluss nehmen kann. Eine Methode sollte daher auf entbehrliche Entscheidungsprozesse verzichten bzw. vermeidbare Entscheidungsprozesse umgehen. Die mit der Methode verbundenen subjektiven Entscheidungen sind darzulegen und ausführlich zu dokumentieren, wobei größtmögliche Transparenz und Nachvollziehbarkeit anzustreben ist. Die Dokumentation soll auch auf eine mit einer Entscheidung verbundene mögliche

Fehleinschätzung eingehen und die möglichen Konsequenzen daraus aufzeigen. Möglicher Dissens bei der Entscheidungsfindung ist aufzuzeigen und soweit als möglich in seinen Konsequenzen insbesondere in Bezug auf die Sicherheit zu würdigen.

### **Übertragbarkeit der Methode auf unterschiedliche Gegebenheiten**

Eine Anwendbarkeit der Methode auf unterschiedliche geologische Standortbedingungen sowie Sicherheits- und Endlagerkonzepte ist anzustreben.

Die Vorzüge einer solchen Methode sind vor allem in einer vereinheitlichten Vorgehensweise zu sehen, die sich insbesondere bei einer wiederholenden Anwendung der Methode z. B. zu den unterschiedlichen Phasen der Standorterkundung und der Endlagerentwicklung positiv auswirken. Darüber hinaus lassen sich Anwendungsfehler durch den geübten bzw. erprobten Umgang und damit kumulierten Erfahrungsschatz mit einer entsprechenden Methode reduzieren.

Auch bei der Beurteilung und dem Vergleich von Endlagerstandorten wirkt sich eine übertragbare Methode vorteilhaft aus. Die Vermittelbarkeit und Nachvollziehbarkeit von abgeleiteten Szenarien für verschiedene Standorte wird erleichtert. Insgesamt vereinfacht sich die Kommunikation bzw. der Informationsaustausch zwischen den verschiedenen an der Szenarientwicklung beteiligten Institutionen bzw. Personengruppen wie auch mit anderen am Verfahren beteiligten sowie mit der interessierten Öffentlichkeit.

#### **A.4 Zusammenfassung**

Eine wesentliche Grundlage für den Nachweis der Langzeitsicherheit eines Endlagers für radioaktive Abfälle ist die Szenarienentwicklung, in der potenzielle zukünftige Entwicklungen des Endlagersystems (Szenarien) abgeleitet werden.

Um dem Anspruch an Transparenz und Nachvollziehbarkeit in einem Sicherheitsnachweis zu entsprechen, ist eine systematische Vorgehensweise zur Ableitung von Szenarien erforderlich. Das Standortauswahlgesetz sieht in mehreren Phasen die Durchführung von vorläufigen Sicherheitsuntersuchungen vor. Daher liegt es nahe eine Methode vorzuhalten, die sich auf unterschiedliche geologische Gegebenheiten sowie Sicherheits- und Endlagerkonzepte anwenden lässt.

In dem vorliegenden Positionspapier des Arbeitskreises werden Anforderungen an die Methode zur Ableitung von Szenarien für ein Endlager für radioaktive Abfälle eingehend diskutiert. Die Diskussion beinhaltet Aspekte, die sich auf einen grundlegenden Anspruch an eine entsprechende Methode, unter Beachtung möglicher Randbedingungen und Sicherheitsanforderungen, beziehen.

Ein weiterer Teil der Diskussion reflektiert die Anwendbarkeit der Methode und die Möglichkeiten zur Qualitätseinschätzung des Ergebnisses in Form von Szenarien. In diesem Zusammenhang hat sich der Arbeitskreis auch mit dem unvermeidbaren Einfluss durch subjektive Entscheidungsfindungen im Prozess der Szenarienentwicklung auseinandergesetzt.

Die Ausführungen zur Methode beinhalten nicht die Entwicklungen auf der Grundlage von menschlichen Einwirkungen und unwahrscheinliche Szenarien.

Die wesentlichen Ergebnisse aus der Diskussion, die im Konsens erzielt wurden, sind im Folgenden in komprimierter Form getrennt nach Anforderungen zu Eigenschaften/ Leistungsvermögen und zu Qualitätsmerkmalen/ Qualitätseinschätzung der Methode aufgeführt:

## **Eigenschaften/ Leistungsvermögen**

Die Methode soll

- eine systematische Vorgehensweise zur Entwicklung von Szenarien beinhalten,
- möglichst wenige subjektive Entscheidungsprozesse enthalten,
- Maßnahmen zur Systematisierung, Offenlegung und Dokumentation von Entscheidungen beinhalten,
- die Einordnung entwickelter Szenarien in Wahrscheinlichkeitsklassen erlauben,
- den zugrunde gelegten Nachweiszeitraum abdecken,
- eine umfassende Ableitung von sicherheitsrelevanten Szenarien ermöglichen,
- wahrscheinliche und weniger wahrscheinliche Entwicklungen umfassen und
- nach Möglichkeit auf unterschiedliche Gegebenheiten bzw. Situationen übertragbar und anwendbar sowie flexibel sein gegenüber möglichen standort- bzw. projektspezifischen Anpassungen.

## **Qualitätsmerkmale/ Qualitätseinschätzung**

Zur Qualitätseinschätzung der Methode sollen

- Qualitätsmerkmale als generelle Beurteilungsgrößen festgelegt werden,
- Qualitätsmerkmale identifiziert werden, die eine Einschätzung der Szenarientwicklung als umfassend ermöglichen,
- nationale und internationale Überprüfungen bzw. Reviews zur Szenarientwicklung und deren wissenschaftlichen Grundlagen vorgenommen werden,
- Forschungs- und Entwicklungsarbeiten aufgenommen werden,
  - die die Anwendbarkeit von methodisch unterschiedlichen Ansätzen auf die gleiche Fragestellung beinhalten und
  - die die getrennte Anwendung einer Methode von unterschiedlichen Expertengruppen zum Gegenstand haben.

## A.5 Referenzen

- /AKS 08/ Beuth, T., Baltés, B., Keller, S., Kienzler, B., Krone, J., Mönig, J., Navarro, M., Preuss, J., Röhlig, K.-J., Schäfer, S., Weber, J.R., Wollrath, J.: Position des Arbeitskreises „Szenarientwicklung“: Behandlung des menschlichen Eindringens in ein Endlager für radioaktive Abfälle in tiefen geologischen Formationen, Arbeitskreis „Szenarientwicklung“, atw 53. Jg. (2008) Heft 8/9 – August/September.
- /BMU 10/ BMUB, Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle, Stand 30. September 2010.
- /EU 11/ PAMINA, Performance Assessment Methodologies in Application to Guide the Development of the Safety Case; European Handbook of the state-of-the-art of safety assessments of geological repositories-Part 1 DELIVERABLE (D-N°: 1.1.4); January 2011
- /GRS 98/ Baltés, B.; Röhlig, K.-J.: Szenarienanalysen im Rahmen des Nachweises der Langzeitsicherheit von Endlagern für radioaktive Abfälle, GRS-A-2633, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, November 1998.
- /GRS 12/ Beuth T.; Bracke G.; Buhmann D.; Dresbach C.; Keller S.; Krone J.; Lommerzheim A.; Mönig J.; Mrugalla S.; Rübél A.; Wolf J.: Szenarientwicklung: Methodik und Anwendung. Bericht zum Arbeitspaket 8, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben. GRS-284, ISBN 978-3-939355-60-1, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 2012.
- /NEA 12/ OECD/NEA, Methods for Safety Assessment of Geological Disposal Facilities – Outcomes of the NEA MeSA Initiative, NEA 6923, 2012
- /NEA 16/ OECD/NEA, IGSC Scenario Development Workshop, Synopsis, 1-3 June 2015, NEA Offices, Issy-les-Moulineaux, France (Status unpublished draft).

- /IAEA 12/ IAEA Safety Standards Series No. SSG-23, The Safety Case And Safety Assessment For The Disposal Of Radioactive Waste, Specific Safety Guide, IAEA Vienna 2012.
- /SAG 13/ Gesetz zur Suche und Auswahl eines Standortes für ein Endlager für Wärme entwickelnde radioaktive Abfälle und zur Änderung anderer Gesetze (Standortauswahlgesetz – StandAG), 2013.
- /SSM 08/ Swedish Radiation Safety Authority Regulatory Code SSMFS 2008:21: The Swedish Radiation Safety Authority's regulations and general advice concerning safety in connection with the disposal of nuclear material and nuclear waste, ISSN 2000-0987, December 2008.

**Gesellschaft für Anlagen-  
und Reaktorsicherheit  
(GRS) gGmbH**

Schwertnergasse 1  
**50667 Köln**

Telefon +49 221 2068-0

Telefax +49 221 2068-888

Boltzmannstraße 14

**85748 Garching b. München**

Telefon +49 89 32004-0

Telefax +49 89 32004-300

Kurfürstendamm 200

**10719 Berlin**

Telefon +49 30 88589-0

Telefax +49 30 88589-111

Theodor-Heuss-Straße 4

**38122 Braunschweig**

Telefon +49 531 8012-0

Telefax +49 531 8012-200

[www.grs.de](http://www.grs.de)