



BASE – FORSCHUNGSBERICHTE ZUR
SICHERHEIT DER NUKLEAREN ENTSORGUNG

Kombinierte Analyse sicherheitsrelevanter Aspekte aus Sicht der Zwischenlagerung und der Endlagerung hochradioaktiver Abfälle unter Berücksichtigung längerer Zeiten der Zwischenlagerung (KombiLyse)

Vorhaben 4719F10701

AUFTRAGNEHMER:IN
Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH

Oliver Bartos, Klemens Hummelsheim, Juliane Krüger, Johannes Nicol,
Florian Rowold, Florence-Nathalie Sentuc, Margarita Tzivaki



Kombinierte Analyse sicherheitsrelevanter Aspekte aus Sicht der Zwischenlagerung und der Endlagerung hochradioaktiver Abfälle unter Berücksichtigung längerer Zeiten der Zwischenlagerung (KombiLyse)

Dieser Band enthält einen Ergebnisbericht eines vom Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung in Auftrag gegebenen Untersuchungsvorhabens. Verantwortlich für den Inhalt sind allein die Autor:innen. Das BASE übernimmt keine Gewähr für die Richtigkeit, die Genauigkeit und Vollständigkeit der Angaben sowie die Beachtung privater Rechte Dritter. Der Auftraggeber behält sich alle Rechte vor. Insbesondere darf dieser Bericht nur mit seiner Zustimmung ganz oder teilweise vervielfältigt werden.

*Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der Auftragnehmer:in wieder
und muss nicht mit der des BASE übereinstimmen.*

BASE-005/25

Bitte beziehen Sie sich beim Zitieren dieses Dokumentes immer auf folgende URN:
urn:nbn:de:0221-2025040451251

Berlin, November 2024

Impressum

**Bundesamt
für die Sicherheit
der nuklearen Entsorgung
(BASE)**

BASE – FORSCHUNGSBERICHTE ZUR
SICHERHEIT DER NUKLEAREN ENTSORGUNG

Auftragnehmer:in
Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH

Oliver Bartos, Klemens Hummelsheim, Juliane Krüger, Johannes Nicol,
Florian Rowold, Florence-Nathalie Sentuc, Margarita Tzivaki

030 184321-0
www.base.bund.de

Stand: November 2024

GZ: F 3 – BASE – BASE62120/13#0008/005

Vorhaben 4719F10701
(KombiLyse)

Abschlussbericht

Bartos, Oliver
Hummelsheim, Klemens
Krüger, Juliane
Nicol, Johannes
Rowold, Florian
Sentuc, Florence-Nathalie
Tzivaki, Margarita

November 2024
4719F10701

Anmerkung:

Das diesem Bericht zugrunde liegende Vorhaben wurde vom Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung (BASE) beauftragt. Die Arbeiten wurden von der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH ausgeführt. Die Verantwortung für den Inhalt liegt bei der GRS.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der GRS wieder und muss nicht mit der Meinung des Bundesamtes für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung (BASE) übereinstimmen.

Deskriptoren

Zwischenlagerung, Transport- und Lagerbehälter, Alterungseffekte, Schädigungsmechanismen, Inventarverhalten, Endlagerung, Endlagerkonzepte, Korrosion, Barrieren, Parameterstudie, Quellterm, Radionuklidmobilität, Handlungsoptionen

Zusammenfassung

Hintergrund

In Deutschland wurde die Kernenergie rund 60 Jahre zur Stromerzeugung genutzt, ehe die letzten Kernkraftwerke im April 2023 abgeschaltet wurden. Es kamen Druck- (DWR) und Siedewasserreaktoren (SWR) westlicher Bauart zum Einsatz. In der ehemaligen DDR wurden DWR sowjetischer Bauart, sog. Wasser-Wasser-Energie-Reaktoren (WWER) zur Stromerzeugung genutzt. Neben den kommerziellen Leistungsreaktoren wurden in Deutschland eine Vielzahl von Prototyp- und Versuchsreaktoren betrieben, wie z. B. die zwei mit Helium gekühlten und mit Grafit moderierten Kugelhaufenreaktoren: der Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor (AVR) und der Thorium-Hoch-Temperatur-Reaktor (THTR). Ebenso waren und sind immer noch mehrere Forschungsreaktoren verschiedenen Typs in Deutschland in Betrieb. Die verwendeten Brennelemente basieren auf Uranoxid (UOX) oder Uran-Plutonium-Mischoxid (MOX) als Brennstoff, welcher sich in keramischer Form befindet oder in einer spezifischen Matrix eingebettet ist.

Nach dem Einsatz im Kernkraftwerk wurden bestrahlte DWR-, SWR- und WWER-Brennelemente zunächst in den Abklingbecken der Anlage unter Wasserbedeckung (nass) gelagert. Bis zum Jahr 2005 stand den Kernkraftwerksbetreibern der Weg der Entsorgung über die Wiederaufarbeitung im Ausland offen. Das bei der Aufarbeitung der bestrahlten Brennelemente abgetrennte und zurückgewonnene Plutonium wurde dem Brennstoffkreislauf in Form von MOX-Brennelementen wieder zugeführt. Die dabei angefallenen radioaktiven Abfälle aus der Aufarbeitung, wie Spaltstoffe und Actinoide, wurden verglast und müssen nach Deutschland zurückgeführt werden. Diese Rückführung ist noch nicht vollständig abgeschlossen. Mit der in den 1960er Jahren errichteten Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) wurde solch eine Anlage auch in Deutschland, wenn auch nur als Pilotanlage, betrieben. In der WAK wurden von 1971 bis 1990 über 200 Mg Kernbrennstoffe aus verschiedenen Versuchs- und Leistungsreaktoren aufgearbeitet. Im Jahr 1991 wurde der Wiederaufarbeitungsbetrieb eingestellt.

Der nationale Entsorgungsplan für Deutschland sieht eine Endlagerung von bestrahltem Kernbrennstoff und Abfällen aus der Wiederaufarbeitung in tiefen geologischen Schichten vor. Bis zur Endlagerung werden die bestrahlten Brennelemente in unfallsichere, dickwandige Transport- und Lagerbehälter (TLB) verpackt. Verglaste radioaktive Abfälle aus der Wiederaufarbeitung und Brennelemente aus den Forschungs- und Versuchsreaktoren werden ebenfalls trocken in speziell entwickelten TLB verpackt und zwischengelagert. Die TLB lagern an den Standorten der Kernkraftwerke (Standortzwischenla-

ger), in den zentralen Zwischenlagern Gorleben und Ahaus sowie im Zwischenlager Nord. Die Zwischenlagerung ist aufgrund ursprünglicher Planungen der Verfügbarkeit eines Endlagers rein regulatorisch (nicht technisch bedingt) auf 40 Jahre beschränkt worden. Die Genehmigungen der Zwischenlager laufen daher zwischen 2034 und 2047 aus.

Mit dem Standortauswahlgesetz (StandAG) von 2013 (alte Fassung, Novellierung des StandAG in 2017) wurde die Endlagersuche in Deutschland neu gestartet, um in einem mehrphasigen, wissenschaftsbasierten und transparenten Verfahren einen Standort für ein geologisches Endlager zu finden. Im Herbst 2020 hat die Bundesgesellschaft für Endlagerung (BGE) den ersten Arbeitsstand, den *Zwischenbericht Teilgebiete*, in dem 90 Gebiete ausgewiesen sind, vorgelegt. Als Teilgebiete sind im Sinne des StandAG Gebiete zu verstehen, die günstige geologische Voraussetzungen für die sichere Endlagerung hochradioaktiver Abfälle erwarten lassen. Als potenzielles Wirtsgestein für ein Endlager kommen in Deutschland Salz, Ton und Kristallin in Betracht. Ein Endlagerstandort soll nach derzeitigen Schätzungen in den 2040er bis 2060er Jahren (Rahmenterminplan der BGE) gefunden werden. Anschließend ist die ober- und untertägige Errichtung zu realisieren ehe mit der Einlagerung der Abfälle begonnen werden kann.

Aufgrund der Tatsache, dass ein Endlager für hochradioaktive Abfälle nicht rechtzeitig vor Ablauf der derzeitigen Zwischenlagereignisgenehmigungen zur Verfügung stehen wird, ist eine Zwischenlagerung der Inventare über die genehmigten 40 Jahre hinaus erforderlich. Für die Verlängerung der Lagerdauer bzw. die Neugenehmigung ist der Nachweis der Sicherheit der Zwischenlagerung über die 40 Jahre hinaus erforderlich. Dabei sind Alterungseffekte und mögliche Schädigungsmechanismen aller relevanten Komponenten und des Inventars zu betrachten. Die Endlagerfähigkeit der radioaktiven Abfälle wird bei den bestehenden Genehmigungen zur Zwischenlagerung auf Basis der Anforderungen gemäß § 6 AtG bisher nur indirekt betrachtet, d. h. diese erfolgt fokussiert auf die Handhabbarkeit des Behälters sowie den Ausschluss eines systematischen Versagens der Hüllrohre. Die Auswirkungen der Zwischenlagerung selbst sowie die Auswirkungen möglicher Maßnahmen während der Zwischenlagerung auf das Verhalten der Inventare im Endlager sind bisher nicht Gegenstand der Genehmigungen.

Zur Realisierung erster Schritte in Richtung einer kombinierten Betrachtungsweise, die zunächst aus den unterschiedlichen Blickwinkeln heraus die Auswirkungen einer verlängerten Zwischenlagerung, die Einflüsse auf die Radionuklidmobilität im Endlager sowie anschließend die unterschiedlichen Handlungsoptionen mit ihren jeweiligen Rück-

kopplungen betrachtet, dient das Vorhaben *KombiLyse* („Kombinierte Analyse sicherheitsrelevanter Aspekte aus Sicht der Zwischenlagerung und der Endlagerung hochradioaktiver Abfälle unter Berücksichtigung längerer Zeiten der Zwischenlagerung“).

Der Fokus des Vorhabens lag hierbei auf der Untersuchung und Bewertung wissenschaftlich-technischer Sachverhalte zu möglichen Alterungseffekten in der Zwischenlagerung mit Bezug auf die Radionuklidmobilisierung und -mobilität im Endlager. Auf Basis der Analyse möglicher Entwicklungen und hypothetischer Szenarien wurden Handlungsoptionen abgeleitet und die Auswirkungen im Hinblick auf die Zwischenlagerung, die Handhabbarkeit, die Radionuklidmobilität und den Strahlenschutz bewertet. Die methodische Vorgehensweise und die erzielten Ergebnisse sind nachfolgend zusammengefasst wiedergegeben.

Aktueller Stand von Wissenschaft & Technik

Als Basis für die Analysen zur Zwischenlagerung und zur Radionuklidmobilität im Endlager wurde eine umfangreiche Literaturrecherche durchgeführt, in der die grundlegenden und möglichen Alterungseffekte und Schädigungsmechanismen der TLB sowie der Inventare dargestellt und in Bezug auf die Situation in Deutschland bewertet wurden. Zusätzlich wurde eine Übertragbarkeitsbetrachtung der im internationalen Kontext laufenden Prüf- und Untersuchungsprogramme zum Material- und Komponentenverhalten durchgeführt. Anhand der Recherchen wurden Wissenslücken identifiziert, dokumentiert und zusätzlicher Forschungsbedarf abgeleitet.

Aus dem Betrieb der Kernenergienutzung und Forschung werden in Deutschland rund 1.900 Behälter mit bestrahlten Brennelementen und hochradioaktiven verglasten Abfällen anfallen. Stand 31. Dezember 2019 waren 14 unterschiedliche Bauarttypen der Behälter im Einsatz. Da sich das grundlegende Design der Bauarttypen gleicht, war eine übergeordnete Betrachtung der wesentlichen sicherheitsrelevanten Komponenten möglich. Die Recherche zu den Alterungs- und Schädigungsmechanismen bei den TLB bezog sich auf den Behälterkörper, das Deckeldichtungssystem samt seines Überwachungssystems, die Deckelbolzen, die verbauten Moderatorelemente und den Tragkorb sowie die Vorkehrungen zur Gewährleistung der Unterkritikalität. Unter Alterungseffekten versteht man im Allgemeinen die Veränderung von strukturellen oder geometrischen Eigenschaften eines Bauteils über die Zeit infolge des Einflusses von Temperatur, Strahlung, mechanischen (Wechsel-)Lasten oder chemischen Reaktionen. Alterungseffekte lassen sich bei den zugänglichen Komponenten bspw. durch Inspektionen im Rahmen vorgeschriebener wiederkehrender Prüfungen feststellen, wobei die Minimierung der

Strahlenbelastung des Personals zu berücksichtigen ist. Die Verfolgung von Alterungsvorgängen nicht zugänglicher Komponenten ist durch zusätzliche Forschungsprogramme zu begleiten. Dies kann auch im Rahmen internationaler Forschung erfolgen, wenn die Übertragbarkeit für die jeweilige Komponente gegeben ist. Dem Dichtungssystem fällt im Hinblick auf den sicheren Einschluss von Radionukliden während der Zwischenlagerung eine Schlüsselrolle zu. Es wird daher mit einem austauschbaren Überwachungssystem kontinuierlich auf seine Funktionsfähigkeit überprüft. Daneben wurden fortlaufende Forschungsprogramme aufgelegt, um die Alterung und die Auswirkungen auf die Dichtungen für längere Lagerzeiten zu untersuchen.

Zwischenlageranalyse

Für die möglichen Alterungseffekte und Schädigungsmechanismen beim Inventar wurden die Brennstoff- bzw. Abfallmatrix und die zugehörige Umschließung, z. B. Hüllrohre oder Edelstahlkannen, betrachtet. Die wesentlichen Effekte, welche die Eigenschaften der Umschließungen beeinflussen können, sind das Kriechen, die Oxidation, die Versprödung durch Wasserstoff und Hydridreorientierung sowie weitere mögliche Änderungen der Materialstruktur bspw. infolge des Strahlungseinflusses. Für die Brennstoff- und Abfallmatrix stellen das infolge der radioaktiven Alpha-Zerfälle gebildete Helium und das Schwellen die potenziellen degradierenden Effekte dar.

Um die temperatur-, spannungs- und strahlungsinduzierten Alterungseffekte besser einzuschätzen, wurden für verschiedene Inventar-Behälter-Kombinationen anhand von Abbrandrechnungen, thermischen und mechanischen Analysen sowie verfügbaren Literaturdaten exemplarische Temperatur-, Spannungs- und Aktivitätsverläufe über eine Lagerzeit von 100 Jahren ermittelt. Die thermischen Analysen zeigten über alle Inventargruppen hinweg Temperaturniveaus, die keine unzulässigen temperaturgetriebenen Effekte und somit keine signifikanten negativen Einflüsse auf das Materialverhalten während einer verlängerten Zwischenlagerung erwarten lassen. Bei Brennstoffen aus Leistungs- und Forschungsreaktoren wirkt die ionisierende Strahlung während der (verlängerten) Zwischenlagerung weiter auf die Umschließungen und die Brennstoffmatrix ein, jedoch ist das Niveau um Größenordnungen geringer als während der Einsatzzeit im Reaktor. Die über die Lagerzeit hinzukommenden strahlungsinduzierten Auswirkungen auf das Material werden folglich als gering eingeschätzt. Oxidationsvorgänge der Umschließungen über das bisher genehmigte Maß hinaus, können während der verlängerten Zwischenlagerung ausgeschlossen werden, sofern kein zusätzlicher Sauerstoff Zutritt, der Behälter also weiterhin den dichten Einschluss gewährleistet.

Es lässt sich zusammenfassend feststellen, dass nach dem aktuellen Wissensstand derzeit keine Hinweise auf ein systematisches Versagen von Hüllrohren, Umschließungen oder Barrieren der betrachteten Brennstoffe während einer verlängerten Zwischenlagerung bis 100 Jahre bestehen. Die vorhandenen Daten- und Wissenslücken, welche in dem Forschungsvorhaben aufgearbeitet und beschrieben worden sind, müssen jedoch noch geschlossen werden, um bestehende Unsicherheiten in der Bewertung zu minimieren.

Zusätzlich wurden hypothetische Szenarien für alle Inventargruppen analysiert, in denen durch die Einwirkung von Temperatur und Strahlung, sowie durch die Auswirkungen des radioaktiven Zerfalls eine Beeinträchtigung der Integrität der Umschließung unterstellt wird. Grundsätzlich ist festzuhalten, dass die Auswirkung solcher hypothetischen Szenarien während der Zwischenlagerung derzeit nicht ohne eine Öffnung des Behälters oder eine Beprobung des Behälterinnenraums detektiert werden kann.

Basierend auf den jeweiligen Szenarien wurden Handlungsoptionen während der Zwischenlagerung oder für die Konditionierung abgeleitet, welche eine weitere sichere Zwischenlagerung bzw. Handhabbarkeit gewährleisten oder wiederherstellen sollen. Des Weiteren wurden die Auswirkungen dieser Handlungsoptionen auf die Radionuklidmobilität im Endlager betrachtet.

Die wesentlichen Ergebnisse der Betrachtungen sind, dass temperaturinduzierte Effekte, die zeitlich eingeordnet oder abgeschätzt werden können, durch Gegenmaßnahmen grundsätzlich adressierbar sind. Hierzu lassen sich Maßnahmen während der Zwischenlagerung vornehmen oder es besteht die Option, die Behälter mit den Inventaren vor dem Auftreten des Effekts abzutransportieren und zu konditionieren.

Die infolge des radioaktiven Zerfalls und der Strahlung hervorgerufenen hypothetischen Auswirkungen auf die Integrität der Umschließung können zeitlich abgeschätzt, aber naturbedingt nicht aufgehalten werden. Sofern die Auswirkungen im Hinblick auf die Sicherheit einer verlängerten Zwischenlagerung nicht tolerabel sind, besteht nur die Option, die Inventare vor dem Auftreten des Effekts abzutransportieren und zu konditionieren. Es zeigt sich, dass die bisher nicht feststehenden Annahmebedingungen des Endlagers und folglich der Konditionierungsanlage Unsicherheiten bezüglich der vorgeplanten notwendigen oder überhaupt möglichen Behandlungsschritte nach sich ziehen.

Endlageranalyse

Als Referenzendlagerkonzepte wurden das ehemalige deutsche Konzept für das Wirtsgestein Salz, das Konzept der Schweiz für das Wirtsgestein Ton und das Konzept Schwedens für kristallines Wirtsgestein gewählt.

Die Literatur zu den Korrosionsprozessen der Behälter- und Hüllrohrmaterialien, der verschiedenen Brennstofftypen sowie der verglasten radioaktiven Abfälle wurde recherchiert, zusammenfassend beschrieben und ausgewertet. Dabei stellte sich heraus, dass die Temperatur sowie die Zusammensetzung und Verfügbarkeit des Lösungsmediums die maßgeblichen Einflussfaktoren für eine Korrosion im Endlager sind.

Die Literaturdaten zur Korrosionsdauer der Behälter- und Hüllrohrmaterialien (Barrieren) zeigen signifikante Unterschiede zwischen Laborversuchen und in-situ Experimenten. In den in-situ Experimenten wurden Korrosionsgeschwindigkeiten ermittelt, die ca. 10- bis 10.000-mal geringer sind als die der Laborversuche. Eine Interpolation der Literaturwerte für die Korrosionsraten ergibt eine Standzeit der Endlagerbehälter von wenigen tausend bis mehreren hunderttausend Jahren.

Die in Deutschland endzulagernden Inventare wurden stofflich und radiologisch beschrieben und es wurden mit dem Programmcode SCALE/ORIGEN Zerfallsrechnungen über einen Zeitraum von 1 Mio. Jahre ausgeführt. Es wurden bekannte Modelle zur Korrosion von LWR-Brennstoff und verglasten radioaktiven Abfällen angewendet und für die anderen Brennstofftypen eine Übersicht zu aktuellen Forschungsergebnissen zur Korrosion erstellt. Aus der *Zwischenlageranalyse* war bereits bekannt, dass die Datenbasis zu Forschungs- und Versuchsreaktorbrennstoffen unzureichend ist, weshalb kein Korrosions-Modell erstellt wurde.

Die Ableitung der Korrosionsraten der verglasten radioaktiven Abfälle (Glaskokille) erfolgte unter Verwendung eines auf experimenteller Basis erstellten kinetischen Modells aus der Literatur. In den in der Literatur beschriebenen Experimenten wurde Glaspulver kontinuierlich mit einem Fluid gespült, wodurch eine gerichtete Fließrichtung des Fluids gewährleistet war. Gemäß dem angewandten kinetischen Modell ist die Korrosionsrate direkt von der Oberfläche des Glases und der Temperatur abhängig.

Für die Berechnungen in diesem Vorhaben wurde die Temperatur aus den Temperaturfeldbetrachtungen der jeweiligen Referenzendlagerkonzepte übernommen und geht als Funktion der Zeit in die Berechnungen ein. Die Glasoberfläche stellt eine unbekannte

Größe dar, die als variabler Parameter berücksichtigt wurde. Der Zeitpunkt des initialen Kontakts mit dem Lösungsmedium (Versagen der Barrieren) wurde aus den Annahmen für die Referenzendlagerkonzepte übernommen.

Die im Endlager vorherrschende Temperatur, die einen Eingangsparameter darstellt, wird nicht direkt durch die vorangegangene Zwischenlagerung beeinflusst. Hier ist das Endlagerkonzept für das jeweilige Wirtsgestein ausschlaggebend.

Die Oberfläche der Glaskokille wird maßgeblich durch den Herstellungsprozess, insbesondere durch die anschließende Abkühlung und die damit einhergehende Rissbildung, bestimmt. Unter Berücksichtigung der Parameter, insbesondere der Temperatur und der Glasoberfläche, die in die Berechnung eingehen, ist die Korrosionsrate zeitabhängig und variabel. Die Korrosionsrate kann lediglich indirekt durch längere Zwischenlagerzeiten, d. h. durch eine Abnahme der Wärmeleistung, beeinflusst werden.

Die Berechnung der Korrosionsraten und der Dauer der Auflösung von LWR-Brennstoffen erfolgte mit einem vereinfachten radiolytischen Modell aus der Literatur. Das Modell beruht auf der Annahme, dass radiolytisch gebildetes Wasserstoffperoxid unlösliches Uran(IV) aus der Brennstoffmatrix in lösliches Uran(VI) überführt. Wasserstoffperoxid wird durch die Radiolyse von Wasser – in diesem Modell durch die Bestrahlung mit Alpha-Teilchen – gebildet. Menge und Energie der Alpha-Teilchen sind im Modell über die modellierte Alpha-Leistung (d. h. die Leistung aller emittierten Alpha-Teilchen) der Brennstoffe als eine abnehmende Funktion mit der Zeit einbezogen worden.

Weitere relevante Größen, die in das Modell einfließen, sind die strahlenchemische Ausbeute und die Oberfläche des Brennstoffs. Die strahlenchemische Ausbeute gibt die Wahrscheinlichkeit an, mit der Wasserstoffperoxid gebildet wird. Sie wurde in Anlehnung an die Literaturdaten als variabler Parameter berücksichtigt. Die Oberfläche der Brennstoffmatrix nach Bestrahlung der Brennelemente ist nicht bekannt und geht deshalb als weiterer variabler Parameter ein. Es ist davon auszugehen, dass Brennstoffe mit höherem Abbrand auch höhere Belastungen erfahren haben und somit auch eine größere Oberfläche der Brennstoffmatrix aufweisen. Der Zeitpunkt des initialen Kontaktes mit dem Lösungsmedium (Versagen der Barrieren) wurde aus den Annahmen für die Referenzendlagerkonzepte übernommen. Als Ergebnis der Arbeiten wurden für verschiedene Brennstoffe und Abbrände die Korrosionsraten und Mengen gelöster Stoffe ermittelt.

Des Weiteren ist festzuhalten, dass die strahlenchemische Ausbeute nicht von der Zwischenlagerung abhängig ist und dass die verlängerte Zwischenlagerdauer keinen signifikanten Einfluss auf die Alpha-Leistung hat. Die Oberfläche der Brennstoffe wird hauptsächlich durch den vorangegangenen Reaktorbetrieb und die hierbei erfahrenen Belastungen bestimmt. Folglich ist auch hinsichtlich der Korrosionsraten im Endlager kein relevanter Einfluss durch eine verlängerte Zwischenlagerung zu verzeichnen.

Aufgrund der Fragestellung des Vorhabens (Betrachtung der Wechselwirkung von Zwischen- und Endlagerung) als auch der vielen (derzeit) nicht exakt festzulegenden Größen, wurde ein stark vereinfachtes Modell für die Korrosion der Inventare für eine Parameterstudie erstellt. Die Ergebnisse veranschaulichen die Auswirkungen der einzelnen Parameter auf die Korrosionsrate.

Für die Modelle zur Berechnung der Korrosionsraten von verglasten radioaktiven Abfällen und bestrahlten Brennstoffen bei der Endlagerung wurden folgende Randbedingungen angenommen:

- Ein Lösungsmedium ist unbegrenzt verfügbar.
- Es herrschen konstante geochemische Bedingungen.
- Sekundäre Prozesse und Wechselwirkungen mit den geotechnischen Barrieren/Wirtsgestein wurden nicht betrachtet.

Die Radionuklidmobilisierung im Nahfeld des Endlagers ist von vielen unterschiedlichen Prozessen und Faktoren abhängig, welche primär durch die Endlagerbedingungen und die mögliche Konditionierung des Inventars vorgegeben werden.

Ableitung von Handlungsoptionen und Bewertung

Bei der *Zwischenlageranalyse* wurden mögliche temperatur-, spannungs- und strahlungsinduzierte Alterungseffekte der Materialien und des Inventars benannt und bewertet sowie vorhandene Wissenslücken aufgeführt. Demnach gibt es derzeit keine Hinweise auf ein systematisches Versagen der Hüllrohre, Umschließungen oder Barrieren während der Zwischenlagerung. Dennoch wurden hypothetische Szenarien, die aufgrund von Alterungseffekten zu einer Beeinträchtigung der Integrität der Umschließung führen und somit Einfluss auf die Radionuklidmobilität haben könnten, aufgestellt.

Im Rahmen der *Endlageranalyse* wurden relevante Prozesse für eine Radionuklidmobilisierung im Endlager benannt und dargestellt. Die Priorität lag auf der Identifikation der

möglichen Auswirkungen einer verlängerten Zwischenlagerung auf die Radionuklidmobilität im Endlager. Im Rahmen der durchgeführten Untersuchungen konnten keine direkten Auswirkungen identifiziert werden, die eine Realisierung der Referenzendlagerkonzepte unmöglich erscheinen lassen.

Auf Grundlage hypothetischen Szenarien wurden mögliche Handlungsoptionen während der Zwischenlagerung und der nachfolgenden (Endlager-)Konditionierung aufgestellt. Die Handlungsoptionen wurden im Hinblick auf

- die Radionuklidmobilität,
- den Strahlenschutz,
- die Handhabbarkeit,
- die möglichen Auswirkungen auf die Sicherheit der Zwischenlagerung, im Vergleich zum Referenzfall
- sowie die technische Umsetzbarkeit

bewertet.

Der Referenzfall für die vergleichende Betrachtung wurde wie folgt definiert: Die Inventartypen stehen in einem TLB im Zwischenlager, ohne dass die Alterungseffekte eine signifikante Auswirkung auf Materialstruktur und Geometrie der Komponenten bzw. auf Integrität und Handhabbarkeit haben. Anschließend werden die TLB abtransportiert und die Inventare in der Konditionierungsanlage in einer heißen Handhabungszelle in einen Endlagerbehälter umgeladen.

Unter der Prämisse, dass temperaturinduzierte Effekte über die Zeit oder die Manipulation der Wärmeabfuhr adressiert werden können, ergeben sich in der Zwischenlagerung die im folgenden aufgelisteten Handlungsoptionen. Diese sind

- früherer Abtransport;
- Aufheizen bzw. thermische Behandlung oder
- schonendere Prozeduren.

Die Handlungsoption des früheren Abtransports verschiedener Inventartypen an die Konditionierungseinrichtung bevor relevante degradierende Effekte zum Tragen kom-

men, gewährleistet die Handhabbarkeit der Inventare und ist rein aus transporttechnischer Sicht mit keinem Mehraufwand und nur mit geringen zusätzlichen radiologischen Auswirkungen verbunden (verglichen zu einem späteren Transport). Voraussetzung hierfür ist die rechtzeitige Bereitstellung einer Konditionierungsanlage.

Das Aufheizen der LWR-Brennelemente bzw. die Manipulation der Wärmeabfuhr über Heizmatten oder eine Isolation der Behälter zum Erhalt eines bestimmten Temperaturniveaus ist eine realistische Handlungsoption.

Für die Handlungsoption der schonenderen Abfertigungsprozedur ist die technische Machbarkeit zu prüfen. Das Zeitfenster für diese Maßnahme ist jedoch aufgrund der fortlaufenden Behälterbeladungskampagnen limitiert und allenfalls den kleineren Teil der noch in den Abklingbecken gelagerten LWR-Brennelemente anwendbar.

Für die verglasten radioaktiven Abfälle kann eine thermische Behandlung zur Manipulation der inneren Oberfläche mit Blick auf Radionuklidmobilität im Endlager in Betracht gezogen werden. Die Kokillen müssten dazu auf die Glastransformationstemperatur aufgeheizt werden. Für das Aufheizen der Kokillen innerhalb des Behälters ist die technische Machbarkeit unklar, für ein Aufheizen außerhalb des Behälters sind die Zwischenlager nicht vorgesehen bzw. ausgelegt. Alle Handlungsoptionen gehen mit zusätzlichen Personenhandlungen einher, was im Vergleich zum Referenzfall ggf. zu einer erhöhten Kollektivdosis führen kann.

In der (Endlager-)Konditionierung sind mögliche Optionen:

- frühere Anlieferung
- thermische Behandlung der Glaskokillen
- Verwendung eines Overpacks
- Verkapselung von Brennelementen
- Umverpackung
- Aufheizen und Abschrecken von LWR-Brennelementen
- Verschweißen von Kannen

Die thermische Behandlung der verglasten radioaktiven Abfälle zur Manipulation der Radionuklidmobilität im Endlager sollte aufgrund der technischen Realisierbarkeit in einer

Konditionierungsanlage anstatt in einem Zwischenlager durchgeführt werden. Die technischen Machbarkeit der Optionen Overpack, Verkapselung, Umverpackung und Verschweißen erscheint grundsätzlich durchführbar.

Die Optionen Overpack und Verkapselung sind allerdings im Hinblick auf Designanpassungen der Endlagerbehälter als eher ungünstig einzustufen. Ein Aufheizen/Abschrecken der LWR-Brennelemente im Behälter mit dem Ziel, die versprödenden Auswirkungen radialer Hydride zu negieren und eine weitere Handhabung in der Anlage zu erlauben, erscheint bei gegebener Notwendigkeit durchführbar und zielführend.

Die Nutzung der TLB als Endlagerbehälter kann zumindest für LWR- und Forschungsreaktorbrennelemente als Option dienen, wenn weitere Handhabungsvorgänge für eine Konditionierung gänzlich vermieden werden können oder sollen. In einschlägigen Fachgremien und Expertengruppen wurde dieses Konzept bereits diskutiert. Dieses Konzept ist nicht Bestandteil der Referenzendlagerkonzepte und wurde daher diese Maßnahme/Handlungsoption nicht tiefergehend betrachtet.

Im Vorhaben wurde die aktuell verfügbare Literatur verwendet und der aktuelle Diskussionsstand für Referenzendlagerkonzepte in Deutschland berücksichtigt. Nach derzeitigem Kenntnisstand gibt es keine Hinweise auf unzulässige Auswirkungen (im Rahmen der vorliegenden Genehmigung) während einer verlängerten Zwischenlagerung über den betrachteten Zeitraum von 100 Jahren.

Die abgeleiteten und dargestellten Handlungsoptionen für die Zwischenlagerung und die Konditionierung beruhen auf hypothetischen Szenarien und Annahmen und stellen daher theoretische Betrachtungen dar. Sie wurden dennoch auf Plausibilität und Umsetzbarkeit bewertet.

Eine wesentliche Erkenntnis, die sich im Vorhaben herausgestellt hat, ist der hohe Stellenwert der rückbezüglichen Auswirkungen des Endlagerkonzepts auf die vorausgehenden Entsorgungsschritte. Der Endlagerstandort, das konkrete Endlagerkonzept und insbesondere die dazugehörigen Annahmebedingungen stellen die grundsätzlichen Anforderungen an die Konditionierung der Inventare dar, woraus sich wiederum ggf. die Notwendigkeit für vorgelagerte Maßnahmen ergibt.

Bei Vorliegen eines Endlagerkonzeptes und der Rahmenbedingungen der Konditionierung sollte auf Basis des zukünftigen Standes von Wissenschaft und Technik eine

erneute Betrachtung der hier dargelegten Ergebnisse und Handlungsoptionen erfolgen. Insofern ist diese erstmalig kombinierte Betrachtung von Zwischenlagerung und Endlagerung mit Fokus auf die Radionuklidmobilisierung im Endlager im Rahmen dieses Vorhabens ein erster Schritt in diese Richtung.

Summary

Background

Nuclear energy was used to generate electricity in Germany for around 60 years before the last nuclear power plants were shut down in April 2023. Western-style pressurized water reactors (PWRs) and boiling water reactors (BWRs) were used. In the former GDR, Soviet-style PWRs, known as water-water-energy reactors (WWER), were used to generate electricity. In addition to the commercial power reactors, a large number of prototype and experimental reactors were operated in Germany, such as the two helium-cooled and graphite-moderated pebble bed reactors: the Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor (AVR) and the Thorium High Temperature Reactor (THTR). Several research reactors of various types were and still are in operation in Germany. The fuel elements used are based on uranium oxide (UOX) or uranium-plutonium mixed oxide (MOX) as fuel, which is in ceramic form or embedded in a specific matrix.

After use in the nuclear power plant, irradiated PWR, BWR and VVER fuel elements were initially stored in the plant's spent fuel pools under water cover (wet). Until 2005, nuclear power plant operators had the option of disposing of the waste via reprocessing abroad. The plutonium separated and recovered during the reprocessing of the irradiated fuel elements was returned to the fuel cycle in the form of MOX fuel elements. The resulting radioactive waste from reprocessing, such as fissile material and actinides, was vitrified and must be returned to Germany. This repatriation has not yet been fully completed. With the Karlsruhe reprocessing plant (WAK) built in the 1960s, such a plant was also operated in Germany, albeit only as a pilot plant. From 1971 to 1990, over 200 Mg of nuclear fuel from various experimental and power reactors was reprocessed at the WAK. Reprocessing operations were discontinued in 1991.

The national waste management plan for Germany provides for the disposal of irradiated nuclear fuel and waste from reprocessing in deep geological formations. Until disposal, the irradiated fuel elements are packed in accident-proof, thick-walled transport and storage (dual purpose) casks (DPC). Vitrified radioactive waste from reprocessing and fuel assemblies from the research and experimental reactors are also packed dry in specially developed DPC and stored temporarily. The DPC are stored at the sites of the nuclear power plants (on-site storage facilities), in the central storage facilities in Gorleben and Ahaus and in the storage facility North. Due to original plans for the availability of a repository, storage has been limited to 40 years purely for regulatory (not technical) reasons. The licenses of the storage facilities will therefore expire between 2034 and 2047.

With the Site Selection Act (StandAG) of 2013 (old version, amendment of the StandAG in 2017), the search for a repository in Germany was restarted in order to find a site for a geological repository in a multi-phase, science-based and transparent process. In autumn 2020, the Federal Company for Radioactive Waste Disposal (BGE) presented the first status report on sub-areas, in which 90 areas are identified. According to the StandAG, sub-areas are areas that are expected to have favorable geological conditions for the safe disposal of highly radioactive waste. In Germany, salt, clay and crystalline rock can be considered as potential host rock for a repository. According to current estimates, a repository site should be found in the 2040s to 2060s (BGE framework schedule). Subsequently, the above-ground and underground construction must be realized before the storage of the waste can begin.

Since a repository for highly radioactive waste will not be available in time before the current storage licenses expire, storage of the inventories beyond the authorized 40 years is necessary. Proof of the safety of storage beyond the 40 years is required for the extension of the storage period or the new license. Ageing effects and possible damage mechanisms of all relevant components and the inventory must be considered. The disposal capability of the radioactive waste has so far only been considered indirectly in the existing licenses for storage based on the requirements pursuant to § 6 AtG, i.e. this is focused on the manageability of the cask and the exclusion of systematic failure of the cladding tubes. The effects of storage itself and the effects of possible measures during storage on the behavior of the inventories in the repository are not yet the subject of the licenses.

The KombiLyse project ('Combined analysis of safety-relevant aspects from the perspective of storage and disposal of high-level radioactive waste under consideration of longer storage periods') serves to realize the first steps towards a combined approach, which initially considers the effects of extended storage from different perspectives, the influences on radionuclide mobility in the repository and subsequently the different options for action with their respective feedback effects.

The focus of the project was the investigation and evaluation of scientific and technical facts on possible ageing effects in storage with regard to radionuclide mobilization and radionuclide mobility in the repository. Based on the analysis of possible developments and hypothetical scenarios, options for action were derived and the consequences on storage, manageability, radionuclide mobility and radiation protection were assessed. The methodological approach and the results obtained are summarized below.

Current state of science and technology

As a basis for the analyses of storage and radionuclide mobility in the repository, an extensive literature review was carried out in which the basic and possible ageing effects and damage mechanisms of the DPC and the inventories were presented and evaluated in relation to the situation in Germany. In addition, a transferability analysis of the international testing and investigation programs on material and component behavior was performed. Based on the research, knowledge gaps were identified and documented, and additional research needs were derived.

Around 1,900 casks containing spent fuel assemblies and highly radioactive vitrified waste will accumulate in Germany as a result of nuclear energy utilization and research. As of 31 December 2019, 14 different types of casks were in use. As the basic design of the design types is similar, it was possible to take an overarching view of the main safety-relevant components. The research into the ageing and damage mechanisms of the DPC focused on the cask body, the lid sealing system including its monitoring system, the lid bolts, the moderator elements, the basket as well as the precautions to ensure subcriticality. Ageing effects are generally understood to be alterations of structural or geometric properties of a component over time due to the influence of temperature, radiation, mechanical (alternating) loads or chemical reactions. Ageing effects on accessible components can be determined by inspections as part of mandatory periodic inspections, whereby the minimization of radiation exposure to personnel must be considered. The monitoring of ageing processes of inaccessible components must be accompanied by additional research programs. This can also be achieved within the framework of international research if the transferability for the respective component is given. The sealing system plays a key role in the safe containment of radionuclides during storage; its functionality is therefore continuously checked using a replaceable monitoring system. In addition, continuous research programs for the seals have been set up to investigate ageing and its effects during longer storage periods.

Storage analysis

For the possible ageing effects and damage mechanisms of the inventory, the fuel or waste matrix and the associated containment, e.g. cladding tubes or stainless-steel cans, were analyzed. The main effects that can influence the properties of the enclosures are creep, oxidation, hydrogen embrittlement and hydride reorientation as well as other possible changes to the material structure, e.g. due to radiation. For the fuel and waste

matrix, helium formation and swelling resulting from radioactive alpha decay represent potential degrading effects.

To get a better understanding on temperature-, stress- and radiation-induced ageing effects, exemplary temperature, stress and activity curves over a storage period of 100 years were determined for various inventory and cask combinations using burn-up calculations, thermal and mechanical analyses and available literature data. The thermal analyses showed temperature levels across all inventory groups that do not indicate any unacceptable temperature-driven effects and thus no significant negative influences on the material behavior during extended storage. In the case of fuels from power and research reactors, the ionizing radiation continues to affect the enclosures and the fuel matrix during (extended) storage, but the level is orders of magnitude lower than during reactor operation. The additional radiation-induced effects on the material during the storage period are therefore estimated to be low. Oxidation processes of the enclosures beyond the previously authorized level can be ruled out during extended storage, provided that no additional oxygen enters, i.e. the cask continues to ensure its leak-tight confinement.

In summary, it can be stated that, according to the current state of knowledge, there are no indications of systematic failure of cladding tubes, enclosures or barriers of the fuels during extended storage of up to 100 years. However, the existing data and knowledge gaps, which were processed and described in the research project, still need to be closed to minimize the existing uncertainties in the assessment.

In addition, hypothetical scenarios were analyzed for all inventory groups in which the effects of temperature and radiation, as well as the effects of radioactive decay, are assumed to impair the integrity of the enclosure. It should be noted that the impact of such hypothetical scenarios during storage cannot currently be detected without opening the cask or sampling the cask interior.

Based on the respective scenarios, options for action during storage or for conditioning were derived, which should ensure or restore further safe storage or manageability. Furthermore, the effects of these options on the radionuclide mobility in the repository were analyzed.

The main results of the analyses are that temperature-induced effects that can be classified or estimated in terms of time can generally be addressed by countermeasures. For

this purpose, measures can be taken during storage or there is the option of transporting and conditioning the casks with the inventories before the effect occurs.

The hypothetical effects on the integrity of the enclosure caused by radioactive decay and radiation can be estimated in terms of time but cannot be halted due to the nature of the process. If the effects are not tolerable regarding the safety of extended storage, the only option is to transfer and condition the inventories before the effect occurs. It is evident that the yet undetermined acceptance criteria of the repository and consequently of the conditioning facility entail uncertainties regarding the treatment steps that are necessary or even possible beforehand.

Repository analysis

The former German concept for the host rock salt, the Swiss concept for the host rock clay and the Swedish concept for crystalline host rock were selected as reference repository concepts.

The literature on the corrosion processes of the cask and cladding materials, the different fuel types and the vitrified radioactive waste was researched, summarized and evaluated. It was found that the temperature and the composition and availability of the solution medium are the main factors influencing corrosion in the repository.

The literature data on the corrosion time of the container and cladding tube materials (barriers) show significant differences between laboratory tests and in-situ experiments. In the in-situ experiments, corrosion rates were determined that are approx. 10 to 10.000 times lower than those of the laboratory tests. An interpolation of the literature values for the corrosion rates results in a service life of the disposal casks of a few thousand to several hundred thousand years.

The inventories to be disposed of in Germany were described in material and radiological terms and decay calculations were carried out over a period of one million years using the SCALE/ORIGEN program code. Known models for the corrosion of LWR fuel and vitrified radioactive waste were applied and an overview of current research results on corrosion was compiled for the other fuel types. It was already known from the *storage analysis* that the data basis for research and experimental reactor fuels is insufficient, which is why no corrosion model was created.

The corrosion rates of the vitrified radioactive waste (glass mould) were derived using an experimental kinetic model from the literature. In the experiments described in the literature, glass powder was continuously rinsed with a fluid, which ensured a directional flow of the fluid. According to the kinetic model used, the corrosion rate is directly dependent on the surface area of the glass and the temperature.

For the calculations in this project, the temperature was taken from the temperature field analyses of the respective reference repository concepts and is included in the calculations as a function of time. The glass surface is an unknown quantity that was considered as a variable parameter. The time of initial contact with the solution medium (failure of the barriers) was taken from the assumptions for the reference repository concepts.

The temperature prevailing in the repository, which is an input parameter, is not directly influenced by the previous storage. The repository concept for the respective host rock is decisive here.

The surface of the glass mould is largely determined by the manufacturing process, in particular by the subsequent cooling and the associated cracking. Considering the parameters, in particular the temperature and the glass surface, which are included in the calculation, the corrosion rate is time-dependent and variable. The corrosion rate can only be indirectly influenced by longer storage times, resulting in a decrease of the thermal output.

The calculation of the corrosion rates and the duration of the dissolution of LWR fuels was carried out using a simplified radiolytic model from the literature. The model is based on the assumption that radiolytically formed hydrogen peroxide converts insoluble uranium(IV) from the fuel matrix into soluble uranium(VI). Hydrogen peroxide is formed by the radiolysis of water - in this model by irradiation with alpha particles. The quantity and energy of the alpha particles are included in the model via the modelled alpha power (i.e. the power of all emitted alpha particles) of the fuels as a decreasing function over time.

Further relevant variables that are included in the model are the radiochemical yield and the surface area of the fuel. The radiochemical yield indicates the probability with which hydrogen peroxide is formed. It was considered as a variable parameter based on the literature data. The surface area of the fuel matrix after irradiation of the fuel assemblies is not known and is therefore included as a further variable parameter. It can be assumed that fuels with higher burn-up have also experienced higher loads and therefore also

have a larger surface area of the fuel matrix. The time of initial contact with the solution medium (failure of the barriers) was taken from the assumptions for the reference repository concepts. As a result of the work, the corrosion rates and quantities of dissolved substances were determined for different fuels and burn-ups.

It should also be noted that the radiochemical yield is not dependent on storage and that the extended storage period has no significant influence on the alpha power. The surface of the fuel is mainly determined by the preceding reactor operation and the loads experienced during this. Consequently, an extended storage period does not have a significant influence on the corrosion rates in the repository.

Due to the central question of the project (consideration of the interaction of storage and disposal) as well as the many (currently) not exactly definable parameters, a highly simplified model for the corrosion of the inventories was created for a parametric study. The results illustrate the effects of the individual parameters on the corrosion rate.

The following boundary conditions were assumed for the models used to calculate the corrosion rates of vitrified radioactive waste and irradiated fuels during disposal:

- A solution medium is available in unlimited quantities
- constant geochemical conditions prevail
- secondary processes and interactions with the geotechnical barriers/host rock were not considered

Radionuclide mobilization in the near field of the repository depends on many different processes and factors, which are primarily determined by the repository conditions and the possible conditioning of the inventory.

Derivation of options for action and evaluation

In the *storage analysis*, possible temperature-, stress- and radiation-induced ageing effects of the materials and the inventory were identified and evaluated, and existing knowledge gaps were listed. Accordingly, there are currently no indications of systematic failure of the cladding tubes, enclosures, or barriers during storage. Nevertheless, hypothetical scenarios were established that could lead to an impairment of the integrity of the enclosure due to ageing effects and thus have an influence on radionuclide mobility.

As part of the *repository analysis*, relevant processes for radionuclide mobilization in the repository were identified and presented. Priority was given to identifying the possible effects of extended storage on radionuclide mobilization in the repository. The investigations carried out did not identify any direct effects that would make the realization of the reference repository concepts appear impossible.

Based on hypothetical scenarios, possible options for action during storage and subsequent conditioning were developed. The options for action were analyzed regarding

- radionuclide mobility,
- radiation protection,
- manageability,
- the possible effects on the safety of storage, in comparison to the reference case
- and the technical feasibility.

The reference case for the comparative analysis was defined as follows: The inventory types are placed in a DPC for storage without the ageing effects having a significant impact on the material structure and geometry of the components or on integrity and manageability. Subsequently, the DPC are transported to the conditioning plant and the inventories are reloaded into a disposal cask in a hot cell.

Assuming that temperature-induced effects can be addressed by the time of their occurrence or by manipulating heat dissipation, the options for action listed below arise in storage:

- earlier transport of DPC to conditioning
- heating or thermal treatment
- gentler drying procedures

The option of transporting different inventory types to the conditioning facility, earlier before relevant degrading effects become effective, ensures the manageability of the inventories and, from a purely transport-related point of view, does not involve any additional effort and only minor additional radiological effects (compared to later transport). The prerequisite for this action is the timely provision of a conditioning facility.

Heating up the LWR fuel elements or manipulating the heat dissipation via heating mats or insulating the casks to maintain a certain temperature level is a realistic option.

The technical feasibility of the option of a gentler drying procedure must be examined. However, the time window for this measure is limited due to the ongoing cask loading campaigns and can only be used for the small proportion of the remaining wet stored LWR fuel assemblies in the cooling ponds.

For vitrified radioactive waste, thermal treatment can be considered to manipulate the inner surface to address the radionuclide mobility in the repository. The moulds would have to be heated to the glass transformation temperature for this purpose. The technical feasibility of heating the moulds inside the casks is unclear; the storage facilities are not intended or designed for heating the outer side of the casks. All options are associated with additional personal actions, which may lead to an increased collective dose compared to the reference case.

In regard to the conditioning for disposal, a number of potential options have been identified, including:

- Earlier delivery
- Thermal treatment of the glass canisters
- Use of an overpack
- Encapsulation of fuel elements
- Repackaging
- Heating and quenching of LWR fuel elements
- Welding of cans

The thermal treatment of vitrified radioactive waste for the purpose of manipulating radionuclide mobility within the repository should be conducted in a conditioning facility, rather than an storage facility, due to the prevailing technical feasibility. The technical feasibility of the overpack, encapsulation, repackaging and welding options appears to be realisable in principle.

Nevertheless, the overpack and encapsulation options are to be regarded as relatively disadvantageous with respect to the design adaptations of the disposal casks. The heating and quenching of LWR fuel elements within the cask, with the objective of negating the embrittling effects of radial hydrides and facilitating further handling within the facility, appears to be a feasible and expedient approach, should it be necessary.

The utilisation of the DPC as a disposal cask represents a potential option to consider, particularly for LWR and research reactor fuel assemblies, provided that additional handling processes for conditioning can or should be entirely circumvented. This concept has already been deliberated within relevant technical committees and expert groups. However, it is not a component of the reference disposal concepts, and thus this measure/option was not subjected to a comprehensive examination.

The project at hand reverts to the actual available literature and took into account the current state of discussions regarding reference repository concepts in Germany. Based on the available evidence, there are no indications that extended storage would result in unacceptable impacts within the scope of the present licence or over the considered period of 100 years.

The options for action derived and presented for storage and conditioning are based on hypothetical scenarios and assumptions and, as such, represent theoretical considerations. Nevertheless, they were assessed for plausibility and feasibility.

A principal outcome of the project is the recognition of the pivotal role played by the repository concept in shaping the previous waste management steps. The repository site, the specific repository concept and, in particular, the associated acceptance criteria represent the fundamental prerequisites for the conditioning of the inventories.

When the decision for the final disposal concept is made and the boundary conditions for conditioning are set, a renewed assessment of the presented results and options for action should be performed with regard to the future state of the art of science and technology. In this sense, this project at hand, with its first-time combined consideration of storage and disposal with regard to the radionuclide mobilization in the repository, represents a first step in this direction.

Inhaltsverzeichnis

	Zusammenfassung	I
	Summary	XIII
1	Einleitung, Aufgabenstellung und Zielsetzung.....	1
2	Stand von Wissenschaft und Technik.....	5
2.1	Transport- und Lagerbehälter	5
2.1.1	Behälterkörper	8
2.1.2	Deckeldichtungssystem	9
2.1.3	Dichtheitsüberwachung.....	10
2.1.4	Deckelbolzen	11
2.1.5	Moderator	11
2.1.6	Tragkorb	13
2.1.7	Gewährleistung der Unterkritikalität	15
2.1.8	Zusammenfassung und Bewertung.....	15
2.2	Inventare	17
2.2.1	LWR-Brennelemente	18
2.2.2	WWER-Brennelemente.....	22
2.2.3	Brennelemente aus Versuchs- und Forschungsreaktoren.....	23
2.2.4	Verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung	30
2.2.5	Zusammenfassung und Bewertung.....	34
2.3	Internationale Untersuchungsprogramme	36
2.3.1	Used Fuel Disposition Campaign	37
2.3.2	Transportuntersuchungen.....	40
2.3.3	Demonstrationsprogramme mit beladenen Behältern	42
2.4	Radionuklidmobilität und -mobilisierung im Endlager	45
2.4.1	Aufbereitung und Darstellung ausgewählter Endlagerkonzepte	45
2.4.2	Behälterkonzepte.....	52
2.4.3	Endlagerkonzept im Tonstein	53
2.4.4	Endlagerkonzept im Kristallin, KBS-3, Schweden	63

2.4.5	Endlagerkonzept im Steinsalz.....	71
2.4.6	Radionuklidinventar	76
2.4.7	Radionuklidmobilisierung im Nahfeld – Quellterm.....	79
2.4.8	Quellterm in deutschen Sicherheitsanalysen	82
2.4.9	Zusammenfassung und Schlussfolgerung	93
3	Zwischenlageranalyse.....	95
3.1	Auswahl konkreter Beladungen von Transport- und Lagerbehältern.....	95
3.1.1	LWR-Brennelemente	96
3.1.2	WWER-Brennelemente.....	100
3.1.3	Brennelemente aus Versuchs- und Forschungsreaktoren.....	102
3.1.4	Verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung	114
3.2	Betrachtungen zum Inventarverhalten	115
3.2.1	LWR-Brennelemente	116
3.2.2	WWER-Brennelemente.....	126
3.2.3	Brennelemente aus Versuchs- und Forschungsreaktoren.....	128
3.2.4	Verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung	131
3.3	Optionen unterschiedlicher Maßnahmen der Zwischenlagerung.....	135
3.3.1	LWR-Brennelemente	135
3.3.2	WWER-Brennelemente.....	145
3.3.3	THTR/AVR.....	147
3.3.4	Forschungsreaktorbrennelemente	150
3.3.5	Verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung	152
3.3.6	Betrachtungen möglicher Effekte sowie Optionen unterschiedlicher Maßnahmen zum Behälter.....	155
3.4	Zusammenfassung Zwischenlageranalyse	157
4	Endlageranalyse (Radionuklidmobilisierung im Endlager)	159
4.1	Auswahl und Beschreibung relevanter Einflussfaktoren der Radionuklidmobilisierung aus der Zwischen- und Endlagerung	159
4.1.1	Prinzipien zur Modellierung der Radionuklidmobilität.....	161
4.1.2	Temperatur	163
4.1.3	Verfügbarkeit und Zusammensetzung des Lösungsmediums	168

4.1.4	Inventar	172
4.2	Betrachtung der Mobilisierungsmechanismen.....	190
4.2.1	Korrosion von Behälter- und Hüllrohrmaterialien.....	192
4.2.2	Verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung	220
4.2.3	Bestrahlte Brennelemente	239
4.3	Zusammenfassung Endlageranalyse	272
5	Rückkopplung der Ergebnisse und Ableitung von Handlungsoptionen	277
5.1	Verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung	280
5.1.1	Maßnahmen während der Zwischenlagerung	280
5.1.2	Maßnahmen bei der Konditionierung	282
5.2	LWR-Brennelemente	284
5.2.1	Maßnahmen während der Zwischenlagerung	284
5.2.2	Maßnahmen bei der Konditionierung	287
5.3	WWER-Brennelemente.....	290
5.3.1	Maßnahmen bei der Zwischenlagerung	290
5.3.2	Maßnahmen bei der Konditionierung	291
5.4	THTR/AVR-Brennelemente	292
5.4.1	Maßnahmen bei der Konditionierung	293
5.5	Forschungsreaktor-Brennelemente.....	294
5.5.1	Maßnahmen bei der Konditionierung	294
5.6	Tabellarische Zusammenfassung	295
6	Zusammenfassung und Bewertung	297
	Literaturverzeichnis.....	303
	Abbildungsverzeichnis.....	349
	Tabellenverzeichnis.....	355
	Abkürzungsverzeichnis.....	359

A	Anhang	361

1 Einleitung, Aufgabenstellung und Zielsetzung

Das in der Bundesrepublik Deutschland vorgesehene Konzept für die Entsorgung radioaktiver Abfälle ist die Endlagerung in tiefen geologischen Formationen. Während für radioaktive Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung das voraussichtlich 2029 in Betrieb gehende Endlager Schacht Konrad vorgesehen ist, muss der Standort für ein Endlager für Wärme entwickelnde (hochradioaktive) Abfälle noch gefunden werden. Dies geschieht im Rahmen des im Jahr 2017 gestarteten Standortauswahlverfahrens, das dazu dient, den Standort in Deutschland zu finden, der für die hochradioaktiven Abfälle die bestmögliche Sicherheit für einen Zeitraum von einer Million Jahren für ein Endlager gewährleistet. Die Standortauswahl gemäß dem Standortauswahlgesetz (StandAG /STA 19a/) sollte ursprünglich durch die Bundesgesellschaft für Endlagerung (BGE) bis zum Jahr 2031 abgeschlossen werden. Nach der Standortauswahl beginnt das Genehmigungsverfahren und anschließend die Errichtung. Mit Veröffentlichung der neuen Zeitplanung durch die BGE bzw. das Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung (BASE) im November 2022 /BGE 22a/, nach der sich die Standortentscheidung bis zum Jahr 2046 bzw. (im ungünstigsten Fall) bis 2068 verzögert, ist mit einer Inbetriebnahme eines Endlagers für hochradioaktive Abfälle nach derzeitigen Erfahrungen frühestens in den 2060ern zu rechnen. Die Entsorgungskommission (ESK) hat in ihrem Diskussionspapier vom 23. März 2023 auf die sich durch die Verzögerung ergebenden Konsequenzen für die Zwischenlagerung und den gesamten Entsorgungsstrang hingewiesen /ESK 23/.

Bis zum Zeitpunkt der Einlagerung der Abfälle in das Endlager erfolgt die Zwischenlagerung hochradioaktiver Abfälle in dickwandigen TLB auf der Basis der geltenden Bestimmungen. Die aktuellen Genehmigungen für die Zwischenlagerung dieser Behälter sind auf 40 Jahre begrenzt worden und laufen zwischen 2034 und 2047 aus. In Anbetracht der aktuellen Zeitplanung bis zur Inbetriebnahme eines Endlagers für hochradioaktive Abfälle ist eine Verlängerung dieser ursprünglich geplanten und genehmigten Lagerzeit von 40 Jahren in den Zwischenlagern unumgänglich. Mit dem Auslaufen der Genehmigungen hat das BASE das Vorliegen der Genehmigungsvoraussetzungen nach dem Atomgesetz (AtG) /STA 19b/ zu prüfen.

Bei der bestehenden Genehmigung zur Zwischenlagerung auf Basis der Anforderungen gemäß § 6 AtG erfolgt bisher eine indirekte Betrachtung der Endlagerfähigkeit. Die Genehmigung erfolgt dabei nur in Bezug auf die Handhabbarkeit des Behälters sowie den Ausschluss eines systematischen Versagens der Hüllrohre. Die Auswirkungen der

Zwischenlagerung selbst sowie die Auswirkungen möglicher Maßnahmen während der Zwischenlagerung auf das Verhalten der Inventare im Endlager sind bisher nicht Bestandteil der bestehenden Genehmigungen. Im Rahmen der Überprüfung der Genehmigungsvoraussetzungen bei einer Verlängerung der Zwischenlagerung bietet sich die Möglichkeit, potenzielle Auswirkungen auf die Sicherheit im Endlager direkt bei der Betrachtung und Genehmigung zu berücksichtigen. Damit könnten Entwicklungen oder Veränderungen der hochradioaktiven Abfälle während der Zwischenlagerung, die negativen Einflüsse auf die Sicherheit des Endlagers haben können, beispielsweise durch die Ergreifung geeigneter Maßnahmen in der Zwischenlagerung vermieden oder minimiert werden. Umgekehrt können zudem möglicherweise vorteilhafte Entwicklungen aktiv eingeleitet werden. Die Entwicklung eventuell notwendiger Konzepte für die Erfordernisse einer verlängerten Zwischenlagerung, beispielsweise Behälterdesigns, Tragkorbkonzepte, gegebenenfalls sogar Konditionierungsmaßnahmen, sollten deshalb idealerweise nicht ohne Betrachtung möglicher Auswirkungen auf Endlagersicherheit und Endlagerkonzepte geschehen.

Das Vorhaben 4719F1701 (KombiLyse) zielt darauf ab, erste Schritte in Richtung einer kombinierten Betrachtungsweise zu realisieren. Hierbei handelt es sich um einen interdisziplinären Ansatz. Die Untersuchung erfolgt aus unterschiedlichen Blickwinkeln, wobei zunächst die Auswirkungen einer verlängerten Zwischenlagerung, anschließend die Einflüsse auf die Radionuklidmobilität im Endlager sowie schließlich die verschiedenen Handlungsoptionen mit ihren jeweiligen Rückkopplungen betrachtet werden. Der Fokus liegt hierbei auf der wissenschaftlich-technischen Untersuchung und Bewertung von Sachverhalten im Kontext der Radionuklidmobilisierung und -mobilität.

Die Literaturrecherche und weitere Präzisierung des Forschungsdesigns ist in Kapitel 2 dargestellt. Die möglichen Entwicklungen bei Behältern und Inventaren sowie der Optionen unterschiedlicher Maßnahmen während der Zeit der Zwischenlagerung (siehe Kapitel 3) bis zur Einlagerung im Endlager (siehe Kapitel 4) werden analysiert. Dabei wurden die bekannten Inventare und Behälterbeladungen unter der Annahme besonders ungünstiger Konstellationen betrachtet. Diese Konstellationen fanden Eingang in die Analyse der möglichen Einflüsse auf die Endlagersicherheit mit einem Schwerpunkt auf der Radionuklidmobilität im Endlager. Die daraus abgeleiteten Handlungsoptionen bzw. Maßnahmen werden im Kapitel 5 dargestellt. Die aufgrund der Bewertung gezogenen Schlussfolgerungen werden im Kapitel 6 zusammengeführt.

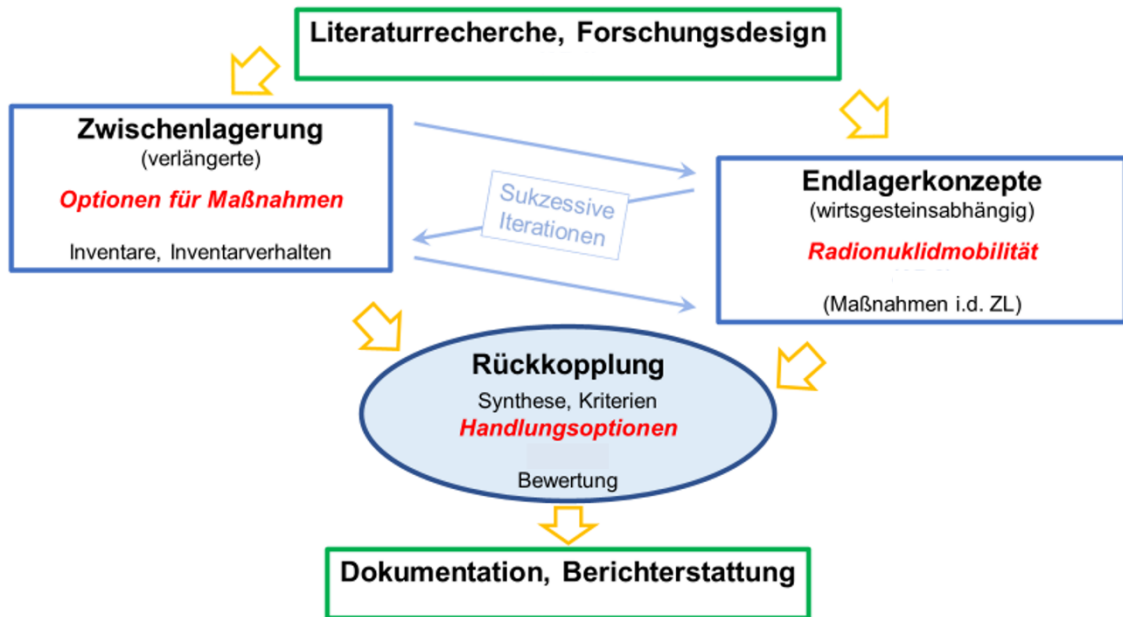


Abb. 1.1 Schematische Darstellung des Ablaufs des Vorhabens KombiLyse

2 Stand von Wissenschaft und Technik

2.1 Transport- und Lagerbehälter

Das deutsche Aufbewahrungskonzept sieht für abgebrannte Brennelemente und verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung die trockene Zwischenlagerung in Behältern vor. Bis zur Endlagerung werden die Abfälle zum Schutz von Mensch und Umwelt sicher zwischengelagert.

Der eingeschlagene Weg zur Vorbereitung einer Lagerdauer über die bisherige Genehmigungszeit hinaus erfordert ein effektives Alterungsmanagement sowie periodische Sicherheitsüberprüfungen, welche äußere und innere Einflüsse erkennen und entsprechende Maßnahmen veranlassen. Für den verlängerten Zeitraum der Zwischenlagerung formuliert die ESK die Bedingung, dass „geeignete zusätzliche Nachweise (z. B. zum Langzeitverhalten von Werkstoffen und Komponenten der Behälter und Inventare unter den lagerspezifischen Beanspruchungsbedingungen) zu erbringen“ sind /ESK 13/.

Im Rahmen der Untersuchung von Lagerzeiträumen ist eine Analyse der potenziellen Alterungsprozesse der Inventare und Behälter erforderlich, da Degradationsprozesse zu einer Beeinträchtigung der Dichtheit und zu strukturellen Veränderungen führen können. Dies hätte unmittelbare Konsequenzen für die Gewährleistung des sicheren Einschusses, die Unterkritikalität und/oder die Handhabbarkeit. Im Falle verlängerter Zwischenlagerzeiten sind Langzeit-Sicherheitsnachweise für die technischen Komponenten zu erbringen. Dazu wurden und werden nationale, internationale und europäische Leitlinien für regelmäßige Sicherheitsinspektionen und ein Alterungsmanagement in den letzten Jahren weiterentwickelt /IAE 12/, /IAE 13/. Dennoch bleibt weitere Forschung und Entwicklung erforderlich, um die erforderlichen Daten über die Langzeitbeschaffenheit von Materialien und Komponenten wie Metalledichtungen, Behältermaterial und Inventare zu gewinnen /BOT 13/.

Inventare und Behälter

Die größte Gruppe der in den Zwischenlagern befindlichen Inventare stellen die bestrahlten Brennelemente dar. Nach Ablauf der jeweiligen Mindestabklingzeit werden bestrahlte Brennelemente in dafür geeignete TLB verbracht und zur weiteren Lagerung in ein Zwischenlager transportiert. Die Beladung des Behälters mit abgebrannten Brennelementen erfolgt unter Wasser im sogenannten Beladebecken. Daher ist jeder Brenn-

elementbehälter mit einem inneren Korrosionsschutz ausgestattet. Im Anschluss an die Beladung erfolgt die Verschließung, Entwässerung und Trocknung des Behälters. Im Anschluss finden Dichtheitsprüfungen, Kontaminationsmessungen, Dosisleistungsmessungen sowie Temperaturmessungen statt. Im Rahmen der Zwischenlagerung erfolgt die Ausstattung des Behälters mit den für die Zwischenlagerung erforderlichen Zusatzeinrichtungen. Dazu zählen beispielsweise ein Druckschalter zur Überwachung der Dichtungssysteme. In der Folge wird der Sperrraum zwischen Primär- und Sekundärdeckel mit Inertgas befüllt und mit Überdruck beaufschlagt. Schließlich erfolgt die Anbindung des Behälters an das Behälterüberwachungssystem auf der vorgesehenen Abstellposition im Lagerbereich.

Die Beladung der Behälter mit Kokillen aus der Wiederaufarbeitung (CSD-V) ist bereits erfolgt bzw. wird noch erfolgen, d. h. der in Edelstahlkokillen eingebrachte verglaste radioaktive Abfall wird in einer Heißen Zelle in Form einer trockenen Beladung direkt in dafür vorgesehene Behälter eingestellt.

Als Besonderheit sind die Brennelementkugeln des THTR/AVR zu nennen, die in Edelstahlkannen gefüllt wurden, welche anschließend trocken in die entsprechenden Behälter eingebracht wurden.

Aus dem Betrieb der Kernenergienutzung und Forschung werden rund 1.800 Behälter mit abgebrannten Brennelementen und hochradioaktiven verglasten Abfällen anfallen. Stand 31. Dezember 2019 sind 14 unterschiedliche Bauarttypen im Einsatz mit insgesamt 1.319 Behältern (siehe Tab. 2.1). Weitere werden in den nächsten Jahren folgen. Allein 727 Behälter sind mit LWR-Brennelementen beladen. Weitere 427 Behälter beinhalten abgebrannte Brennelemente aus Forschungs- und Versuchsreaktoren. 113 Behälter sind mit HAW-Glaskokillen beladen.

Tab. 2.1 Behältertypen in der Zwischenlagerung (Stand: 2019) /BAR 20/

Bauart	Behälteranzahl
Mit Brennelementen aus Leistungsreaktoren	
CASTOR® V/19	430
CASTOR® V/52	203
TN®24E	12
CASTOR® 440/84	77
CASTOR® Ic	1
CASTOR® IIa	1
CASTOR® KRB-MOX	3

Bauart	Behälteranzahl
Mit Brennelementen aus Forschungs- und Versuchsreaktoren	
CASTOR® THTR/AVR	457
CASTOR® MTR 2	18
CASTOR® KNK	4
Mit HAW-Kokillen aus Wiederaufarbeitung	
CASTOR® HAW20/28 CG	79
TN®85	12
TS 28 V	1
CASTOR® HAW28M	21
Summe	1.319

Die eingesetzten Behälter sind entsprechend ihrem Verwendungszweck, ihrem nuklearen Inventar und der konstruktiven Gestaltung des Grundkörpers, des Deckelsystems und des Dichtsystems in verschiedene Behältertypen eingeteilt. Die Behälter sind so ausgelegt, dass sie zum einen als Abschirmung für die stark strahlenden Inventare dienen, zum anderen einen stabilen, sicheren Einschluss der radioaktiven Substanzen gewährleisten. Die Nachweisführung für alle Komponenten erfolgt innerhalb des Sicherheitsberichtes, dessen Inhalte streng geregelt sind /BAS 16/. Wie Tab. 2.1 zeigt, werden in Deutschland zumeist CASTOR®-Behälter (Cask for Storage and Transport of Radioactive Materials) und einige wenige TN®-Behälter (Transnucléaire, heute Orano TN) eingesetzt.

Sämtliche in den Zwischenlagern eingestellte Behälter erfüllen nachweislich die verkehrsrechtlichen, wie auch lagerrechtlichen Anforderungen. Die Behälter besitzen eine Typ-B-Versandstück-Bauartzulassung auf der Grundlage der nationalen Vorschriften für den sicheren Transport gefährlicher Güter in Bezug auf die IAEA-Vorschriften /BMV 19/, /IAE 18/. Ihre Transportfähigkeit wird während der Lagerung aufrechterhalten. Die verkehrsrechtliche Bauart-Zulassung ist, abhängig von bestimmten Voraussetzungen, periodisch zu erneuern (alle drei, fünf oder zehn Jahre). Damit wird der Versand der Behälter aus dem Lager jederzeit ermöglicht, wann immer es erforderlich ist oder spätestens zum Transport ins Endlager bzw. zur Endlagerkonditionierung. Die IAEA-Vorschriften sehen vor, dass für einen Transport nach der Zwischenlagerung die Auswirkungen von Alterungseffekten auf den Sicherheitsnachweis darzulegen und die Änderung des Zustands der Bauart während der Zwischenlagerung zu beschreiben sind. Es ist sicherzustellen, dass die Beschaffenheit der Verpackung und des Inhalts die Anforderungen erfüllen /IAE 18/.

Die Alterung von Komponenten und Behälterinventaren wird anhand der Abbaumechanismen oder -phänomene kategorisiert, die sich mit der Zeit auf die verschiedenen Komponenten auswirken können. Die IAEA /IAE 19/ und das Electric Power Research Institute (EPRI) /DOE 12a/, /HAN 17/ haben in sogenannten GAP-Analysen mögliche, bisher bekannte Degradationsmechanismen für alle Komponenten und Inventare der TLB zusammengestellt, deren jeweilige Mechanismen bewertet und Wissenslücken explizit benannt. Sie gelten insbesondere für Alterungsperioden über 40 Jahre hinaus. Hier ist allerdings zu bedenken, dass diese Analysen spezifisch auf unterschiedliche Lagersysteme und Inventare und damit der jeweiligen Situation in einzelnen Staaten abzielt.

Die weiteren Betrachtungen zum Behälter und der Komponenten beziehen sich auf die rein technische Alterung. Damit sind Strahlungseinflüsse, thermische und mechanische Beanspruchungen, sowie chemische Reaktionen eingeschlossen. Im Folgenden werden Behälterwerkstoffe und Komponenten unter Berücksichtigung der relevanten Beanspruchungsbedingungen für den verlängerten Zwischenlagerzeitraum genauer betrachtet und mögliche Alterungsmechanismen benannt.

2.1.1 Behälterkörper

Der Behälterkörper sämtlicher Bauarten hat eine zylindrische Bauform mit Wandstärken bis zu 45 cm. Er hat die Funktion, die Wärme entwickelnden Abfälle aufzunehmen und die Nachzerfallsleistung passiv abzuführen. Die Behälterkörper bestehen bei den CASTOR®-Behältern aus Grauguss und werden in einem Stück gegossen. Bei den TN®-Behältern sind Körper und Boden aus Schmiedestahl und miteinander verschweißt. Der Behälterkörper gewährleistet die Abschirmung der Gammastrahlung. Zur Minimierung der Neutronenstrahlung kommen bei den CASTOR®-Behältern (bis auf CASTOR® MTR-2, CASTOR® KNK und CASTOR® AVR/THTR) Polyethylen-Moderatorstangen zum Einsatz, die im Behälterkörper eingelassen und vom (Behälter-)Boden aus zugänglich sind. Bei den TN®-Behältern ist das Moderatormaterial auf den Behälterkörper aufgebracht. Der Behälter steht für die strukturelle Stabilität, die sich selbst unter Unfallbedingungen nur im elastischen Bereich verändert und es in keinem Fall zu einer Rissbildung kommen kann. Dies wurde durch aufwändige praktische sowie analytische Nachweise bestätigt /ISS 13/, /HÜG 19/. Der Kopfbereich des Behälters ist zur Aufnahme des Deckelsystems ausgebildet. Im Bereich der Auflageflächen der Deckel sind auf konzentrischen Lochkreisen Gewindebohrungen für die Verschraubung der Deckel angeordnet. Die Auflageflächen der Deckeldichtungen weisen eine geringe

Oberflächenrauigkeit auf. Die Behälter sind, abhängig von der Abfallart mit hoher oder niedriger Wärmelast, mit Kühlrippen (z. B. CASTOR® V, CASTOR® HAW20/28 CG, CASTOR® HAW28M, TN®24E usw.) oder ohne Kühlrippen (CASTOR® MTR-2, CASTOR® KNK, CASTOR® AVR/THTR) ausgestattet. Außen liegende Oberflächen sind mit einer dekontaminierbaren mehrlagigen Beschichtung versehen.

Als Schädigungsmechanismen der äußeren Oberfläche sind Korrosionen durch Umgebungseinflüsse zu nennen. Die Veränderungen lassen sich durch visuelle Prüfungen feststellen und bei Bedarf beseitigen. Bei einer Wandstärke von 30 bis 40 cm sind keine Einflüsse durch Korrosion auf die Festigkeit zu erwarten.

Innen liegende Oberflächen sind durch Beschichtungen ebenfalls korrosionsgeschützt ausgeführt. Der Behälterinnenraum wird vakuumgetrocknet und mit Inertgas befüllt, so dass Restfeuchtemengen und mögliche Korrosionseffekte auf ein technisch machbares Minimum begrenzt werden.

Für alle Behälter ist die Beaufschlagung des Behältermaterials durch Strahlung während der gesamten Lagerdauer gegeben. Es ist allgemein anerkannt, dass im Vergleich der integrale Neutronenfluss auf den Behälter durch abgebrannte Brennelemente wie auch durch radioaktive Abfälle deutlich niedriger als bei einem Reaktordruckbehälter ausfällt und somit keine mechanischen Eigenschaften durch Neutronenstrahlungseffekte beeinträchtigt werden /RIP 19/.

Die Behälterkörper, die in trockener, kontrollierter Umgebung, wie in einer Heißen Zelle beladen wurden (bspw. THTR/AVR-Brennelementkugeln oder HAW-Kokillen) haben keinerlei Berührung mit Feuchtigkeit beim Verschluss. Bei der Nass-Beladung der Behälter mit LWR-Brennelemente müssen die Oberflächen für die Verpressung der Metaldichtung durch ein Material wie z. B. Nickel oder Edelstahl plattiert werden, um hier keine Angriffsfläche für einen Korrosionsprozess bilden zu können /DRO 15/.

2.1.2 Deckeldichtungssystem

Der Behälterkörper wird durch zwei voneinander unabhängige Metalldeckel verschlossen. Dies gilt auch für den CASTOR® HAW28M in der Lagerkonfiguration. Somit ist der sichere Einschluss der radioaktiven Stoffe gewährleistet. Im Primär- und Sekundärdeckel werden Metaldichtungen verwendet, um die Dichtheit sicherzustellen. Die Dichtungen mit Barriere-Funktion sind als doppelt ummantelte Federkern-Metaldichtungen des

Typs „Helicoflex®“ ausgeführt, wobei die äußere Ummantelung entweder aus Aluminium oder aus Silber besteht. Der Sperrraum zwischen Primär- und Sekundärdeckel ist mit Heliumgas gefüllt, das unter einem Überdruck von 0,6 MPa steht. Der Sperrraum wird über einen Druckschalter überwacht, der an ein Behälterüberwachungssystem angeschlossen ist. Ein Austausch der Sekundärdeckeldichtung wäre im Falle eines Dichtungsversagens in diesem Bereich möglich /HUM 15/.

Im Hinblick auf zukünftig verlängerte Zwischenlagerzeiten werden von der Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung (BAM) Langzeitversuche mit den verwendeten Metaldichtungen durchgeführt. Diese Versuche werden bereits seit Jahrzehnten durchgeführt und befinden sich in einem kontinuierlichen Ausbau. Metaldichtungen unterliegen während ihres Einsatzes zeit- und temperaturabhängigen Parametervariationen. Auf Basis der gesicherten Versuchsergebnisse konnte bislang keine Entwicklung geeigneter Prognosemodelle zum Langzeitverhalten metallischer Dichtsysteme für den Langzeitbereich realisiert werden. Eine analytische Beschreibung der Parameterwechsel konnte bisher nicht nachvollzogen werden /JAU 20/. Die Ergebnisse der Langzeitversuche haben bisherige Prognosen zum Dichtungsverlauf bestätigt und zeigen bisher kein Nachlassen der Dichtheit /GRE 19/, /JAU 20/.

Die Auswertung der Betriebserfahrungen der vergangenen 30 Jahre zeigte, dass kein Fall eines Dichtungsversagens zu verzeichnen war.

2.1.3 Dichtheitsüberwachung

Die Dichtheitsüberwachung wird durch den in den im Sekundärdeckel verbauten Druckschalter vorgenommen. Er spricht an, wenn der Überdruck im Sperrraum zwischen den beiden Deckeln unter das Niveau des Drucks im Referenzraum fällt und löst damit ein Signal aus. Auf diese Art wird die Barrierenwirksamkeit permanent geprüft. Der Druckschalter besteht nahezu ausschließlich aus metallischen Komponenten. Mit der Alterung des Druckschalters unter mechanischen, chemischen und elektrischen Wechselbeanspruchungen können die Bauteile versagen /ELL 10/. Alterungsbedingte Einflüsse werden jedoch durch die Selbstüberwachung des Schalters erkannt /HÜG 19/. Die Austauschbarkeit des Druckschalters stellt auch für lange Zwischenlagerzeiten die Dichtheitsüberwachung sicher. Der Austausch des Druckschalters kann im Wartungsbereich des Zwischenlagers erfolgen. Entsprechende Prüfungsintervalle sind vorgesehen /ESK 14/.

2.1.4 Deckelbolzen

Zum Doppeldeckeldichtsystem gehören auch die Verschraubungselemente, die die Deckel mit dem Behälterkörper verbinden. Die Bolzen unterliegen durch die gleichbleibende Belastung des Anzugsmoments Kriech- bzw. Relaxationsvorgängen. Wiederkehrende Prüfungen (WKP) wurden an zahlreichen CASTOR® THTR/AVR-Behältern im AVR-Behälterlager in Jülich im Rahmen der Vorbereitungen zum zwischenzeitlich geplanten Abtransport durchgeführt. Die Bestätigung der Dichtheit und Befundfreiheit von Schrauben stellen Erfahrungen bzgl. der Durchführung von Inspektionen dar /WIL 13/. Dabei wurden an 20 % der eingelagerten Behälter Dichtheitsprüfungen der Primärdeckelbarriere erfolgreich durchgeführt, und auch die Überprüfung der Verschraubungselemente ergab keine Auffälligkeiten. Nach außen hin ist das Deckeldichtsystem durch eine Schutzplatte zusätzlich vor Umgebungseinflüssen geschützt. Spalten und Hohlräume z. B. im Bereich der Tragzapfen sind mit Silikon versiegelt, um Feuchtezutritt und Korrosion zu verhindern.

2.1.5 Moderator

In die Behälterwandung der CASTOR® Behälter sind zur Verbesserung der Neutronenmoderation und -abschirmung in konzentrisch angeordneten Längsbohrungen Polyethylenstangen eingelassen (Ausnahme CASTOR® THTR/AVR und MTR). Zwischen Primär- und Sekundärdeckel und Bodenbereich befinden sich zusätzlich Moderatorplatten. Bei den TN®-Behältern ist der Neutronenmoderator außen zwischen dem Behälterkörper und der Stahlaußenhaut eingebracht.



Abb. 2.1 Explosionszeichnung des CASTOR® V/19 mit PE-Moderatorstäben im Behältermantel /WIM 15/

Der Alterungseffekt des Moderatormaterials wird durch die Strahlung ausgelöst, wobei sich die Polymere unter Freisetzung von Wasserstoff quervernetzen. Die BAM konnte nachweisen, dass das Material eine Zunahme der Härte sowie eine Dichtereduktion im Promillebereich erfährt. Dieser Prozess wird durch die Nachzerfallswärme zusätzlich gefördert. Der Effekt kann zu einer Schwächung der Neutronen-Moderation führen, wird jedoch bereits innerhalb der Auslegung berücksichtigt /HÜG 19/. Des Weiteren wurden Materialuntersuchungen zum Verhalten von Polyethylen unter erhöhten Strahlungs-dosen durchgeführt /KÖM 18/. Die bisherigen Erkenntnisse legen nahe, dass eine sehr geringe Wasserstoffentwicklung stattfindet und die Abschirmwirkung unverändert bleibt. Allerdings kommt es zu einer Verfärbung des Materials selbst.

In Anbetracht längerer Lagerzeiten bewirkt der radioaktive Zerfall die Abnahme des Strahlungsquellterms. Im Gegensatz dazu ist die Abnahme der Wirksamkeit des Moderators zu setzen. Theoretische Betrachtungen, die eine verringerte Abschirmwirkung des Moderatormaterials unterstellen, ergaben, dass es für längere Lagerzeiten zu keiner zusätzlichen Strahlenbelastung infolge der Abnahme der Moderations- und Abschirmwir-

kung kommen würde /HUM 18/. Somit können die abschirmungsrelevanten Eigenschaften in hinreichendem Maße bewahrt werden.

2.1.6 Tragkorb

Nahezu jeder Behälter verfügt über einen Tragkorb (Ausnahme CASTOR® THTR/AVR). Die Brennelementtragkörbe sind für den sicheren Betrieb erforderlich. Sie erfüllen nukleare Sicherheitsaufgaben, in dem sie für eine stabile Positionierung der Brennelemente im Behälter sorgen, eine kritikalitätssichere Brennstoffanordnung darstellen und eine ausreichende Wärmeabfuhr garantieren. Die Tragkörbe leisten außerdem einen entscheidenden Beitrag zur sicheren Entladbarkeit der Lagerbehälter. Sie sind daher als sicherheitsrelevante Komponenten einzuordnen. Die Brennelementtragkörbe sind im Hinblick auf die Alterung

- als nicht austauschbare Komponenten einzuordnen,
- Bedingungen ausgesetzt, die Alterungseffekte begünstigen (Temperatur, Strahlung, mechanische Belastungen),
- routinemäßig keinen betrieblichen Wartungs- und Prüfprozeduren zugeordnet, deren langfristige Beobachtung und Auswertung Rückschlüsse auf Art und Geschwindigkeit von Alterungsvorgängen ermöglichen würde,
- kaum unter realitätsnahen Bedingungen zu verifizieren und
- nur in geringem Umfang punktuell experimentell untersucht.

Die Sicherheitsrelevanz und die Tatsache, dass für den Tragkorb Alterungseffekte nicht ausgeschlossen werden können, führen zu dem Schluss, dass die Alterung der Komponente für längere Lagerzeiten zu betrachten ist.

Die Tragkörbe gewährleisten durch ihre konstruktive Auslegung und durch die verdreh-sichere Lage die stabile Positionierung der Brennelemente in den Behältern. Je nach Behälterart kann der zugehörige Tragkorb unterschiedlich viele Brennelemente aufnehmen. Für DWR-Brennelemente stellen TN®24E-Behälter 21 Korbpositionen zur Verfügung. Der CASTOR® V/19 besitzt 19 Positionen für DWR- und der CASTOR®V/52 entsprechend 52 Positionen für SWR-Brennelemente. Zur Aufnahme der WWER-Brennelemente sind im CASTOR®440/84 84 Positionen verfügbar. Für die Anordnung spezieller Inventare wird der Tragkorb angepasst (z. B. CASTOR®440/84 mvK).

Tragkörbe sind der Zerfallswärme und Strahlung des radioaktiven Inventars ausgesetzt. Zusätzlich können äußere Kräfte darauf einwirken, die durch Handhabungs- und Übertragungsvorgänge oder Unfallereignisse verursacht werden. Die Körbe sind aus unterschiedlichen Metallen wie Stahl, Legierungen mit boriiertem Stahl, Aluminium usw. gefertigt und durch Form und Konstruktion speziell an das jeweilige Lagergut angepasst. Unter Temperatureinwirkung können Spannungen Veränderungen der Korb Materialeigenschaften bewirken. Für die verlängerte Zwischenlagerung ist jedoch kein Kriechen der boriierten Metalle aufgrund der kontrollierten Temperaturen über längere Lagerzeiten zu erwarten /ISS 13/. Die Betrachtung der thermischen Alterung, die zu strukturellen Veränderungen in der Legierung und der Materialfestigkeit oder Bor-Verteilung beiträgt, ist genau zu untersuchen. Materialqualifizierungsprogramme und Qualitätskontrollen während der Fertigung berücksichtigen dies /DRO 15/. Weiter sind chemische Einflüsse bei Nassbeladung und anschließender Trocknung zu berücksichtigen.

Die Restfeuchte kann zu Korrosion und Radiolyse beitragen. Dagegen wirkt die Inertisierung des Behälterinnenraums durch Helium und das Auftragen einer Schutzoberfläche im Behälterschacht. Wesentlich für die Brennelementtragkörbe ist die Verifikation derjenigen Werkstoffeigenschaften, die für die Gewährleistung der Sicherheit relevant sind. Diese dürfen langfristig keinen Veränderungen unterliegen, die zu einem Verlust der Stabilität und Wärmeleitung führen können. Ferner muss sichergestellt sein, dass die Brennelemente ohne größere Schäden wieder dem Tragkorb entnommen werden können, damit alle Optionen der Konditionierungs- und Einlagerungstechnik im Endlager offengehalten werden können. Für die Tragkörbe wird bisher angenommen, dass durch die entsprechende Materialwahl, durch deren Auslegung, durch das weitgehende Vermeiden von Restfeuchte bei der Behälterbeladung und durch das Befüllen mit Helium nennenswerte Korrosion ausgeschlossen werden kann. Das ist plausibel, gründet sich aber bislang nur auf Erfahrungen mit den Werkstoffen und deren Eigenschaften im Rahmen ihrer Verwendung in anderen Anwendungsbereichen, der Auslegung, der Beladung und fußt auf mechanischen Betrachtungen. Im Zusammenhang mit der langfristigen Zwischenlagerung ist deren Langzeitverhalten und Auslegung als nicht verifiziert einzustufen. Die Verifikation im Sinne der Beweissicherung könnte nur erfolgen, wenn Behälter von Zeit zu Zeit stichprobenartig geöffnet und die Behältereinbauten gezielt auch auf Alterungshinweise untersucht würden /ELL 10/.

2.1.7 Gewährleistung der Unterkritikalität

Im Tragkorb befinden sich boriierte Stahlbleche, die eine neutronenabsorbierende Wirkung besitzen. Unter der Annahme eines Moderatorzutritts (Wasserflutung) dienen diese dazu, den Multiplikationsfaktor so weit abzusenken, dass die Kritikalitätssicherheit der eingelagerten Brennelemente gewährleistet ist. Ein Verlust der absorbierenden Wirkung ist im bestimmungsgemäßen Betrieb der Zwischenlager nicht zu erwarten, da kein glaubhafter Mechanismus bekannt ist, der zu einem Verlust der Absorber unter den Bedingungen der Zwischenlagerung führen könnte. Mit zunehmender Anfangsanreicherung kann die Kritikalitätssicherheit ein limitierender Faktor hinsichtlich der Beladekapazität von Behältern bei der Lagerung bestrahlter Brennelemente werden. Zum Teil ist in den Kritikalitätsanalysen für bestrahlte Brennelemente ein reaktivitätsmindernder Mindestabbrand zu berücksichtigen („burnup credit“) /HUM 15/.

2.1.8 Zusammenfassung und Bewertung

Der Behälter mit seinen Komponenten ist das zentrale Sicherheitselement in der Zwischenlagerung. Eine Analyse der Behälter-Komponenten im Sinne der Schutzzielerfüllung zeigt, dass diese auch für eine längere Zwischenlagerdauer gegeben sein kann. Alterungseffekte lassen sich zumindest bei den zugänglichen Komponenten bspw. durch Inspektionen im Rahmen vorgeschriebener wiederkehrender Prüfungen unter Berücksichtigung zu minimierender Strahlenbelastung für das Personal feststellen. Weiterhin liegen den Sicherheitsnachweisen der verkehrsrechtlichen Behälterbauartprüfungen nahezu ausschließlich die Eigenschaften fabrikneuer Komponenten bzw. Behälter zugrunde. Alterungseffekte sind mit der zunehmenden Bedeutung von Behältertransporten nach einer langfristigen Zwischenlagerung zu berücksichtigen und deren mögliche Auswirkungen auf das Sicherheitsniveau zu bewerten.

Der Behälter mit seinem Doppeldeckelsystem (gilt auch für den CASTOR® HAW28M in der Lagerkonfiguration) ist durch seine robuste Konstruktion maßgeblich für die mechanische Festigkeit, Wärmeabfuhr und die Abschirmung. Dichtungssysteme sorgen für den sicheren Einschluss der Inventare und werden in ihrer Wirksamkeit überwacht. Daneben werden vorlaufende Forschungsprogramme aufgelegt, um die Alterung und daraus folgend die Dichtwirkung für längere Lagerzeiten zu untersuchen. Die gleichen Voraussetzungen sind auch für künftige Behälter mit evtl. abweichenden Formen gültig.

Der Tragkorb spielt für die Anordnung der Inventare im Behälter und somit auch für die Entladbarkeit eine wichtige Rolle. Ebenso ist eine unversehrte Korbstruktur für den Nachweis der Unterkritikalität von Bedeutung. Die Verfolgung von Alterungsvorgängen von nicht zugänglichen Komponenten wie bspw. für den Tragkorb ist durch zusätzliche Programme zu begleiten. Dies kann auch im Rahmen internationaler Forschung erfolgen, da die Übertragbarkeit für diese Komponente durchaus gegeben ist. Allerdings schließt dies eigene Untersuchungsprogramme nicht aus.

Bei einem Transport nach längeren Lagerzeiten ist es erforderlich, die Alterungseinflüsse des Behälters während der Zwischenlagerung zu berücksichtigen. In diesem Zusammenhang können einerseits die während der Zwischenlagerung dokumentierten betrieblichen Randbedingungen sowie die Ergebnisse der periodischen Sicherheitsüberprüfungen, einschließlich des betriebenen Alterungsmanagements, herangezogen werden. Allerdings werden hierbei lediglich 1 % der gelagerten Behälter berücksichtigt. Andererseits können zusätzliche Inspektionen vor dem Abtransport, beispielsweise an Verschraubungen, Dichtsystemen und Tragzapfen, durchgeführt werden /HUM 15/.

Die Beanspruchungsgrößen auf den Behälter und seine Komponenten ändern sich mit zunehmender Lagerdauer. Eine Grundlage für die Bewertung der Auswirkungen von Alterungseffekten auf eine Langzeitlagerung bilden die von EPRI im Rahmen des ESCP-Projekts aufgeworfenen technischen Fragestellungen im internationalen Rahmen (GAP-Analyse) /DOE 12a/, /DOE 12b/. Ziel dieser GAP-Liste ist es, Strukturen, Komponenten und Systeme für die trockene Zwischenlagerung systematisch zu hinterfragen /HUM 18/. Im Anschluss erfolgte eine Priorisierung der sicherheitsrelevanten Fragestellungen. Hierbei wurden für den Behälter der Verschluss mit dem Deckeldichtungssystem, der Behälterkörper mit den Kühlrippen, der Korb sowie die Abschirmung als besonders relevant identifiziert.

Im Hinblick auf eine Verhinderung einer Freisetzung von Radionukliden in die Umgebung während der Zwischenlagerung, fällt dem Dichtungssystem des Behälters als Barriere eine Schlüsselrolle zu.

2.2 Inventare

In Deutschland werden die nachfolgend aufgeführten Inventare zwischengelagert und in den nachfolgenden Kapiteln betrachtet. Diese sind

- Urandioxid/MOX-Brennstoffe aus DWR-, SWR- und WWER-Anlagen (LWR-Brennelemente),
- Forschungs- und Prototypreaktorbrennstoffe,
- Verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung und
- kompaktierte Abfälle aus der Wiederaufarbeitung.

Bezüglich der Umschließung des Brennstoffes/Abfallprodukts lässt sich folgende Aufteilung vornehmen:

- Hüllrohre aus Zirkoniumlegierungen (DWR-, SWR- und WWER-Brennstoffe)
- Umschließung/Hüllrohre aus anderen Metalllegierungen und Siliziumcarbid/Pyrokohlenstoff
- Edelstahlkannen und -kokillen

Die oben genannten Komponenten können als Barriere wirken und die Freisetzung von Radionukliden innerhalb des Behälters verhindern oder verzögern. Diese Barrieren sind

- die Brennstoff- bzw. Abfallmatrix und
- die Umschließung der Brennstoff- bzw. Abfallmatrix.

Im Rahmen der nachfolgenden Betrachtungen zur Radionuklidmobilisierung ist es von entscheidender Bedeutung, die Vorgänge zu identifizieren und zu bewerten, die zu einer Veränderung der Eigenschaften dieser Barrieren führen und folglich eine Beeinträchtigung der Rückhaltefunktion zur Folge haben könnten. Dies gilt insbesondere, wenn zusätzliche Lasten auftreten. Im Kontext des Vorhabens sind hier insbesondere der Endlagerung vorgelagerte Transport-, Handhabungs- und Konditionierungsvorgänge als Szenarien zu nennen, in denen zusätzliche Lasten auftreten oder aufgebracht werden.

2.2.1 LWR-Brennelemente

Brennstäbe aus LWR stellen unter allen oben benannten Inventaren dahingehend einen Sonderfall dar, denn zusätzlich zur thermischen Last steht die Umschließung bzw. das Hüllrohr ständig unter einem Innendruck, resultierend aus der auslegungsbedingten Druckbeaufschlagung des Brennstabes mit Helium und des im Reaktorbetrieb aus dem Brennstoff freigesetzten Spaltgases. Ein Versagen der ersten Barriere würde somit primär zu einer Beaufschlagung des Behälterinnenraums mit gasförmigen und festen radioaktiven Stoffen führen.

Der genehmigte maximale mittlere Abbrand eines Standard-Brennelementes zur Behälterlagerung in Deutschland beträgt momentan 67 GWd/tSM. Dies gilt für UO₂- wie auch für MOX-Brennelemente. Da es sich um einen gemittelten Wert handelt, existieren im Brennelement Regionen bzw. Brennstäbe, in denen der lokale Abbrand die 67 GWd/tSM deutlich übersteigt. Für Nicht-Standard-Brennelemente sind sogar mittlere Abbrände bis 80 GWd/tSM zulässig /BAS 20/.

Für die genehmigte Lagerzeit von 40 Jahren sind die Nachweise derart geführt, dass ein systematisches Hüllrohrversagen während der Zwischenlagerung ausgeschlossen ist. Dazu tragen folgende Kriterien bei:

- Begrenzung der maximalen Umfangsspannung im Hüllrohr auf 120 MPa
- Begrenzung der Tangentialdehnung des Hüllrohres auf 1 %
- Begrenzung der Hüllrohrtemperatur auf 370 °C

Derzeit liegen keine Informationen darüber vor, welche Kriterien die zuständige Genehmigungsbehörde bei der Prüfung der Hüllrohrintegrität bei einer verlängerten, d. h. über 40 Jahre hinausgehenden, Zwischenlagerung anlegen wird. In Bezug auf das genannte Vorhaben wird davon ausgegangen, dass die oben aufgeführten Kriterien für eine Zwischenlagerung von bis zu 40 Jahren auch für den darüber hinausgehenden Zeitraum Gültigkeit besitzen. Diese Annahme stellt keinen Vorgriff auf zukünftige Entscheidungen der zuständigen Genehmigungsbehörde dar.

Im Rahmen des GRS-Vorhabens 4615E03310 wurden seitens der GRS und des TÜV Nord umfangreiche Analysen zum Ist-Zustand von LWR-Inventaren und zur voraussichtlichen Entwicklung bei einer über 40 Jahre andauernden Lagerung vorgenommen

/HUM 18/. Als wesentliche Einflussfaktoren, welche die Zwischenlagerfähigkeit beeinflussen, sind folgende Vorgänge zu betrachten:

- Kriechen des Hüllrohrmaterials
- Hüllrohroxidation
- Versprödung des Hüllrohres durch Wasserstoff und Hydridreorientierung
- Zusätzliche Gasbildung und -freisetzung im Brennstoff
- Mögliche Änderungen der Materialstruktur des Hüllrohres

Diese wesentlichen Einflussfaktoren werden im Folgenden diskutiert.

Kriechen

Die während der Behältertrocknung und der anfänglichen Zwischenlagerung auftretenden hohen Temperaturen ($< 370\text{ °C}$) und der vorherrschende Innendruck des Hüllrohres führen zum Kriechen des Hüllrohrmaterials. Während der Zwischenlagerung kommt es zu einer Aufweitung des Durchmessers, was mit einer Vergrößerung des freien Volumens einhergeht. In Konsequenz dessen zeigt sich gemäß der Zustandsgleichung für reale Gase eine Abnahme des Innendrucks, was eine Verlangsamung des Kriechvorgangs zur Folge hat. Der Kriechvorgang bei Brennstabhüllrohren ist folglich durch eine selbstbegrenzende Charakteristik gekennzeichnet. Die über die Lagerzeit abnehmende Nachzerfallswärme und die damit sinkenden Hüllrohr- und Gastemperaturen führen zusätzlich dazu, dass der Innendruck weiter abnimmt und der Kriechvorgang verlangsamt wird und ggf. zum Erliegen kommt. Im Verfahren zum Ausschluss des systematischen Hüllrohrversagens ist nachzuweisen, dass die durch das Kriechen verursachte Tangentialdehnung des Hüllrohres zum Ende der 40 Jahre Lagerzeit den Wert von 1 % nicht überschreitet.

Bei einer Beibehaltung der Begrenzung der Tangentialdehnung des Hüllrohres auf 1 % ist im Rahmen der Betrachtung verlängerter Zwischenlagerzeiten mittels geeigneter Methoden zu eruieren, ob Indikationen für spezielle Fälle bestehen, bei denen der Kriechvorgang nicht unterhalb des Wertes von 1 % Kriechdehnung zum Erliegen kommt. In diesem Kontext sind insbesondere Hochabbrand-Brennstäbe von Interesse, die aufgrund ihrer höheren Innendrucke durch verstärkte Spaltgasfreisetzungsraten gekennzeichnet sind, sowie MOX-Brennstäbe, die aufgrund ihrer spezifischen Nachzerfallscharakteristik über längere Zeiträume höheren Temperaturen ausgesetzt sind.

Hüllrohroxidation

Mit der Einhaltung des Restfeuchte Kriteriums bei der Abfertigung des Behälters ist die maximale verfügbare Menge an Wasser im Behälter begrenzt, welche für die Hüllrohroxidation zur Verfügung steht. Damit ist gewährleistet, dass das Hüllrohr nicht in unzulässig hoher Weise oxidiert, so dass die Integrität gefährdet wäre. Unter Berücksichtigung der inerten Behälteratmosphäre und der Dichtheit des Behälters ist der Zutritt weiteren Wassers quasi ausgeschlossen, so dass auch bei einer Lagerung über 40 Jahre hinaus keine weiteren Oxidationsvorgänge zu erwarten sind.

Wasserstoffversprödung und Hydridreorientierung

Im Reaktorbetrieb nimmt das Brennstabhüllrohr freigewordenen Wasserstoff aus der Oxidationsreaktion des Hüllrohres mit dem Kühlwasser auf. Der Wasserstoff scheidet sich beim Unterschreiten der temperaturabhängigen Löslichkeitsgrenze in Form von Metallhydriden aus. Im Reaktorbetrieb folgt dieser Vorgang dem Temperaturprofil über der Hüllrohrwand, so dass sich vermehrt Metallhydride in Umfangsrichtung an der Außenwand des Hüllrohres ausbilden. Bei der Behälterbeladung werden die Brennelemente im Verlauf der Behältertrocknung erneut aufgeheizt, so dass ein Teil des Wasserstoffes wieder in Lösung übergeht. Der nachfolgende Abkühlvorgang in der Zwischenlagerkonfiguration zeichnet sich dadurch aus, dass er der Nachzerfallsleistung folgend sehr langsam vor sich geht und dass über die Hüllrohrwand statt eines Temperaturgradienten nun vorrangig ein Spannungsgradient vorliegt, hervorgerufen durch die Spaltgase im Plenum und den nicht mehr vorhandenen Kühlmitteldruck von außen. Der Spannungsgradient führt nun beim abermaligen Unterschreiten der Löslichkeitsgrenze zu einem Ausscheiden der Metallhydride in radialer Richtung (Hydridreorientierung). Diese sog. radialen Hydride vermindern die Duktilität des Werkstoffes, da sie keinen Lastabtrag gewährleisten und in Versagensrichtung (Rissbildung) ausgerichtet sind. Die Verminderung der Duktilität äußert sich in einer Erhöhung der Sprödbruchübergangstemperatur. Die Zusammenhänge, die zu einer hydridinduzierten Versprödung von Brennstabhüllrohren führen sind hochkomplex und bedürfen der Betrachtung der gesamten Lebensgeschichte eines Brennstabs oder Brennelements. Von wesentlicher Bedeutung sind das Legierungsmaterial, die aufgenommene Menge an Wasserstoff und die maximal erreichten Temperatur- und Spannungszustände, welche wiederum von den thermischen Randbedingungen und dem erreichten Abbrand abhängen. Die Auswirkungen verschiedener Einflussfaktoren auf die Hydridreorientierung und die Sprödbruchübergangstemperatur wurden in einem umfangreichen vom United States Department of Energy (DOE)

geförderten Untersuchungsprogramm (siehe Kapitel 2.3) experimentell untersucht und dokumentiert /BIL 13a/, /BIL 13b/, /BIL 16/.

Hochabgebrannte Brennelemente von Druckwasserreaktoren, respektive deren Stäbe, weisen die höchsten Innendrucke und Umfangsspannungen auf und sind deshalb am ehesten von einer Hydridreorientierung betroffen, die sich in einer Duktilitätseinbuße bei der Abkühlung niederschlagen kann. Diesbezüglich konnten bei den für den Hochabbrand entwickelten Hüllrohrmaterialien ZIRLO™ und M5™ Verschiebungen der Sprödbruchübergangstemperaturen aufgrund von Umfangsspannungen experimentell nachgewiesen werden, wobei diese Werte nunmehr oberhalb der Raumtemperatur liegen. Von besonderem Interesse ist dabei der Zeitpunkt, an dem die Brennstäbe ihre jeweilige Sprödbruchübergangstemperatur unterschreiten und sich somit nicht mehr duktil verhalten.

Zusätzliche Gasbildung und -freisetzung im Brennstoff

Alpha-Zerfälle von Actinoiden führen über den Zeitraum der Zwischenlagerung zu einer kontinuierlichen Bildung von Helium und zu Strahlenschäden in der Kristallstruktur des Brennstoffes, welche sich auf die makroskopischen Eigenschaften auswirken. In der Folge kommt es zum Schwellen des Brennstoffes und zur Ansammlung von Helium im Kristallgitter und in den bestehenden Poren. Das Anschwellen des Brennstoffes kann durch die Pellet-Hüllrohr-Interaktion zu einer zusätzlichen Belastung des Hüllrohres führen und das gebildete Helium kann bei einer Freisetzung aus der Brennstoffmatrix einen Druckanstieg im Hüllrohr verursachen. Beide Effekte kommen insbesondere bei MOX-Brennstoffen infolge des höheren Aktinoidinventars wesentlich stärker zum Vorschein als bei Urandioxidbrennstoffen. Umfangreiche Untersuchungen zu diesen Sachverhalten wurden vorrangig vom JRC-ITU (Joint Research Center – Institute for Transuranium Elements) durchgeführt /RON 12/, /RON 13/ und von der GRS im Hinblick auf die Zwischenlagerung in Deutschland bewertet /HUM 15/. Eine Übertragbarkeitsbetrachtung der experimentellen Werte würde eine auf die Alpha-Zerfälle zurückzuführende Volumenausdehnung von 0,6 bis 0,9 % nach 100 Jahren für UO₂ bedeuten, für MOX-Brennstoff würde sich die Volumenausdehnung auf ca. 1,5 % belaufen. Bezüglich der Freisetzung zeigten die Untersuchungen, dass das Helium auch noch bei hohen Strahlenschäden, welche mit entsprechend langen Zeiten einhergehen, in der Brennstoffmatrix zurückgehalten wurde.

Entsprechend dem Helium wird auch der Großteil der Spaltgase in der Brennstoffmatrix zurückgehalten, bei hochabgebranntem UO_2 -Brennstoff primär in den kleinen Poren in der Hochabbrandstruktur am Pelletrand, bei MOX-Brennstoffen, die nach dem Micro-nized Master blend Verfahren (MIMAS) hergestellt wurden, zusätzlich in Poren in der Peripherie der Plutoniumagglomerate. Eine hypothetische Freisetzung des Gasinventars aus den Porenvolumina würde den vorherrschenden Innendruck und die Umfangsspannung erhöhen, wodurch wiederum andere Effekte wie z. B. das Kriechen begünstigt würden. Bislang ist jedoch kein Degradationsvorgang der Brennstoffmatrix unter den Randbedingungen der Zwischenlagerung bekannt, welcher zu einer Freisetzung des zurückgehaltenen Gasinventars führt.

Mögliche Änderungen der Materialstruktur

Unter diesem Punkt werden potentielle Langzeitmechanismen der Materialstruktur adressiert, welche noch nicht hinreichend untersucht wurden, d. h. ihr Auftreten ist weder hinreichend belegt noch kann es ausgeschlossen werden /HUM 18/. Ein Effekt ist die Ausheilung der Strahlungsversprödung bei geringen Temperaturen aber hinreichend langen Zeiten. Die Folge wäre die Erhöhung der Duktilität des Hüllrohres und eine höhere Wahrscheinlichkeit von dehnungsgetriebenen Versagensmechanismen.

Ein weiterer potenzieller Langzeiteffekt ist das Ausheilen bzw. Zusammenwachsen von durch Neutronenstrahlung induzierten Versetzungen und Fehlstellen, was zu einer Schwächung des Materials führen kann. Für eine vollständige Betrachtung der Effekte ist es jedoch erforderlich, im Einzelfall auch entgegenwirkende Prozesse zu berücksichtigen, wie beispielsweise die Abnahme von Temperatur und Innendruck.

2.2.2 WWER-Brennelemente

Die durch den Betrieb der Kernkraftwerke Greifswald (KGR) und Rheinsberg (KKR) angefallenen und in Deutschland verbleibenden 5.048 WWER-Brennelemente, 4.634 davon aus Greifswald und 414 aus Rheinsberg, lagern seit 2006 in 62 CASTOR® 440/84 und drei CASTOR® KRB-MOX im Zwischenlager Nord.

In Bezug auf die trockene Zwischenlagerung von WWER-Brennelementen lässt sich prognostizieren, dass sie ähnlichen Mechanismen unterliegen werden, wie sie für LWR-Brennelemente bekannt sind. Diese Annahme wird durch Untersuchungen zum Kriechverhalten gestützt, die im Rahmen der Projekte /IAEA/, /IAE 04/ durchgeführt wurden und zu den gleichen Resultaten gelangten.

Im Jahr 1990 wurden in Greifswald Undichtigkeitsprüfungen, sogenannte Sipping Tests, für die Brennelemente des Block 1 durchgeführt. Dabei wurde eine Undichtigkeit bei vier von 276 Brennelementen festgestellt. Im Gesamtdurchschnitt liegt eine Rate von 3,6 % an undichten Brennelementen vor /HEL 11/. Die Eignung der als undicht identifizierten Brennelemente für eine trockene Langzeitlagerung wurde anhand von Untersuchungen überprüft, welche nach mehrmonatiger Lagerung unter einer Argon-Atmosphäre bei Temperaturen zwischen 350 und 390 °C durchgeführt wurden. Dabei konnten keine messbaren Änderungen an den Brennstäben festgestellt werden, welche auf ein Austreten von Wasser oder Deformationen hindeuten würden.

Eine vorausschauende Berechnung der kumulativen Hüllrohrumfangsdehnung unter abnehmender Temperaturbedingung zeigt, dass das Hüllrohrkriechen nach zehn Jahren trockener Lagerung gesättigt ist. Die vorhergesagte Umfangsdehnung (ca. 0,02 %) ist zu niedrig, um Sicherheitsbedenken zu verursachen. Die Ergebnisse des durchgeführten Testprogramms /IAE 04/ deuten darauf hin, dass eine trockene inerte Lagerung von WWER 440-Brennelementen innerhalb des untersuchten Temperaturbereichs machbar und sicher ist. Wasserstoffversprödung wird bei der Lagerung der WWER-Brennelemente als nicht relevant angesehen /CHE 18/.

2.2.3 Brennelemente aus Versuchs- und Forschungsreaktoren

Bei den zu betrachtenden Versuchs- und Forschungsreaktoren und den daraus zu entsorgenden Brennelementen handelt es sich im Wesentlichen um folgende Typen:

- Materials Testing Reactors (MTR-Reaktoren)
- Training, Research, Isotopes, General Atomic (TRIGA)-Reaktoren
- Reaktoren des ehemaligen Vereines für Kernverfahrenstechnik und Analytik Rosendorf e.V. (VKTA)
- Prototypreaktoren

Zu den MTR-Reaktoren gehören der Experimentier-Reaktor (BER II) in Berlin sowie die in Betrieb befindliche Anlage Forschungs-Neutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz (FRM II) in Garching bei München. Weitere MTR-Reaktoren sind bereits stillgelegt oder rückgebaut und deren Brennelemente durch Rückführungsmaßnahmen entsorgt.

Ein Entsorgungsbedarf besteht für den betriebenen TRIGA-Reaktor in Mainz. Alle übrigen TRIGA-Reaktoren haben ihre Brennelemente bereits ins Bezugsland zurückgeführt und stehen somit nicht mehr für die Endlagerung in Deutschland an.

Alle drei Anlagen in Rossendorf, diese sind die Rossendorfer Anordnung für kritische Experimente (RAKE), der Rossendorfer Forschungsreaktor (RFR) und der Rossendorfer Ringzonenreaktor (RRR), sind abgeschaltet. Die zu entsorgenden Brennelemente stammen nur aus dem RFR-Reaktor russischer Bauart und lagern im Brennelemente-Zwischenlager Ahaus. Die restlichen Brennelemente (RAKE und RRR) wurden durch Rückführung zum Herstellerland entsorgt und stehen somit nicht mehr für die Endlagerung in Deutschland an.

Mit Prototypreaktoren werden Reaktoren bezeichnet, die sowohl für die Forschung als auch für die Stromerzeugung verwendet wurden. Zur Gruppe der Prototypreaktoren werden u.a. die stillgelegten Anlagen der Kompakten Natriumgekühlte Kernreaktoranlage Karlsruhe II (KNK II) in Karlsruhe, der AVR in Jülich und der THTR-300 in Hamm-Uentrop gezählt.

Die Tab. 2.2 listet die Forschungs- und Prototypreaktoren mit dem für die Zwischenlagerung sowie Endlagerung relevanten Bestand an eingesetzten Brennelementmengen und -typen sowie deren Anreicherung, Abbrand und sonstigen chemischen Eigenschaften, sowie die Hüllrohrmaterialien auf.

Tab. 2.2 Bestand an Versuchs- und Forschungsreaktorbrennstoffen in der Zwischenlagerung in Deutschland zum Stichtag 31.12.2019 /BAR 20/

1) BE: Brennelemente; BS: Brennstäbe und ggf. Bezeichnung/Typ

2) Anfangsanreicherung in %; Gesamtmenge an jeweiligen Schwermetallen (Brenn- und ggf. Brutstoff) pro BE/BS und chemische Form des Brennstoffes

3) Gesamtmengen an U_{tot} aller bestrahlten BE/BS; *: Mengen anhand von unbestrahlten BE berechnet; **: Angabe des Betreibers

4) Maximale Abbrände in GWd/Mg SM und ggf. durchschnittliche Abbrand in Klammern

5) Hüllrohrwandstärke und -material: Al: Aluminium-Legierung; Stahl: Stahl-Legierung; Zr: Zirkonium-Legierung

Reaktor	Anzahl Brennelement, Typ ¹⁾	Brennstoff ²⁾	Mengen ³⁾	Abbrand [GWd/Mg SM] ⁴⁾	Hüllrohrmaterial ⁵⁾	Lagerort/Verbleib
BE aus in Betrieb befindlichen Reaktoren						
FRM II; Garching	46 BE 2 Konverterplatten	93 % ^{235}U , 8,106 kg U_{tot} $\text{U}_2\text{Si}_3\text{-Al Dispersion}$ 93 % ^{235}U , 0,270 kg U_{tot} $\text{U}_2\text{Si}_3\text{-Al Dispersion}$	318,9 kg U_{tot}^{**} 0,5 kg U_{tot}^{**}	128,3	0,38 mm Al 0,38 mm Al	Absetzbecken FRM II Geplant: TBL-Ahaus 10 CASTOR [®] MTR 3
FR MZ; Mainz	82 BE bestrahlt 7 BE unbestrahlt	21,8 % ^{235}U , 201 g U_{tot} UZrH_x	16 kg U_{tot}^{**}	≤ 25	0,76 mm Al, 0,51 mm Stahl	Im Kern und Trockenlager Geplant: TBL-Ahaus 1 CASTOR [®] MTR 3
BE aus abgeschalteten Reaktoren						
BER II, Berlin	66 BE	19,75 % ^{235}U , 1,673 kg U_{tot} $\text{U}_2\text{Si}_3\text{-Al Dispersion}$	101,6 kg U_{tot}^{**}	≤ 112	0,38 mm Al	Absetzgestelle Geplant: TBL-Ahaus 3 CASTOR [®] MTR 3
RFR, Rossendorf	148 BE, Typ EK-10 725 BE, Typ WWR-M 78 BE, Typ WWR-M2	10 % ^{235}U , 1287,5 g U_{tot} $\text{UO}_2\text{-Mg Dispersion}$ 37,3 % ^{235}U , 112,5 g U_{tot} $\text{UO}_2\text{-Al Dispersion}$ 36,6 % ^{235}U , 124,9 g U_{tot} $\text{UO}_2\text{-Al Dispersion}$	190,55 kg U_{tot}^* 81,56 kg U_{tot}^* 9,74 kg U_{tot}^*	$\leq 30,7$ $\leq 261,3$ $\leq 92,9$	1,5 mm Al 0,9 mm Al 0,9 mm Al	TBL-Ahaus in 18 CASTOR [®] MTR 2
AVR, Jülich	288.161 BE-Kugeln 124 brennstofffreie Kugeln	17-93 % ^{235}U 1,03-20,0 g U_{tot}	1,808 Mg SM ^{**}	≤ 194	SiC, PyC	AVR Zwischenlager in 152 CASTOR [®] THTR/AVR
THTR-300, Hamm- Uentrop	617.606 BE-Kugeln	5-10,2 g Th UC_2 , ThC_2 , UO_2 , ThO_2 , UCO	6,6 Mg SM ^{**}	≤ 114	PyC	TBL-Ahaus in 305 CASTOR [®] THTR/AVR

Reaktor	Anzahl Brennelement, Typ ¹⁾	Brennstoff ²⁾	Mengen ³⁾	Abbrand [GWd/Mg SM] ⁴⁾	Hüllrohrmaterial ⁵⁾	Lagerort/Verbleib
KNK II, Eggenstein-Leopoldshafen	2449 BS, Testelement	63-93 % ²³⁵ U, 70,6-126,4 g U _{tot} , 30,1-55,1 g Pu _{tot} PuO ₂ /UO ₂	418,11 kg U _{tot} * 86,29 kg Pu _{tot} *	≤ 137 (Ø 53)	0,76-1,0 mm Stahl	ZLN in 4 CASTOR® KNK
	16 BS, Treiberelement	43,5-59 % ²³⁵ U, 163,3-164,9 g U _{tot} UO ₂	2,62 kg U _{tot} *	≤ 47,9 (Ø 40)	1,0 mm Stahl	
	3 BS, MOL 11 A/C, unbestrahlt	50-92 % ²³⁵ U, 271,6-293,8 g U _{tot} , 30,2-29,4 g Pu _{tot} UC/PuC	0,838 kg U _{tot} * 0,089 kg Pu _{tot} *	-	0,76 mm Stahl	
	1 BE, Mol 7C7 mit 19 BS	62 % ²³⁵ U, 227,2 g U _{tot} , 50,3 g Pu _{tot} PuO ₂ /UO ₂	4,384 kg U _{tot} 0,956 kg Pu _{tot}		0,76 mm Stahl	
OH, Forschungsschiff	49 BS 3 BS unbestrahlt 1 Dose	3,5-6,6 % ²³⁵ U, 462-796 g U _{tot} UO ₂	31,83 kg U _{tot}	≤ 22,0 -	0,73 mm Zr, Stahl 2 mm Stahl	

Korrosionsprozesse im Betrieb und in der Zwischenlagerung

Die bei den Forschungsbrennelementen verwendeten Hüllrohrmaterialien Edelstahl und Aluminium weisen aus Sicht der Zwischenlagerung, bei geeigneter Wasserqualität während des Betriebes, eine relativ hohe Korrosionsresistenz auf.

Beim Werkstoff Edelstahl liegen aus der konventionellen industriellen Anwendung und aus dem Bau von Kernreaktoren reichhaltige Erfahrungswerte vor. Diese zeigen, dass die Korrosion und der Zeitrahmen der Korrosionsprozesse von Edelstahl in Wasser von der Wasserqualität abhängen. Die Geschwindigkeit der Korrosionsprozesse ist primär durch die Leitfähigkeit und den Chlorid-Gehalt des Wassers bestimmt.

Die Anlagen, in denen edelstahlummantelte Kernbrennstoffe verwendet wurden, bestanden ihrerseits aus Edelstahl als Konstruktionsmaterial, was eine auf Korrosionsminimierung optimierte Wasserchemie beim Betrieb voraussetzt. Aus diesem Grund kann für Edelstahl-basierte Brennstoffumschließungen von einer minimierten Korrosionsrate während des Betriebs und der Nasslagerung ausgegangen werden. Der Effekt der Kontaktkorrosion kann jedoch für einige Edelstähle nicht ausgeschlossen werden. Das Auftreten dieser Korrosionsart und die Korrosionsgeschwindigkeit sind von der Materialpaarung und der lokalen Wasserqualität abhängig und müssen im Einzelfall betrachtet werden. Bereits aufgetretene Kontaktkorrosion bei Betrieb oder Lagerung sollten jedoch durch Sichtkontrolle der Brennstoffe erkennbar sein. Eine weitere Korrosion Edelstahl-basierter Brennstoffummantelungen während der Trockenlagerung kann aufgrund der trockenen Bedingungen und der inerten Atmosphäre im TLB ausgeschlossen werden. Diese Annahmen sind für Edelstahl-Umschließungen in Form der AVR/THTR-Kannen, der Phenix-Büchsen und der Kapseln gültig.

Die Korrosion von Aluminium stellt sich gegenüber der von Edelstählen komplexer dar. Aluminium ist in der elektrochemischen Spannungsreihe im Vergleich zu den stahlbildenden Elementen des Edelstahls ein unedleres Element. Die Korrosionsresistenz des Aluminiums entsteht durch die Passivierung seiner Oberfläche mit einer chemisch inerten und dichten Aluminiumoxid-Schicht. Diese Schicht schützt vor weiterer Oxidation und Korrosion und ermöglicht dadurch den Einsatz von Aluminium als technisches Strukturmaterial. Korrosion von Aluminium kann dort auftreten, wo die schützende Oxidschicht auf mechanischem oder chemischem Wege entfernt wurde und die Bedingungen für weitere Korrosion vorhanden sind.

Korrosionsprozesse an Aluminiumummantelungen von Kernbrennstoffen basieren auf Mechanismen, die sich in Art, Ausprägung und Bedingungen (Restfeuchte, elektrischer Leitfähigkeit, Ionenkonzentration etc.) von den Korrosionsprozessen von Eisenmetallen und Stählen un-

terscheiden. Der für Aluminium-Legierungen primär zu erwartende Mechanismus ist die Lochfraßkorrosion. Diese tritt nur lokal begrenzt auf und setzt an Verletzungen der schützenden Oxidschicht an. Dies kann bei ungünstigen Bedingungen tiefreichende Löcher im Material erzeugen. Weiterhin sind für Aluminium die Mechanismen der Risskorrosion und der galvanischen Korrosion bekannt. Ausschlaggebend für die Korrosion von Aluminium ist ebenfalls die Wasserqualität. Hier wurden einige Parameter identifiziert, die es ermöglichen die Korrosion zu minimieren und somit den sicheren Betrieb und eine sichere Nasslagerung von Brennelementen zu ermöglichen. Zu diesen Parametern gehören, wie bei der Korrosion von Edelstählen, die Leitfähigkeit des Wassers sowie der Gehalt an Chlorid-Ionen. Aufgrund seiner unedleren Eigenschaft ist Aluminium sensibler gegenüber diesen Parametern als dies für Edelstähle der Fall ist. Die Korrosion von Aluminium ist im Bereich von pH 4 bis pH 9 minimal. Zusätzlich zu den o. g. Chlorid-Ionen spielen bei der Korrosion von Aluminium die Konzentrationen anderer Ionen wie z. B. die des Hydrogencarbonats oder Kupfers eine Rolle. Es handelt sich bei der Korrosion von Aluminium nicht um Einzeleffekte der einzelnen Parameter, sondern um ein Zusammenspiel aller Parameter, was eine hohe Wasserqualität in allen genannten Parametern voraussetzt /IAE 03/.

Korrosionsprobleme von aluminiumummantelten Brennstoffen konnten bereits in Anlagen weltweit beobachtet werden. Der Integritätsverlust der Brennelemente lässt sich durch den Anstieg der Spaltproduktaktivität im Beckenwasser nachweisen, welches als Integritäts-Kriterium vor der Beladung herangezogen werden kann /IAE 03/.

Wasserstoff-Aufnahme und Hydrid-Verhalten im Betrieb und in der Lagerung

Für die Werkstoffe Edelstahl und Aluminium existieren ebenfalls Aufnahmemechanismen für Wasserstoff, die denen des Zirkoniums bei den LWR-Hüllrohrmaterialien ähneln.

Aluminium-basierte Legierungen verhalten sich ähnlich zu Zirkonium-Legierungen. Bei beiden Legierungen wird Wasserstoff während der Oxidation der Metalloberfläche in das Metall aufgenommen, wodurch das Material verspröden kann. Die Ausbildung von Aluminiumhydriden gestaltet sich anders als dies für Zirkoniumhydride der Fall ist, da Aluminiumhydrid im Vergleich deutlich instabiler ist (vgl.: Zersetzung in die Ausgangsmaterialien AlH_3 : 100°C; ZrH_2 : 500°C) /WIB 07/.

Für Edelstähle sind ebenfalls Effekte der Wasserstoffversprödung bekannt, jedoch beschränkt sich der Eintrag von Wasserstoff hierbei hauptsächlich auf die Produktions- und Herstellungsverfahren der Materialien und weniger auf die Wasserstoffaufnahme während des Betriebs im Wasser /BAR 18/. Ebenso sind die Effekte des Wasserstoffs im Material selbst anders zu

bewerten. Ein primärer Mechanismus ist die Bildung von Methan aus dem im Stahl enthaltenen Kohlenstoff, was zu einer Dekarbonisierung des Stahls und somit zu Veränderungen der Materialeigenschaften beiträgt /EDE 15/.

Druckaufbau und Brennstoffschwellen

Die Brennstoffe des AVR/THTR besitzen gekapselte Brennstoffkügelchen, die in die Graphit-Matrix eingebettet sind. Hierbei sorgt eine spezielle Beschichtung der Kugeln aus Siliziumcarbid (SiC) und Pyrokohlenstoff (PyC) für die Retention der gasförmigen Spaltprodukte. Ähnlich ist dies bei den im BER II, FRM II und RFR verwendeten Dispersionsbrennstoffen, bei denen in einer metallischen Matrix (z. B. Al, Mg) die Brennstoffkeramik dispergiert ist. Die erzeugten gasförmigen Spaltprodukte verbleiben hier in der Blase, die die Brennstoffkeramik in der Metall-Matrix darstellt. Zudem initiiert die Bestrahlung chemische Reaktionen an der Schnittstelle der Brennstoffkeramik und der Aluminium-Matrix, die zur teilweisen Umwandlung der primären intermetallischen Phase hin zu Sekundärphasen führen. Die Freisetzung größerer Mengen Spaltprodukte kann durch Druckaufbau in dieser Brennstoffblase zu einem lokal begrenzten Stress in der umgebenden Matrix führen. Dies äußert sich durch das Anschwellen der Brennstoffplatten, was bei sehr hohen Abbränden zum Aufblähen der Platten (Pillowing) führen kann. Das Schwellen der Matrix bei steigendem Abbrand stellt einen regulären Prozess dar, welcher bei der Auslegung der Kernbrennstoffe aus der Sicht von neutronenkinetischen und thermohydraulischen Aspekten berücksichtigt wurde /INT 09/. Für die verlängerte Zwischenlagerung sind insbesondere die Brennstoffe mit hohen Abbränden und dem daraus resultierenden hohen Gehalt an Spaltgasen sensibel für eine geometrische Veränderungen des Brennstoffs.

Übergang in die trockene Zwischenlagerung

Mit dem Übergang in die trockene Zwischenlagerung werden die Brennelemente aus Forschungsreaktoren, genauso wie LWR-Brennelemente, in TLB eingestellt und getrocknet. Signifikante Unterschiede zu LWR-Brennelementen liegen hierbei in der geringeren Wärmeleistung der Forschungsbrennelemente und der Bauform der Behälter. Durch die Trocknung und das anschließende Befüllen der Behälter mit Inert-Atmosphäre wird die Korrosion der Brennelemente in der trockenen Zwischenlagerung minimiert. Der Trocknungsvorgang unterscheidet sich von dem bei LWR-Brennelementen. Die Forschungsbrennelemente tragen durch ihre geringe Nachzerfallswärmeleistung nicht bzw. kaum zur Aufheizung der Behälter beim Trocknungsvorgang bei. Die Qualität des Trocknungsvorgangs ist mitbestimmend für eventuelle Eigenschaftsänderungen während der Lagerung. Für die Sicherheit bei Zwischenlagerung und Transport sowie für die Integrität der Brennstoffumhüllung in der trockenen Zwischenlagerung

ist nach derzeitigem Stand insbesondere der Ausgangszustand des Brennstoffes nach der Nasslagerung und die Vollständigkeit des Trocknungsprozesses ausschlaggebend.

2.2.4 Verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung

Als verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung werden die HAW-Glaskokillen mit verglasten Spaltprodukten und Feedklärschlämmen (CSD-V) und die HAW-Glaskokillen mit verglasten Spaltprodukten aus Sellafield und die verglasten hochradioaktiven Flüssigabfälle aus der WAK bezeichnet und in diesem Kapitel zusammenfassend dargestellt. Wesentliche Unterschiede zwischen den verschiedenen genannten verglasten Abfällen sind

- Abbrände und Zusammensetzung der aufgearbeiteten Brennelemente,
- Verglasungsverfahren der einzelnen Wiederaufarbeitungsanlagen und
- Mengen an verglasten Radionukliden.

Bei der Wiederaufarbeitung von Brennelementen zur Rückgewinnung von Uran und Plutonium nach dem PUREX-Verfahren (Plutonium and Uranium Recovery by Extraction) fallen hochradioaktive, salpetersaure Lösungen an, die mehr als 99 % des ursprünglichen nichtflüchtigen Radioaktivitätsinventars des Kernbrennstoffs und bis zu 50 verschiedene chemische Elemente enthalten. Neben den im Reaktor erzeugten Spaltprodukten und Actinoiden zählen hierzu auch Korrosionsprodukte aus den Prozessanlagen sowie chemische Zuschlagsstoffe aus dem Wiederaufarbeitungsprozess.

Die Zwischenlagerung der HAW- und MAW-Kokillen erfolgt in analoger Weise wie die trockene Zwischenlagerung von abgebrannten Brennelementen. In Tab. 2.3 sind die in Deutschland zur Endlagerung vorgesehenen verglasten hoch- und mittelradioaktiven Abfälle aus der aus- und inländischen Wiederaufarbeitung zum Stichtag 31. Dezember 2019 aufgelistet.

Tab. 2.3 Zu entsorgende verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung (Stand: 31.12.2019) /GES 20/

* Werden nach aktuellem Stand substituiert und nicht mehr zurückgeführt.

Kokillenzahl und Typ	Anzahl und Typ der Transport- und Zwischenlagerbehälter, Edukte der Kokillen
VEK/Karlsruhe:	
140, VEK-Kokillen, HAW-Glaskokillen	5 CASTOR® HAW 28 CG, verglaste hochaktiven Flüssigabfälle
Orano/La Hague:	
3.024, CSD-V, HAW-Glaskokillen	74 CASTOR® HAW 20/28 CG, 12 TN®85, 1 TS28V, 21 CASTOR® HAW 28M, verglaste Spaltprodukte und Feedklärschlämme
*140, CSD-B, MAW-Glasprodukt	5 CASTOR® HAW 28M, verglaste Dekont- und Spülwässer
SL/Sellafield:	
560, HAW-Glaskokillen	20 CASTOR® HAW 28M, verglaste Spaltprodukte

Temperatureffekte bei verglasten HAW-Abfällen

Die thermische Leistung einer HAW-Kokille mit verglasten Abfällen nimmt mit der Zeit ab und verläuft analog zur Gesamtaktivität. Nach starkem Abklingen in den ersten zehn Jahren erfolgt ein langsamerer Abfall im restlichen betrachteten Lagerzeitraum. Die thermische Leistung sinkt von etwa 3 kW zum Zeitpunkt der Verglasung auf ca. 2 kW zum Zeitpunkt der Einlagerung der Kokillen in den Behälter, auf 600 W nach weiteren 40 Jahren und auf 165 W nach 100 Jahren. Auch hier sind die Spaltprodukte dominant. Von den Actinoiden leistet nur ²⁴¹Am einen wesentlichen Beitrag zur Wärme, der mit zunehmender Abklingzeit relativ größer wird und nach 100 Jahren rund 25 % der Gesamtwärmeleistung beträgt. Die Wärmeleistung durch γ -Emissionen sinkt von 1,2 kW auf 200 W nach 40 Jahren und auf 50 W nach 100 Jahren /ELL 10/.

Die thermische Gesamtenergie, definiert als Integral der Gesamtwärmeleistung über die Zeit, kann als Indikator für die Belastung des Behälters über den Lagerungszeitraum betrachtet werden. Ihre Charakteristik ist durch das zuvor beschriebene Abklingverhalten der Kokillen gekennzeichnet. Über den Zeitraum von 40 Jahren wird eine thermische Gesamtenergie von etwa 380 MWh freigesetzt. Eine Verlängerung der Aufbewahrungsdauer auf beispielsweise 100 Jahre führt zu einer Steigerung dieses Wertes auf 550 MWh, was einem Anstieg von etwa 45 % entspricht /ELL 10/.

Zu potenziellen Temperatureffekten in HAW-Kokillen mit verglasten Abfällen sind Ergebnisse aus /KIE 01/ und /MAL 89/ im nachfolgenden Abschnitt zusammengefasst.

Bei der Zwischenlagerung von HAW-Glasprodukten stellen sich durch die Nachzerfallswärme der Radionuklide (Spaltprodukte, Actinoide) insbesondere im Zentralbereich der Gebinde erhöhte Temperaturen ein, die Einfluss auf Eigenschaften und Qualität der verwendeten Borosilikatgläser haben können. Diesbezüglich bedeutsame physikalische Größen sind die kritischen Temperaturen eines Glases. Für die von der COGEMA verwendete HAW-Glasrezeptur sind folgende Temperaturen spezifiziert /COG 86/:

- Glastransformationstemperatur: $T_g = 502\text{ °C}$ (Veränderung von Glaseigenschaften)
- Glasdeformationstemperatur: $T_d = 546\text{ °C}$ (Abnahme der Formstabilität des Glaskörpers)
- Glaskristallisationstemperatur: $T_c = 610\text{ °C}$ (nachlassende Einbindung der Radionuklide in die Glasstruktur)
- Liquidustemperatur: $T_m = 1.160\text{ °C}$ (Verflüssigung des Glases)
- Maximale interne Glastemperatur bei der Verglasung: $T_i = 510\text{ °C}$

Temperaturabhängige Vorgänge, die zu sicherheitstechnisch relevanten Effekten der Glasmatrix führen können, sind

- die Entmischung (flüssig-flüssig),
- die Kristallisation,
- die Diffusion bzw. Akkumulation von Helium aus dem α -Zerfall und
- strahlungsinduzierte Diffusion von Alkali-Ionen.

Entmischung und Kristallisation

Unterhalb der Liquidustemperatur T_m befinden sich Gläser in einem metastabilen Zustand. Das Erhitzen auf die Transformationstemperatur T_g führt zur Keimbildung. Eine nennenswerte Kristallisation setzt jedoch erst bei Temperaturen oberhalb von T_g ein. Der Einfluss der Kristallisation auf die chemische Beständigkeit kann durch die Wahl der Glaszusammensetzung vernachlässigbar klein gehalten werden.

Zunächst homogene HAW-Gläser können entmischen, wenn die Temperatur des Glases die Transformationstemperatur T_g erreicht oder leicht überschreitet und die Glaszusammensetzung in einer Mischungslücke liegt. Ob diese Entmischung einen nachteiligen Einfluss auf die

chemische Beständigkeit hat, hängt von der chemischen Zusammensetzung der Phasen und vom Gefüge des Glases ab. In der Regel ist dies im Zusammenhang mit der untersuchten Fragestellung jedoch nicht zu erwarten.

Diffusion von Helium

Die Erhöhung der Glastemperatur auf die Transformationstemperatur T_g beschleunigt die Freisetzung von Helium aus dem Glas. Auswirkungen auf die Eigenschaften des Glases sind nicht bekannt, aber auch nicht zu erwarten. Abschätzungen zeigen, dass der größte Teil des aus dem α -Zerfall gebildeten Heliums über sehr lange Zeiträume (etwa 10^5 Jahre) im Glas verbleibt /KIE 01/. Dies ergibt sich daraus, dass ein Großteil des Heliums erst entsteht, nachdem sich der Glasblock auf Umgebungstemperatur abgekühlt hat.

Mögliche Auswirkungen auf die Glasmatrix durch Strahlung

Die Gesamtneutronenrate als Summe aus Spontanspaltungsneutronen und Neutronen aus (α,n)-Prozessen ist in den ersten Jahren in einer HAW-Kokille noch durch Neutronen aus Spontanspaltung dominiert. Nach etwa 20 Jahren ist die (α,n)-Neutronenrate gleichgroß und macht nach 100 Jahren sogar 90 % aller Neutronen aus. Die Neutronenrate geht dabei von $5 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ auf $1,5 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ nach 100 Jahren zurück /ELL 10/. Im Gegensatz zu direkt gelagerten abgebrannten Brennelementen tritt aufgrund des geringen Gehalts an Plutonium kein α -Aktivitätsaufbau über den betrachteten Zeitraum auf.

Strahlung induzierten Effekte und Prozesse

Die durch Strahlung induzierten Effekte und Prozesse wie die Volumenänderung, Gasbildung und Mechanische Eigenschaften in HAW-Glasprodukten sind aus den Ergebnissen in /KIE 01/, /LUT 93/ und /WEB 97/ zusammengefasst und im Folgenden skizziert.

Volumenänderung

Unter Einwirkung von α -Strahlung erfährt das Glas eine Volumenänderung. Die Größe der Volumenänderung hängt von der Dosis ab und kann durch eine exponentielle Abhängigkeit beschrieben werden. Bei einer Dosis von $1 \times 10^{19} \text{ Gy}$ (entsprechend 2×10^{18} α -Zerfällen pro Gramm und 100 Jahren) beträgt die relative Volumenänderung ca. 1,2 %.

Gasbildung

Diffusionskonstanten für Helium in HAW-Gläsern sind um 1 bis 2 Größenordnungen kleiner als in Silikatgläsern und nehmen unter Bestrahlung weiter um mehrere Größenordnungen ab. Die Helium-Atome sammeln sich in der Matrix an Defektstellen an. Die sich im Laufe der Zeit

bildende Heliummenge (ca. 10^{17} Atome pro Gramm) liegt um eine Größenordnung über der Heliumlöslichkeit des HAW-Glases, die ca. 2×10^{16} Atome/g beträgt (bei $T = 400\text{ °C}$ und $p_{\text{He}} = 10^5\text{ Pa}$). Das Auftreten von Heliumblasen konnte bei niederen Temperaturen in dotierten Gläsern unter Neutronenbestrahlung beobachtet werden. In der Edelmetallkokille kann sich langfristig Helium als Gasphase ansammeln.

Mechanische Eigenschaften

An Borosilikatgläsern, die mit den α -Strahlern ^{238}Pu und ^{244}Cm dotiert waren, wurden die mechanischen Eigenschaften untersucht. Härte und Elastizitätsmodul nahmen exponentiell mit der Dosis ab, die Bruchfestigkeit hingegen zu. Die maximalen Änderungen betrugen -25% für die Härte, -30% für den Elastizitätsmodul und $+45\%$ für die Bruchfestigkeit. Die Änderung der Bruchfestigkeit korreliert mit der Anzahl von Gasblasen, welche die Rissausbreitung behindern.

Berechnungen in /ELL 10/ zur Versprödungen der Glasmatrix durch Alpha- und Neutronenstrahlung zeigen, dass die induzierten Kernumwandlungen im Vergleich zur Atomdichte im HAW-Glasprodukt im Zeitraum von 1.000 Jahren vernachlässigbar sind und eine Gefährdung der Integrität der Glasmatrix damit während der Zwischenlagerung nicht zu erwarten ist.

Da Strahlenschäden oberhalb der Transformationstemperatur T_g verschwinden, würde sich eine Aufheizung des Glases positiv im Sinne einer Ausheilung von Defekten auswirken.

2.2.5 Zusammenfassung und Bewertung

LWR- und WWER Brennelemente

Die durchgeführten Betrachtungen und Experimente legen nahe, dass insbesondere die hochabgebrannten UO_2 -Brennelemente und -Brennstäbe hinsichtlich der temperatur- und spannungsgetriebenen Schädigungsmechanismen, wie dem Kriechen und der Versprödung infolge der Hydridreorientierung, einer näheren Betrachtung unterzogen werden sollten. Aufgrund der spezifischen Charakteristik der langsameren Abnahme der Nachzerfallsleistung nehmen MOX-Brennelemente eine Sonderrolle ein, die bei den jeweiligen Temperaturbetrachtungen zu berücksichtigen ist. In Bezug auf die potenzielle Versprödung, die mit verlängerten Lagerzeiten einhergehen kann, konnten entsprechende Effekte für die fortschrittlichen Hüllrohrmaterialien M5TM und ZIRLOTM sowie für Zry-4 in Experimenten nachgewiesen werden. Die Datenlage weist jedoch in Anbetracht des Umfangs und der vorliegenden Randbedingungen der Zwischenlagerung in Deutschland Lücken auf, die durch zusätzliche Untersuchungsprogramme geschlossen werden müssen.

Im Rahmen einer verlängerten Zwischenlagerung ist insbesondere der Zeitpunkt von Relevanz, an dem die Brennstäbe ihre jeweilige Spröbruchübergangstemperatur unterschreiten und sich somit nicht mehr duktil verhalten. Zu diesem Zweck sind entsprechende thermische Analysen erforderlich.

Die zusätzliche Gasproduktion im Brennstoff durch Alpha-Zerfälle und damit einhergehende Schwellvorgänge manifestiert sich am stärksten bzw. am frühesten bei MOX-Brennstoffen, gefolgt vom UO_2 Hochabbrand. Relevant sind in diesem Kontext insbesondere Zeitskalen, in denen es zu einer Beeinträchtigung der Retention der Gase kommen könnte, die eher dem Bereich der Endlagerung zuzuordnen wären. Eine Beeinträchtigung der Rückhaltefunktion aller in der Brennstoffmatrix gespeicherten Gase, welche durch eine hypothetische, mit dem Abbrand steigende Spaltgasproduktion bedingt wäre, würde für hochabgebrannte Brennelemente die größten Freisetzungen bedeuten.

Forschungsreaktor- und Prototypreaktorbrennstoffe

Die Vielfalt der bei Forschungs- und Prototypbrennelementinventaren eingesetzten Materialien, als Brennstoff, Matrix und Cladding und die große Bandbreite der Abbrände, die die Kernbrennstoffe erfahren haben, verhindert eine pauschale Aussage zu Degradationsmechanismen deutscher Forschungsbrennelemente bei verlängerten Zwischenlagerzeiten. Aussagen über die zu erwartenden Effekte bei der Zwischenlagerung der jeweiligen Forschungsreaktor-Brennstoffe sind nur nach einer Einzelbetrachtung der jeweiligen Brennstoffart und ihrer durchlebten Bestrahlungs- und Lagerungshistorie möglich.

Die hierzu zusammenfassenden Aussagen beziehen sich jeweils auf die – aus Sicht der Zwischenlagerung – äußere Barriere, die eine Freisetzung von Kernbrennstoffen oder Spaltprodukten in den Innenraum des Behälters vermeidet. Diese äußere Barriere stellt für die Brennelemente des BER II, FRM II, FR MZ und RFR die Brennstoffumschließung dar. Für die Kernbrennstoffe aus der Otto Hahn, der KNK II und den Kugelhaufenreaktoren AVR und THTR werden jeweils die Verpackungseinheit (Büchse oder Kanne) der Brennelemente als äußere Barriere betrachtet.

Bei einer ordnungsgemäßen und vollständigen Trocknung der Brennelemente gibt es derzeit keine Anzeichen für Schädigungsmechanismen während der trockenen Zwischenlagerung. Als wichtiger Ausgangspunkt ist jedoch der Zustand der Brennelemente bzw. Brennstoffumschließungen beim Einbringen in den Behälter anzusehen. Hier spielt, insbesondere für Aluminium-ummantelte Brennstoffe mit hohem Abbrand, die Wasserqualität in der Nasslagerung eine entscheidende Rolle. Mit den größten Unsicherheiten sind hierbei insbesondere die

Kernbrennstoffe aus dem RFR zu bewerten, was mit entsprechender Literatur /CHW 01/ zur Korrosion baugleicher Reaktoren und Brennelemente belegt werden kann. Eine Bewertung hinsichtlich der Auswirkungen auf das Inventar durch den Trocknungsprozess ist nicht möglich, da hierzu keine Informationen vorliegen. Für THTR/AVR-Brennelementkugeln und Kannen sind aufgrund der niedrigen Temperaturen während der Lagerung keine Eigenschaftsänderungen des Inventars zu erwarten. Eine Verifizierung, dass keine relevanten Eigenschaftsveränderungen auftreten, steht noch aus /ESK 15/.

Verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung

Die Datenlage bezüglich der Effekte in der verlängerten Zwischenlagerung von Abfällen aus der Wiederaufarbeitung ist für die entsprechenden Inventare relativ dünn. Als potenzielle Schädigungsmechanismen der verglasten Abfälle lassen sich insbesondere eine leichte Zunahme des Volumens der Glaskokille in Zeiträumen der verlängerten Zwischenlagerung sowie ein zu erwartender Heliumaufbau innerhalb der Edelstahlkokille identifizieren. Ein signifikanter Druckaufbau kann jedoch ausgeschlossen werden. Die Akkumulation von Gasblasen über die Zeit wirkt sich zudem positiv auf die Rissausbreitungsresistenz der Glasmatrix aus.

Des Weiteren besteht die Möglichkeit, dass sehr langsame und bei niedriger Temperatur ablaufende Vorgänge innerhalb des Hüllrohrmaterials, der Kannen oder auch generell existieren, die bisher nicht Gegenstand der Betrachtungen waren, jedoch für die verlängerte Zwischenlagerung relevant werden könnten. Der Nachweis solcher Vorgänge gestaltet sich schwierig, da diese sich nicht mit beschleunigten Alterungsversuchen hervorrufen lassen. Diese Unsicherheit besteht jedoch für alle Inventare.

2.3 Internationale Untersuchungsprogramme

Gegenwärtig haben in den USA, Japan und Korea Demonstrationsprogramme mit repräsentativ beladenen Behältern begonnen, da international die Frage der Nachweisbarkeit der Intaktheit von Brennelementen während einer verlängerten Zwischenlagerung diskutiert wird. Experimentelle Untersuchungen an bestrahlten Brennelementen zielen darauf ab, Sicherheitskriterien für verlängerte Lagerzeiträume in Bezug auf die Bewertung der Integrität der Brennelemente zu entwickeln. Im Folgenden werden die Untersuchungsprogramme in einer kurzen Übersicht vorgestellt und hinsichtlich ihrer Übertragbarkeit auf die deutschen Verhältnisse bewertet.

2.3.1 Used Fuel Disposition Campaign

Im Rahmen der "Used Fuel Disposition Campaign" wurden vom Argonne National Laboratory (ANL) experimentelle Untersuchungen an Hüllrohrsegmenten durchgeführt, welche darauf abzielen, die Auswirkungen von ausgedientem und reorientiertem Wasserstoff bei sinkenden Temperaturen besser zu verstehen und gegebenenfalls den Übergang von duktilem zu sprödem Verhalten des Hüllrohrmaterials zu quantifizieren. Als Besonderheit des Untersuchungsprogramms ist hervorzuheben, dass die verwendeten Hüllrohrproben von UO₂-Brennstäben stammen, welche in kommerziellen Kernreaktoren zum Einsatz gekommen sind.

Die Hüllrohrproben wurden im Versuchsprogramm zuerst einer Reorientierungsprozedur unterzogen, die im weitesten Sinne den Trocknungsvorgang im Behälter simulieren soll. Dabei wurden die Proben auf eine Zieltemperatur von 400 °C aufgeheizt, gleichzeitig stellte sich die gewünschte maximale Umfangsspannung ein. Die Einstellung der maximalen Umfangsspannung bei einer gewünschten Temperatur erfolgt über die Druckbeaufschlagung der Probe bei Raumtemperatur nach dem idealen Gasgesetz. Nach dem Erreichen der Maximaltemperatur wurden die Proben abgekühlt und bei definierten Temperaturen Ringdruckversuche durchgeführt und die Spannungs-Dehnungs-Kurven aufgenommen.

Untersuchungsgegenstand waren die in Tab. 2.4 dargestellten Hüllrohrmaterialien mit entsprechender Herkunft und Charakteristik /BIL 13b/. Ebenfalls mit aufgeführt sind die maximal aufgeprägten Umfangsspannungen bei 400 °C.

Die Ergebnisse zeigten im Wesentlichen, dass M5TM eine hohe Anfälligkeit zur Ausbildung radialer Hydride hat, während die Anfälligkeit bei ZIRLOTM als moderat und bei Zry-4 als gering eingestuft wurde. Die Anfälligkeit gegenüber einer Versprödung infolge radialer Hydride ist gering für Zry-4, moderat für M5TM und hoch für ZIRLOTM. Eine Erhöhung der Spröbruchübergangstemperaturen auf einen Wert oberhalb Raumtemperatur (20 °C) konnte für M5TM und ZIRLOTM für den Fall nachgewiesen werden, dass die maximale Umfangsspannung im Hüllrohr über 90 MPa betrug, wobei oberhalb dieser Spannung die Spröbruchübergangstemperatur für ZIRLOTM stärker zunahm als für M5TM. Für Zry-4 lag der respektive Spannungsgrenzwert bei 110 MPa, unterlag dabei jedoch Einschränkungen hinsichtlich des Gesamtwasserstoffgehaltes im Hüllrohr.

In einer zweiten Versuchsreihe /BIL 16/, in Tab. 2.4 rot dargestellt, wurde für Zry-4 die in den ersten Versuchsreihen festgestellte niedrige Duktilität von Proben mit hohem Wasserstoffgehalt (ca. 640±140 ppm) durch zusätzliche Ringdruckversuche an Proben ohne Durchlauf der Aufheizprozedur genauer betrachtet. Für ZIRLOTM wurden die bestehenden Daten durch

weitere Testreihen mit niedrigeren Maximaltemperaturen (350 °C) erweitert. Die erweiterten Arbeiten waren darin begründet, dass die aktuellen Best-Estimate-Analysen zum Wärmetransport im Behälter des Demo-Programms zeigten, dass die Hüllrohrtemperaturen in einem beladenen Behälter unter Umständen 350 °C nicht übersteigen. Die erste Versuchsreihe für ZIRLO™ mit ca. 640 ppm Wasserstoffgehalt zeigten ein Abnehmen der Sprödbruchübergangstemperatur von 122 °C auf 23 °C, wenn die maximale Umfangsspannung bei 400 °C von 110 MPa auf 90 MPa verringert wurde. In der zweiten Versuchsreihe betrug die Ausgangstemperatur 350 °C, die zugehörigen Umfangsspannungen beliefen sich auf 93 und 94 MPa. Die lösliche Menge an Wasserstoff verringerte sich bei einer Temperaturabnahme von 400 °C auf 350 °C um 80 ppm auf ca. 120 ppm. Dieser Anteil steht einer Reorientierung somit nicht zur Verfügung und verbleibt wie auch der restliche Anteil in Form von in Umfangsrichtung ausgerichteten Wasserstoffhydriden. Die Auswertung der Experimente ergab, dass sich die Übergangstemperatur entgegen den Erwartungen nicht verringerte und mit ca. 120 °C bestimmt wurde. Die Datenlage wurde derart interpretiert, dass für ZIRLO™ zwischen 90 MPa und 100 MPa Umfangsspannung ein steiler Übergangsbereich für die Bildung ausreichend langer radialer Hydride und folglich für die Versprödung des Materials besteht. Die Möglichkeit, dass es sich bei den Ergebnissen eventuell auch nur um Streuungen handelt, muss in Betracht gezogen und durch weitere Experimente ausgeschlossen werden.

Tab. 2.4 Übersicht der Eigenschaften der Hüllrohrproben /BIL 13b/

Material	Herkunft	Abbrand [GWd/tSM]	Wasserstoff- gehalt [ppm]	Max. Um- fangsspan- nung [MPa]	Trocknungs- zyklen
M5™	North Anna	72	76±5	-	-
	Ringhals	63	94±4	140	1
	North Anna	68	72±10	110	1
	North Anna	68	58±15	90	1
ZIRLO™	North Anna	68	530±70	-	-
	North Anna	70	650±190	140	1
	North Anna	70	425±63	110	1
	North Anna	70	350±80	110	1
	North Anna	68	530±100	90	1
	North Anna	68	480±131	90	3
	North Anna	68	535±50	80	1
	North Anna	68	530±100	89	1
	North Anna	68	480±131	88	3
	North Anna	68	564±177	93 (350 °C)	3
	North Anna	68	644±172	94 (350 °C)	1
Zry-4	H.B.R.	67	640±140	-	-
	H.B.R.	67	300±15	-	-
	H.B.R.	67	615±82	140	1
	H.B.R.	67	520±90	110	1

Für eine Übertragbarkeitsbetrachtung müssen alle Untersuchungsgegenstände und die experimentellen Randbedingungen mit der in Deutschland vorliegenden Situation verglichen werden. Die in den Experimenten untersuchten Zirkonlegierungen M5™ und ZIRLO™ als fortschrittliche Hüllrohrmaterialien für Hochabbrand, sowie Zry-4, welches über lange Zeit als Standardlegierung Anwendung fand, sind auch in Deutschland zum Einsatz gekommen bzw. werden noch verwendet. Die Bandbreite des erreichten Abbrandes der beprobten Brennstäbe von 63 bis 72 GWd/tSM ist mit dem in Deutschland gefahrenen Hochabbrand vergleichbar. Mit dem Einsatz in kommerziellen Reaktoren geht ebenfalls die Plausibilität der in den Hüllrohren befindlichen und gemessenen Wasserstoffmengen einher. Aus materialspezifischen Gesichtspunkten kann eine Übertragbarkeit somit generell als gegeben angesehen werden.

Der im Labor durchgeführte Reorientierungsvorgang kann prinzipiell mit den Vorgängen bei der Behältertrocknung verglichen werden. Die physikalischen Randbedingungen unterscheiden sich jedoch zu den in Deutschland geltenden Genehmigungsgrenzwerten. Mit 400 °C ist der maximale Temperaturwert der ANL-Experimente um 30 °C höher als der in Deutschland geltende Maximalwert von 370 °C. Der Temperaturunterschied von 30 °C führt dazu, dass in den Experimenten bei 400 °C ca. 200 ppm Wasserstoff wieder in Lösung übergeht und für

eine mögliche Reorientierung zur Verfügung steht, während im deutschen Realfall bei 370 °C ca. 170 ppm Wasserstoff wieder in Lösung übergehen könnte. Dieser Unterschied schlägt sich in der Menge und Länge der radialen Hydride nieder und kann schlussendlich eine andere Spröbruchübergangstemperatur nach sich ziehen. Bezüglich der in Experimenten aufgeprägten Umfangsspannungen bleibt festzuhalten, dass die Wertepaarungen mit einer maximalen Umfangsspannung von 140 MPa außer Acht gelassen werden können, da die Umfangsspannung in diesem Fall den in Deutschland genehmigten Wert von 120 MPa überschreitet. Folglich bleiben die weiteren Messpunkte mit Umfangsspannungen von 110 MPa, 90 MPa und 80 MPa für die weitere Betrachtung übrig. Für den deutschen Maximalfall von 120 MPa existiert kein Messwert für die Spröbruchübergangstemperatur, und es ist fraglich, ob dieser aus den anderen Messwerten interpoliert werden kann. Der Probenumfang kann als gering bezeichnet werden und erlaubt keine voll umfängliche Beschreibung des Phänomens des Spröbruchübergangs für die verschiedenen Materialien. Das zeigt sich auch innerhalb der publizierten Ergebnisse, bei denen es z. B. für ZIRLO™ zu einem nicht endgültig geklärten Anstieg der Spröbruchübergangstemperatur im Spannungsbereich zwischen 90 und 100 MPa kam.

Es bleibt festzuhalten, dass der geringe Probenumfang und die von den deutschen Grenzwerten abweichenden Versuchsparameter dazu führen, dass die Untersuchungsergebnisse des ANL nur als Anhaltspunkte für die Spröbruchübergangstemperatur der verschiedenen Materialien M5™, ZIRLO™ und Zry-4 angesehen werden können. Die Effekte der Reorientierung und Versprödung an sich konnte hinreichend gut nachgewiesen werden. Das Ausmaß und die Auswirkungen dieser Effekte unterliegen jedoch komplexen materialtechnischen und physikalischen Zusammenhängen. Soll die Zielstellung verfolgt werden, die Effekte besser einzugrenzen und zu verstehen, so ist die experimentelle Datenlage zu erweitern und auf die physikalischen Randbedingungen in Deutschland anzupassen.

2.3.2 Transportuntersuchungen

Um die auf ein Brennelement wirkenden mechanischen Belastungen während eines regulären Transports auf der Straße, der Schiene und zur See zu quantifizieren, wurden verschiedene Experimente seitens des U.S. DOE finanziert und von nationalen Forschungslaboren durchgeführt. Die Experimente werden nachfolgend kurz zusammengefasst.

Im Jahr 2013 wurde ein 17x17-DWR-Brennelement mit Surrogat-Brennstäben angefertigt. Für die auswechselbaren Brennstäbe wurden Kupferrohre und Zry-4-Rohre verwendet, welche je nach Experiment und Verwendungszweck mit Blei-, Bleipellets oder Molybdänpellets gefüllt wurden, sodass sie eine ähnliche Masse und Steifheit wie reale Brennstäbe aufwiesen. Ein Teil der Zry-4-Rohre wurde mit Instrumenten versehen. Die Instrumentierung diente der

Messung der Beschleunigung und der Verformung der Brennstäbe. Im Rahmen der Untersuchungen wurde das Test-Brennelement für die Durchführung zweier Experimente auf mechanischen Rüttelplatten eingesetzt. Das Ziel der Untersuchungen bestand in der Simulation der Vibrationen und Stöße, die beim Transport des Brennelements per LKW und Eisenbahn auftreten. Die durchgeführten Experimente ergaben, dass die Verformungsraten relativ gering ausfielen und kaum Unterschiede zwischen normalen Vibrationen und Stoßversuchen zu beobachten waren. Die maximale Verformung bei einem Stoßversuch betrug 0,213 mm/m, während sie bei den Vibrationsversuchen 0,207 mm/m betrug. Die Umrechnung der Verformung auf die Spannung resultierte in einem Wert von 20,6 MPa. Dieser Wert liegt deutlich unter den Dehngrenzen für bestrahltes Hüllrohrmaterial. Es kann folglich angenommen werden, dass für die normalen Transportbedingungen ein rein auf den resultierenden Belastungen und Verformungen aufbauender Schadensmechanismus sehr unwahrscheinlich ist /MCC 14/.

Die Versuche wurden im Folgejahr durch einen realen Transport eines instrumentierten Surrogat-Brennelementes auf einem Truck erweitert. Die 40,2 Meilen lange Strecke führte dabei über verschiedene Straßenbedingungen vom Highway bis hin zur unbefestigten Straße. Bei diesem Realversuch wurden ebenfalls die Verformungen und Beschleunigungen am Versuchsbrennelement gemessen. Die maximale Verformung betrug 0,150 mm/m und war damit niedriger als im Laborversuch auf der Rüttelplatte.

Laut den amerikanischen Experten können in Bereichen, in denen Pellet-Pellet Interaktionen stattfinden, die resultierenden Verformungen bis zum dreifachen höher ausfallen. Die äquivalente Spannung würde sich auf einem Niveau von ca. 60 MPa bewegen, was immer noch einen sehr geringen Wert darstellt, verglichen zur Dehngrenze /MCC 14/.

Eine umfassende experimentelle Untersuchung realer Transportbeanspruchungen bei Straßen-, See- und Schienentransport erfolgte zuletzt im Rahmen eines internationalen Demonstrationsprogramm zwischen U.S DOE, ENRESA und ENSA (Euqipos Nucleares S.A, Spanien) sowie KAERI (Korea Atomic Energy Research Institute) mit einem realen Behältersystem, einem ENSA-Transportbehälter ENUN-32P, welcher mit drei instrumentierten Surrogat-Brennelementen beladen war /MCC 18/. Die Transportstrecke umfasste Straßenabschnitte in Nordspanien, den Seetransport von Nordspanien über Belgien nach Baltimore (USA) sowie den Schienentransport innerhalb der USA zum Zielort in Pueblo, Colorado. Dazu kamen diverse Handhabungstests und der Rücktransport nach Spanien auf der gleichen Route (allerdings ohne Datenerfassung). Die gesamte (einfache) Transportstrecke umfasste etwa 15.000 km mit insgesamt 54 Messtagen. Die sehr umfangreichen Versuchsdaten zeigten, dass die Beanspruchungen der Brennelemente und Brennstabhüllrohre sehr deutlich unter den Festigkeits- und Ermüdungsgrenzen der Werkstoffe bzw. Bauteile liegen. Aus den Ergebnissen wird

seitens des U.S. DOE abgeleitet, dass ein Transport von bestrahlten Brennelementen unter Normalbedingungen sicher durchführbar ist und dass keine zusätzlichen Schäden infolge des Transports zu erwarten sind /HAN 19/.

Die Ergebnisse der vielfältigen und einzigartigen Versuche, welche unter anderem einen Realtest mit einem auf See, Straße und Schiene transferierten Transportbehälter umfassten, vermitteln ein grundlegendes Verständnis für die Größenordnungen der während eines Transports unter Normalbedingungen auftretenden Belastungen. Die Auswahl realistischer (Surrogat-)Brennelemente und des ENSA-Transportbehälters sowie die Konsistenz der Ergebnisse des Transports mit den Ergebnissen der Einzelversuche lassen keine Zweifel an der Belastbarkeit der Versuchsergebnisse aufkommen.

Es sei jedoch darauf hingewiesen, dass die Schlussfolgerung, ein Transport sei unter Normalbedingungen ohne sicherheitstechnische Bedenken durchzuführen, für den Transport nach einer verlängerten Zwischenlagerung unter Berücksichtigung der eventuell zum Tragen kommenden Alterungseffekte und sich verändernden Materialkennwerte abermals zu prüfen ist.

2.3.3 Demonstrationsprogramme mit beladenen Behältern

HBU Cask Demo Projekt

Das Demonstrationsprogramm dient dem Ziel, belastbare Daten für zukünftig verlängerte Zwischenlagerzeiten im Hinblick auf den Zustand der Brennelemente zu generieren. Mitte November 2017 erfolgte die Beladung eines im Deckelbereich speziell konfigurierten TN[®]32-B-Behälters im Kernkraftwerk North Anna, nachdem die U.S. NRC zuvor die entsprechende Genehmigung erteilt hatte.

Dominion Energy stellte mit der in Virginia gelegenen North Anna Power Station betreiberseitig das Zwischenlager zur Verfügung und verfügte außerdem über das gewünschte Spektrum bestrahlter Brennelemente. Der TN[®]32-B-Behälter wurde mit Brennelementen mit verschiedenen Hüllrohrmaterialien der Typen Westinghouse Zry-4, Westinghouse ZIRLO[™] und Areva M5[™] beladen. Die Abbrände lagen zwischen 50 und 55,5 GWd/tSM, die Anfangsanreicherungen zwischen 3,59 und 4,55 % U-235 /WAL 19/. Zwecks paralleler Eigenschaftsbestimmungen wurden im Jahr 2015 bereits einzelne Referenzbrennstäbe (sog. „Sister Rods“) als Rückstellproben aus den ausgewählten Brennelementen entnommen. Diese werden in einem separaten Untersuchungsprogramm teilweise im Oak Ridge National Laboratory (ORNL) und teilweise im Pacific North-West National Laboratory (PNNL) in mehreren Phasen untersucht /MON 18/. Der Behälter wurde nach der Beladung entwässert und vakuumgetrocknet, wobei

innerhalb der ersten 14 Tage Gasanalysen aus dem Innenraum zur Identifikation von Spaltgasen, Wasserstoff, Sauerstoff und Wasserdampf entnommen wurden. Im Verlauf der bisherigen Untersuchungen wurde u. a. festgestellt, dass während des Trocknungsvorgangs der maximale Messwert der Thermoelemente 237 °C betrug, was einer Hüllrohrtemperatur von 240 °C entspricht. Diese Temperatur liegt deutlich unter dem Genehmigungsgrenzwert von 400 °C für die maximale Hüllrohrtemperatur. Ebenso liegt der gemessene Temperaturwert deutlich unter den im Genehmigungsverfahren /WAL 19/ ermittelten Werten von 348 °C und 318 °C. Das Ergebnis zeigt, wie konservativ die Annahmen und Modelle im Genehmigungsverfahren sind. Bei einem nachfolgend initiierten Modellierungsbenchmark zeigte sich, dass auch mit der Anwendung gängiger Best-Estimate-Modelle die maximale Hüllrohrtemperatur typischerweise noch um 20 °C bis 50 °C überschätzt wird /Lenci et al. 2020/.

Japan

In Ergänzung zu einzelnen Inneninspektionen beladener Behälter wurde in Japan bereits im Jahr 2009 ein umfangreiches Demonstrationsprogramm in die Wege geleitet. Ein spezieller, stark verkleinerter Brennelementbehälter ist zur Aufnahme von lediglich zwei DWR-Brennelemente entwickelt worden. Die ausgewählten Brennelemente sollen über Abbrände von etwa 42 bzw. 55 GWd/tSM verfügen, wobei erstgenanntes Brennelement mit Zry-4 Hüllrohrmaterial im Jahr 2016 (Abklinglagerung ca. 21 Jahre) eingelagert wurde und dasjenige mit dem höheren Abbrand etwa 2026 eingeladen werden soll (Abklinglagerung dann ca. zehn Jahre). Die Versuchslagerung ist auf insgesamt 60 Jahre konzipiert. Die Bedingungen im Behälterinnenraum (Temperaturniveau, Druck, Gaszusammensetzung) sollen denjenigen tatsächlicher Lagerbehälter entsprechen. Da der Behälter anfangs nur mit einem Brennelement beladen wird, soll das erforderliche Temperaturniveau durch eine zusätzliche Beheizung erreicht werden. Vor Beladung wird die Intaktheit der Brennelemente nachgewiesen. Während des Versuchs werden Behälteroberflächentemperaturen und Innendruck kontinuierlich gemessen und verfolgt. Zusätzlich wird alle fünf Jahre die Innenraumatmosfera auf Kr-85 und die Gaszusammensetzung überprüft. Mit dem Ende des Demonstrationsprojektes ist eine erneute Inspektion der Brennelemente geplant, um zwischenzeitliche Veränderungen gegenüber dem Ausgangszustand identifizieren zu können /IAE 19/.

Korea - Dry-Sim6

Dry-Sim6 ist die Simulation der trockenen Zwischenlagerung im stark verkleinerten Umfang mit lediglich sechs ausgewählten Brennstäben in einem speziell dafür entwickelten Behälter. Die bestrahlten Brennstäbe aus Zry-4 verfügen über Abbrände zwischen 43 und 52 GWd/tSM. Durch eine entsprechende Instrumentierung und Beheizung sollen Hüllrohrtemperaturen von bis zu 400 °C eingestellt werden. Die Versuchsdauer ist auf drei Jahre angelegt. Nach Ab-

schluss des Versuchs sollen alle sechs Brennstäbe in einer heißen Zelle auf Materialveränderungen untersucht und eingetretene Eigenschaftsveränderungen dokumentiert und bewertet werden /IAE 19/.

Übertragbarkeit der Demonstrationsprogramme

Die Übertragbarkeit des koreanischen und des japanischen Demonstrationsprogramms ist stark eingegrenzt. Abgesehen davon, dass die Aufbauten keinen maßstäblichen Lagerbehälter repräsentieren und vielmehr Versuchsanordnungen darstellen, bildet der Untersuchungsgegenstand mit Zry-4 als Hüllrohrmaterial, sowie Urandioxidbrennstoff mit Abbränden von 42 bis 55 GWd/tSM, nicht das komplette Spektrum der in Deutschland verwendeten Materialien und der gefahrenen Abbrände (bis zu 80 GWd/tSM) ab. Das HBU (High Burnup) Demo Programm stellt vor diesem Hintergrund das realitätsnähere Versuchsprogramm dar. Es ist davon auszugehen, dass die zukünftigen Ergebnisse einen verwertbaren Erkenntnisgewinn hinsichtlich der Zwischenlagerperformance für die Hüllrohrlegierungen Zry-4, ZIRLO™ und M5™ liefern. Das Abbrandspektrum von 50 bis 55,5 GWd/tSM und die Verwendung von Urandioxidbrennelementen, d. h. es werden keine MOX-Brennstoffe untersucht, schränken teilweise auch die Übertragbarkeit der Erkenntnisse und zukünftigen Ergebnisse des HBU Demo Programms ein. Dass sich der TN®32-B-Behälter vom Design und somit auch hinsichtlich der thermischen Eigenschaften vom CASTOR® V/19 unterscheidet, muss ebenfalls berücksichtigt werden. Die bereits gewonnenen Erkenntnisse zu den deutlich niedriger ausfallenden Temperaturen und den thermischen Analysen sind somit nicht allgemein übertragbar. Die Beladung des Versuchsbehälters kann am ehesten noch mit einer homogenen Standardbeladung eines TLB mit UO₂-Brennelementen bis maximal 55 GWd/tSM mittleren Brennelement-Abbrands verglichen werden. Für die CASTOR® V/19 besteht neben der Standardbeladung die Möglichkeit der Sonderbeladung mit bis zu sechs hochabgebrannten UO₂- oder MOX-Brennelementen. Diese Sonderbrennelemente weisen wiederum ein anderes Abklingverhalten auf, so dass sich im Behälter lokal und über den zeitlichen Verlauf andere Temperaturverteilungen einstellen. Die spezifische Beladung des Behälters wirkt sich auf die Verteilung der Maximaltemperaturen der Hüllrohre und somit auch auf deren Umfangsspannung aus, was wiederum relevante Eingangsgrößen für Schädigungsmechanismen sind. Ferner bestimmt die Beladung auch die Hüllrohrtemperaturen über lange Lagerzeiten, worüber sich in der Folge auch der Eintrittszeitpunkt von Effekten, wie z. B. dem Sprödbruchübergang, bestimmt.

2.4 Radionuklidmobilität und -mobilisierung im Endlager

Die Darstellung der Radionuklidmobilität und -mobilisierung im Endlager erfordert die Auswahl und Vorstellung von referenzwirtsgesteinspezifischen Endlagerkonzepten für die drei Wirtsgesteinstypen Ton, Salz und Kristallin. Dies erfolgt in den nachfolgenden Kapiteln.

Die Auswahl der drei Wirtsgesteine basiert auf der in Deutschland bestehenden politischen und gesetzlichen Verpflichtung, ein Endlager für hochradioaktive Abfälle in diesen Gesteinstypen zu suchen, sowie auf der Verfügbarkeit einer ausreichenden Informationsgrundlage. Die Endlagerkonzepte wurden ausgewählt, weil sie für die direkte Endlagerung hochradioaktiver Abfälle in Deutschland anwendbar sein könnten, ggf. jedoch mit einer vorausgehenden Konditionierung zur Herstellung der Endlagerfähigkeit.

Die Darstellungen der Barrieren „Endlagerbehälter“ und der den Behälter umgebenden technischen/geotechnischen Barriere dienen als Grundlage für die nachfolgenden Arbeitspakete, in welchen die Radionuklidmobilität und -mobilisierung der endgelagerten Abfälle untersucht werden soll.

In diesem Kontext spielt die geologische Barriere „Wirtsgestein“ lediglich eine untergeordnete Rolle. Das Wirtsgestein spielt jedoch eine entscheidende Rolle bei der Auswahl und Art der technischen/geotechnischen Barrieren. So ist die den Endlagerbehälter umgebende technische Barriere im Kristallingestein von entscheidender Bedeutung, während sie im Salzgestein keine tragende Rolle spielt. Zudem werden weitere zu treffende Annahmen für die Ableitung eines Quellterms für Radionuklide vom Wirtsgestein beeinflusst.

2.4.1 Aufbereitung und Darstellung ausgewählter Endlagerkonzepte

Aktuelle nationale Endlagerkonzepte in unterschiedlichen Wirtsgesteinsformationen wurden zuletzt von /FAß 17a/ aufbereitet und dargestellt. Hierzu zählt auch eine Aufstellung und Beschreibung der in den verschiedenen existierenden Endlagerkonzepten vorhandenen technischen und geotechnischen Barrieren. Eine unmittelbare Rückwirkung auf die Planung eines technischen Endlagerkonzepts hat hiernach die Wahl des Wirtsgesteins. Dies betrifft insbesondere den Ausbau von Einlagerungsstrecken, Kammern und Bohrlöchern sowie zu verwendende Behälter, Auslegungstemperaturen und die spätere Verfüllung der Strecken als technische oder geotechnische Barriere um die Endlagerbehälter herum. Auch die festzulegenden Grenztemperaturen für verschiedene Wirtsgesteine erfordern demnach entsprechend der Endlagerteufe spezifisch angepasste Behälter- und Barrierenkonzepte. Eine Zusammenfas-

sung der hier betrachteten Endlagerkonzepte in Ton-, Kristallin- und Salzgestein zur Auswahl als Referenzendlagerkonzepte gibt Tab. 2.5.

Generische Endlagerkonzepte in den Wirtsgesteinsformationen Tonstein, Kristallin und Steinsalz sind auch aktuell im Forschungsvorhaben RESUS dargestellt /MÖN 20/. In diesem Vorhaben wurden wissenschaftliche Grundlagen für die Abwägung geologisch geeigneter Standorte in Deutschland erarbeitet /BER 20a/, /BER 20b/, /BER 20c/, /ALF 20a/, /ALF 20b/, /ALF 20c/, /BEC 20a/, /ALF 20d/, /BEC 20b/. Basis für die dort generisch angesetzten Behälterkonzepte sind hierbei der in Deutschland ursprünglich für die Endlagerung im Salz entwickelte POLLUX®-Endlagerbehälter sowie das Konzept der Brennstoffkokillen (CSD) für verglaste Abfälle. Im Vorhaben RESUS wird hierbei davon ausgegangen, dass der POLLUX®-Endlagerbehälter auch in den Wirtsgesteinen Tonstein und Kristallin eingesetzt werden kann /ALF 20a/, /ALF 20d/.

Tab. 2.5 Betrachtete Endlagerkonzepte

	Frankreich (Tongestein)	Schweiz (Opalinuston)	Schweden (Kristallin)	Deutschland (Salzgestein)
I. Allgemeine Informationen				Auf Basis des VSG-Konzepts
Abfallkategorien	Hochradioaktiver Abfall (HAW-Kokillen) Mittelradioaktiver langlebiger Abfall	Hochaktiver Abfall (HAA), beinhaltet abgebrannte BE und verglaste Abfälle Langlebige mittelaktive Abfälle (LMA)	Abgebrannte BE (DWR) Abgebrannte BE (SWR) Abgebrannte MOX-BE (SWR) (geringe Mengen)	Bestrahlte BE aus DWR und SWR (BE und MOX-Elemente); Bestrahlte BE aus Forschungsreaktoren (z. B. AVR); Verglaste Abfälle (HAW Kokillen) Nicht Wärme entwickelnder MAW; Urantails
Für Endlagerkonzept berücksichtigtes Abfallvolumen	10.000 m³ HAW 75.000 m³ MAW	Ca. 400 m³ verglaste Abfälle Ca. 9.000 m³ BE	Ca. 6.000 Behälter Ca. 12.000 Mg	34.630 BE (UO ₂ , MOX, DWR, SWR) Ca. 8.000 HAW-Kokillen Brennstoff aus Forschungsreaktoren ca. 2.000 m³ Urantails 35.000 m³
Betriebsdauer	Mind. 100 Jahre	15 Jahre Einlagerungsbetrieb bei einer Einlagerung von 200 Endlagerbehältern pro Jahr, zusätzlich ca. 50 Jahre Offenhaltung (Beobachtungsphase)	50 - 60 Jahre	40 Jahre Einlagerungsbetrieb
Standort				
Standort	Bure Zwischen Department Meuse und Haute Marne (östliche Region des Pariser Beckens) seit 1998	Standortauswahl bis 2031 aus drei Standortgebieten: Zürich Nordost, Jura Ost, Nördlich Lägern	Forsmark (seit 2010) Seit 1993 Machbarkeitsstudien (von 1993 - 2000) in 8 Gemeinden 2009: systematischer Standortvergleich ergibt Forsmark als Standort, der die besten Aussichten hat, die Anforderungen an die LZS zu erfüllen.	Offen Seit 2013 Neustart der Endlagerstandortsuche Referenzstandort im Projekt: Gorleben.
Wirtsgestein	Tongestein (Callovo-Oxfordian)	Opalinuston	Kristallin, Metagranit (svekokarelich)	Salz
Teufe	525 m	500 - 700 m	450 - 470 m	870 m (Standort Gorleben, nach VSG)
II. Einlagerungsfeld (HAW)				
Lagerungstyp	Horizontale Streckenlagerung (disposal cells) mit Gefälle von 1 - 2 % zum Eingang hin (Abführung von Wasser)	Horizontale Streckenlagerung 27 Lagerstollen Länge 800 m Durchmesser von 2,5 m	Referenz-Konzept: vertikale Einlagerung in Kurzbohrloch (KBS-3): vertikale Bohrlochlagerung Bohrlochtiefe ca. 8 m Durchmesser ca. 1,8 m Bentonitbuffer	Noch nicht endgültig entschieden. Derzeit scheint horizontale Streckenlagerung favorisiert zu sein. Horizontale Bohrlochlagerung von TLB und vertikale Bohrlochlagerung von BSK auch möglich

	Frankreich (Tongestein)	Schweiz (Opalinuston)	Schweden (Kristallin)	Deutschland (Salzgestein)
Ausbau der Einlagerungsstrecken/-kammern, Bohrlöcher ggf. auf Basis einer Rückholungsoption	Ausbau mit Stahlilinern Dicke mind. 25 mm	Felssicherung mit Ankern und Netzen Ausrichtung entlang der maximalen horizontalen Hauptspannung (N-S Richtung mit einer Neigung von ca. 7°) Bentonitauflager für Behälter	Maschendraht Firste und obere 1 m am Stoß Bei Bedarf auch Ankerbau	Streckenlagerung (POLLUX®) und horizontale Kurzbohrlöcher (CASTOR® TLB). Ausbau nicht erforderlich da RE-Miningkonzept (Behälterfreilegung durch bergbauliche Tätigkeiten) Bohrlochlagerung (Metallliner mit Sandversatz)
Strecken/Kammern Anzahl		Ca. 27 Einlagerungsstrecken	Raum für ca. 7.800 Einlagerungsbohrlöcher Ca. 1.170 Einlagerungsstrecken	Laut VSG werden ca. 130 Strecken in der POLLUX/CASTOR®- Streckenlagerung, 17 im BSK-Bohrlochkonzept (bei ca. 225 Bohrlöchern), und ca. 1.600 Kurzbohrlöcher im horizontalen TLB-Kurzbohrlochkonzept geplant.
Querschnitte	Innendurchmesser ca. 70 cm	Durchmesser der Einlagerungsstrecken beträgt 2,5 m	<u>Hauptbetriebsstrecken:</u> B: 10 m, H: 7 m <u>Transportstrecken:</u> B: 7 m, H: 6 m <u>Einlagerungsstrecken:</u> B: 4,2 m, H: 4,8 m <u>Rampe:</u> B: 5,5 m, H: 4,8 m	<u>Richtstrecke Nord:</u> max. Breite 7,6 m max. Höhe 3,45 m <u>Richtstrecke Süd:</u> max. Breite 6,8 m max. Höhe 3,8 m <u>Einlagerungsstrecke:</u> max. Breite 3,7 m max. Höhe 5,1 m
Längen	80 m bis 100 m	Länge der Einlagerungsstollen beträgt 800 m	Max. 300 m lange Einlagerungsstrecken Gesamtlänge aller Einlagerungsstrecken ca. 61 km	Je nach geologischer Gegebenheit unterschiedliche Streckenlängen
Strecken Abstände	Kammerabstände variieren nach Wärmeentwicklung und Anzahl der Endlagergebinde	Ca. 40 m zwischen den einzelnen Einlagerungsstollen (resultierend aus dem maximal zulässigen Temperaturfeld)	Ca. 6 - 7 m Abstand zwischen den Einlagerungsbohrlöchern Ca. 40 m Abstand zwischen den Einlagerungstunneln	Abstände sind abhängig von der Wärmeleistung der Gebinde
III. Thermische Auslegung				
Grenztemperatur Behälteroberfläche		140 °C (10 Jahre nach Einlagerung erreicht)	< 100 °C (Bentonit-Buffer) Max. 1.700 W/Behälter	200 °C
Grenztemperatur Verfüllmaterial		125 °C in der äußeren Hälfte des Bentonitbuffers	< 100 °C	Keine definierte Grenztemperatur am Übergang Verfüllmaterial/Wirtsgestein.
Grenztemperatur am Wirtsgestein	90 °C	100 °C	< 100 °C	-

	Frankreich (Tongestein)	Schweiz (Opalinuston)	Schweden (Kristallin)	Deutschland (Salzgestein)
IV. Behälterkonzept (HAW)				
Behälterart	Sechs verschiedene HAW Behälter	Zylindrische Stahlbehälter für BE und Behälter mit Glaskokillen	<u>KBS-3-Referenz Design:</u> Gusseisen Innenbehälter mit dichter Korrosionsbarriere aus Kupfer	<u>Streckenlagerung:</u> POLLUX®-10, POLLUX®-9, CASTOR® THTR/AVR, CASTOR® KNK, CASTOR® MTR 2, CASTOR® V/19, CASTOR® V/52, CASTOR® 440/84, CASTOR® HAW 20/28 CG und TS 28 V, TN®85, CASTOR® HAW 28 M, TGC 36 <u>Bohrlochlagerung:</u> BSK-(3)R
Maße	Zylinderförmig Längen ca. 1 m bis 2,3 m Durchmesser ca. 0,6 m	<u>Zylinderförmige Stahlbehälter für BE:</u> Länge: 4,93 m Durchmesser: 1,05 m Mindestwandstärke: 0,15 m <u>Behälter für Kokillen:</u> Länge: 3,4 m Durchmesser: 0,95 m	Zylinderförmig Länge: ca. 4,855 m Durchmesser: ca. 1,05 m	<u>Pollux® Behälter:</u> Länge 6 m, Durchmesser 1,58 m POLLUX®-9, POLLUX®-10 Behälter, L = 5,5 m, D = 1,56 m, TLB: D = 2,5 m L = ca. 5 m; BSK- R: L = 5 m, D = 0,5 m (konisch) <u>Transferbehälter für HAW Kokillen:</u> Länge 5,57 m, Durchmesser 1,3 m BSK-R: Länge 5 m, Durchmesser 0,52 m konisch <u>Behälter für horizontale Bohrlochlagerung:</u> z. B. CASTOR® V/19: Länge 5,87 m Durchmesser 2,43 m Behälter für MAW Abfälle entsprechend Endlager Konrad Annahmebedingungen
Gewicht	Max. 3,2 t	BE max. 30 t, verglaste Abfälle max. 15 t	Max. 24,7 t für SWR-BE Max. 26,8 t für DWR-BE	POLLUX® Behälter max. 65 t Transferbehälter für vertikale Bohrlochlagerung: 52 t Behälter für die horizontale Bohrlochlagerung (z. B. CASTOR® V/19): 124 t
Material	Unlegierter Stahl	Behälter für BE und Glaskokillen aus unbeschichtetem Stahl (Karbonstahl ASTM A516 Grade 70). Ggf. ist eine Beschichtung/Ummantelung vorgesehen.	Kupfer (> 99,99 %, ca. 50 mm Wandstärke), Stahl (Deckel), Gusseisen, (hierbei im Gusseisen: Eisen-gehalt > 90 %, Kohlenstoff < 6 %, Silizium < 4 %, Kupfer < 0,05 %)	Sphäroguss (GGG40), Edelstahl, Polyethylen, Graphit, Borsilikatglas

	Frankreich (Tongestein)	Schweiz (Opalinuston)	Schweden (Kristallin)	Deutschland (Salzgestein)
Gebindeaufbau	Ein oder zwei Primärpakete in einem Endlagercontainer Wanddicke 53 mm - 65 mm 4 Keramikpads am Container zum Schieben in der Endlagerkammer	Innendesign unterschiedlich für BE aus DWR und SWR 4 DWR- oder 9 SWR-BE in einem Endlagerbehälter Für verglaste Abfälle sind zwei HAW-Kokillen pro Endlagerbehälter vorgesehen.	Innendesign unterschiedlich für DWR- und SWR-BE Innenbehälter aus Gusseisen, Deckel aus Stahl, Ummantelung aus hochreinem (99,99 %) Kupfer, Wandstärke 50 mm (nominal)	POLLUX® Behälter aus Feinkornbaustahl (Werkstoff 1.6210), Wandstärke 160 mm, fünf Kammern zur Aufnahme von Brennstäbchen mit Brennstäben CASTOR® Behälter (TLB) zur Aufnahme von BE aus Forschungsreaktoren, zylindrischer Grundkörper aus Gusseisen mit Kugelgraphit (Werkstoff 0.7040)
Behälterstabilität		Muss für mindestens 1.000 Jahre gewährleistet sein: Wandstärke BE: 120 mm Verglaste Abfälle: 140 mm	100.000 Jahre und mehr Anforderung aus dem schwedischen Regelwerk: Gewährleistung der Barrierefunktionen min. 10.000 Jahre nach Verschluss des Endlagers	Handhabbarkeit der Endlagerbehälter muss nach Endlager Verschluss für Zeitraum von 500 Jahren gewährleistet sein
Mechanische Auslegung		Für Handhabung Maximale horizontale Hauptspannung 29 MPa, minimale horizontale Hauptspannung 22 MPa, vertikale Spannung 22 MPa, hydrostatischer Druck 9 MPa, Quelldruck des Bentonit 4 MPa	Isostatischer Druck: 45 MPa 5 cm shear movement at velocity of 1 m/s bei $T_{min} = 0\text{ °C}$	Für Handhabung, Handhabungsunfälle (Absturz)
Thermische Auslegung		Entsprechend ISO 15156 Ca. 0,05 W/mm/K	Max. 1.700 W	Muss die aufgrund des radioaktiven Zerfalls entstandene Wärme abführen können
Wärmeleitfähigkeit		Entsprechend Auslegung ($< 120\text{ °C}$ an Behälteroberfläche)	Entsprechend Auslegung $< 100\text{ °C}$ an Behälteroberfläche	Entsprechend Auslegung
Abschirmeigenschaften		$< 2\text{ mSv/h}$ bei Kontakt mit der Behälteroberfläche	$< 1\text{ Gy/h}$ an Behälteroberfläche	Bis auf BSK alle selbstabschirmend
Korrosionseigenschaften		Korrosionsrate muss geringer sein als $10\text{ }\mu\text{m}$ pro Jahr $< 1000\text{ mSv/h}$ an der Behälteroberfläche zur Beschränkung der strahleninduzierten Korrosion	Die Dicke des Kupfermantels (5 cm) soll für den Bewertungszeitraum von 1 Mio. Jahre für das Referenzszenarium eine ausreichende Korrosionsbarriere darstellen. Nach 100.000 Jahren keine Durchdringung des Kupfermantels durch Korrosion.	
V. Verfüll- und Verschlusskonzepte				
Einlagerungsstrecken	Keine Hohlraumverfüllung zw. Gebinde und Kammerwand Kammerverschluss mit Pfropf Strecke ab Pfropf wird mit Tonmaterial versetzt	Vollständige Verfüllung der Einlagerungsstrecken mit Bentonitgranulat mittels Verfüllwagen mit Spiralförderer Versiegelung der Einlagerungsstrecken mit Betonpropfen	„Backfill“, Bentonitblöcke Am Übergang zur Betriebsstrecke: mehrschichtiges Abdichtungsbauwerk (Beton)	Nach Einbringen eines Behälters wird der entsprechende Abschnitt mit Salzgrus verfüllt.

	Frankreich (Tongestein)	Schweiz (Opalinuston)	Schweden (Kristallin)	Deutschland (Salzgestein)
Betriebsstrecken	Zugangsgalerien erhalten Versiegelungen an bestimmten Punkten in den untertägigen Strukturen	Teilweise Verfüllung (Umladebereiche, Abzweiger, manche Betriebstunnel) bis Ende der Beobachtungsphase Verfüllung mit Bentonit	Kompaktiertes Gesteinsmaterial oder vor-kompaktierte Tonkomponenten	Je nach Fortschritt der Einlagerung werden nicht mehr benötigte Querschläge und Richtstrecken mit Salzgrus versetzt.
Verschlussbauwerke	Zwei Begrenzungen aus Beton, dazwischen Verfüllung mit quellfähigem Ton und Entfernung des Liners (Rampen und Schächte)	Betonpropfen zur Abdichtung zwischen Einlagerungs- und Betriebsstrecken (sog. Zwischensiegel) Für die Rampen- und Schachtversiegelung werden u. a. Dichtelemente aus Bentonitgranulat und eine Bentonit/Sand-Mischung verwendet.	Mehrschichtige Abdichtungsbauwerke (Beton) dichten Einlagerungsstrecke zur Betriebsstrecke ab Haben keine (ausgewiesene) Barrierefunktion Schachtabdichtung soll im oberen Teil des Schachtes unbeabsichtigtes Eindringen verhindern.	An ausgewählten Stellen werden Verschlussbauwerke erstellt. Dies betrifft den Einlagerungsbereich und den Schacht.

2.4.2 Behälterkonzepte

Die in Tab. 2.5 betrachteten Endlagerkonzepte und die damit zusammenhängenden Behälter- und Barrierenkonzepte unterscheiden sich sowohl in Bezug auf das Wirtsgestein (Ton/Tonstein, Granit, Salz), die Einlagerungskonzepte (Streckenlagerung, Bohrlochlagerung), als auch auf die Ausmaße (Gewicht, Materialien, Integritätszeitraum, etc.). Die benötigten Zeiträume von mehreren Jahrzehnten von Beginn der Einlagerung bis zum Verschluss des Endlagers (Betriebsphase) bzw. bis zu einer eventuellen Rückholung oder Bergung müssen demnach auch für die Behälterintegrität, deren Handhabung und Handhabbarkeit sowie für die verfügbare Technik eingeplant werden.

Endlagerbehälter für radioaktive Abfälle haben hiernach verschiedene Funktionen zu erfüllen. Unterschiedliche Wechselwirkungen dieser Funktionen sind für das Design und die sicherheitstechnische Auslegung zu betrachten. Die Behälter stellen im Konzept des sicheren Einschlusses der radioaktiven Abfälle die erste wesentliche technische Barriere zur Rückhaltung der Radionuklide dar (passive Sicherheit) /ESK 19/. Auch der Brennstoff-, Glas- oder Abfallmatrix sowie dem Hüllrohr oder der Stahlkokille werden Barriereigenschaften zugeschrieben (vgl. Kapitel 2.2).

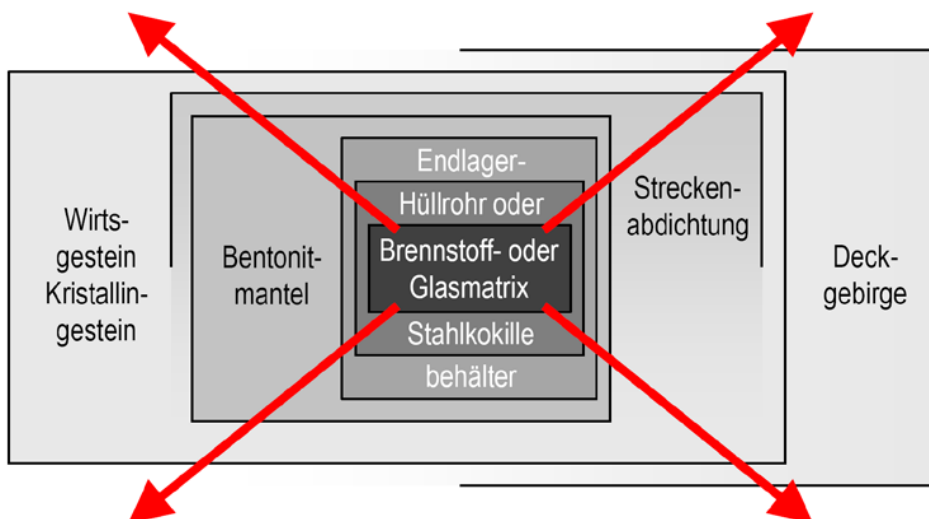


Abb. 2.2 Konzept eines Barrierensystems in Kristallingestein /ESK 19/

In der Betriebsphase eines Endlagers (Einlagerungsbetrieb, eventueller Rückholungsbetrieb) sind zudem Strahlenschutzaspekte und die Arbeitssicherheit zu betrachten.

Das Inventar der Behälter (Abfallmenge und Abfallart) bestimmt zum einen dessen Wärmeleistung und kann zum anderen durch die radioaktive Strahlung das Behältermaterial und damit dessen Eigenschaften beeinflussen. Dies ist bei der Auslegung des Behälters für die

Langzeitsicherheit und auch für einen angenommenen Störfall in der Betriebsphase (mechanische, thermische Einwirkungen, Behälterintegrität) zu beachten, damit die Sicherheitsfunktion „Rückhaltung der radioaktiven Stoffe“ erhalten bleibt.

Die Integrität bzw. die Handhabbarkeit der Einlagerungsbehälter ist wesentlich für die technische Umsetzung der Einlagerung bzw. für eine eventuelle Rückholung der Abfallgebinde. Das Einlagerungskonzept (Streckenlagerung, Bohrlochlagerung) und das Wirtsgestein sind Randbedingungen für die Entwicklung von technischen Lösungen zur Handhabung der Behälter. So limitiert bspw. der Zugang zum Endlagerbergwerk (Schacht oder Rampe) das Gewicht und die Größe der Behälter. Dies wirkt sich unmittelbar auf die Menge der radioaktiven Abfälle aus, die in einen Behälter eingebracht werden können.

Neben der Langzeitbeständigkeit von Behältersystemen (Langzeitsicherheit) und der Handhabbarkeit für eine ggf. spätere Bergungsoption oder auch Rückholungsoption, stehen in der Betriebsphase des Endlagers (Einlagerungsbetrieb und optionaler Rückholungsbetrieb) zusätzliche weitere Anforderungen an die Behälter im Vordergrund. Nach /SCH 16/ gibt es allgemeine Anforderungen, die sich auf die Einhaltung von Dosisleistungsgrenzwerten, die Kritikalitätssicherheit und Freisetzungsgrenzwerte beziehen.

Endlagerspezifische Anforderungen ergeben sich in Hinblick auf die zulässige Wärmeleistung, Behälterabmessungen und Behältermassen sowie die Berücksichtigung von potenziellen Störfällen. Das Behälterdesign muss hiernach sowohl in der Betriebsphase als auch ggf. bei einer möglichen Rückholung die Handhabbarkeit, den Schutz des Personals, die Abschirmung (ggf. in Verbindung mit einem Transferbehälter) und Aktivitätsrückhaltung und die mechanische Integrität bei dynamischer Belastung sicherstellen. Neben der Langzeitbeständigkeit von Behältersystemen (Langzeitsicherheit) und der Handhabbarkeit für eine ggf. spätere Bergungsoption oder auch Rückholungsoption, stehen in der Betriebsphase des Endlagers (Einlagerungsbetrieb und optionaler Rückholungsbetrieb) zusätzliche weitere Anforderungen an die Behälter im Vordergrund. Nach /SCH 16/ gibt es allgemeine Anforderungen, die sich auf die Einhaltung von Dosisleistungsgrenzwerten, die Kritikalitätssicherheit und Freisetzungsgrenzwerte beziehen. Dies ist in den dargestellten Konzepten im Behälterdesign berücksichtigt.

2.4.3 Endlagerkonzept im Tonstein

Aufgrund seiner spezifischen Eigenschaften wird das Wirtsgestein Tonstein als potenzielles Medium für die Langzeitisolation von radioaktiven Abfällen in Betracht gezogen. Zu diesen Eigenschaften zählen unter anderem die hydraulische Durchlässigkeit, Porosität, die

Dominanz diffusionsbasierter Transportprozesse, das plastische Verhalten, die Puffer- und Sorptionseigenschaften sowie reduzierende Bedingungen /BOL 11a/.

Aufgrund der Gesteinseigenschaften des Wirtsgesteins Tonstein, insbesondere der Plastizität und der im Vergleich zu Salzgestein und Kristallin geringeren Festigkeit, ergeben sich aus bau- und geotechnischen Stabilitätsgründen besondere Anforderungen, beispielsweise an den Ausbau der Strecken. Infolge der geringeren Standfestigkeit sind verstärkte Maßnahmen für den Ausbau zu treffen. Ein Beispiel für die Ausrichtung der Einlagerungsstrecken ist die Orientierung anhand des geomechanischen Spannungsfeldes, d. h. entlang der maximalen horizontalen Hauptspannung. Diesbezüglich ist festzuhalten, dass der Querschnitt der Einlagerungsstrecken am geringsten beansprucht wird, wodurch weniger aufwändige Felssicherungsmaßnahmen ausreichend sind. Als Beispiel kann hier das Schweizer Konzept angeführt werden, bei dem eine Verankerung mit Draht- und Armierungsnetzen erfolgt. Im französischen Endlagerkonzept Cigéo (Centre industriel de stockage géologique) ist ein Komplettausbau der untertägigen Strecken und Kammern vorgesehen /INS 17/. Der Ausbau der Einlagerungskammern für die HAW-Abfälle (horizontale Bohrlöcher) erfolgt mittels eines Stahl liners. Ein Grund hierfür liegt in den Stabilitätseigenschaften des Wirtsgesteins sowie der langen vorgesehenen Betriebszeit von über 100 Jahren. Ein weiterer Grund ist die Anforderung der Rückholbarkeit der eingelagerten radioaktiven Abfälle. In Bezug auf die Bewertung der Barriereintegrität ist zudem zu berücksichtigen, dass die eingebrachten Ausbau- und Endlagermaterialien aufgrund möglicher korrosiver Wirkungen eine potenzielle Beeinträchtigung darstellen können /BOL 11a/.

Auch die Schweiz präferiert eine Endlagerung im Tongestein. Aufgrund der differierenden Eigenschaften des Tongesteins in der Schweiz im Vergleich zu Frankreich wurde ein alternatives Barrierenkonzept vorgeschlagen. Das schweizerische Barrierekonzept postuliert, dass die Behälter die Einschlusswirkung der radioaktiven Abfälle für mindestens 1.000 Jahre gewährleisten müssen, um eine hinlängliche Zeitspanne bis zur vollständigen Quellung der umgebenden Bentonit-Barriere zu gewährleisten. Diesbezüglich ist eine Auslegung der Behälter erforderlich, welche eine Beständigkeit gegenüber der zu erwartenden isostatischen Belastung sowie Scherbewegungen gewährleistet. Diese mechanischen Beanspruchungen resultieren unter anderem aus der Auflast des Gebirges sowie dem bei der Aufsättigung des Bentonits entstehenden Quelldruck. Des Weiteren darf es bei dem zu erwartenden geochemischen Milieu zu keiner flächenhaften Korrosion oder zu keinem Lochfraß sowie zu keiner unzulässigen thermischen Beanspruchung kommen, welche die Einschlusswirksamkeit gefährden. Die Auslegungsanforderung an die Wärmeleitfähigkeit der Behälter und damit an die maximale Behälteroberflächentemperatur liegt beim Schweizer Endlagerkonzept bei einer Temperatur von 140 bis 160 °C und einer Maximaltemperatur von etwa 70 bis 95 °C an der Grenze zwischen

Bentonit und Wirtsgestein. Im französischen Konzept ist eine Temperatur von 90 °C im Wirtsgestein nicht zulässig.

Im Rahmen der weiteren Betrachtung wurde das Schweizer Endlagerkonzept im Tonstein ausgewählt, da es die direkte Endlagerung von abgebrannten Brennelementen vorsieht.

2.4.3.1 Schweizer Endlagerkonzept im Tonstein

Im Endlagerkonzept der Schweiz sollen im Opalinuston in einer Teufe von ca. 650 m neben hochradioaktiven Abfällen (HAA) auch schwach- und langlebige mittelradioaktive Abfälle (SMA, LMA) endgelagert werden /WEY 17/. Neben dem eigentlichen Endlager mit Einlagerungsfeldern ist zusätzlich auch die Errichtung eines Test- und eines Pilotlagers vorgesehen (siehe Abb. 2.3).

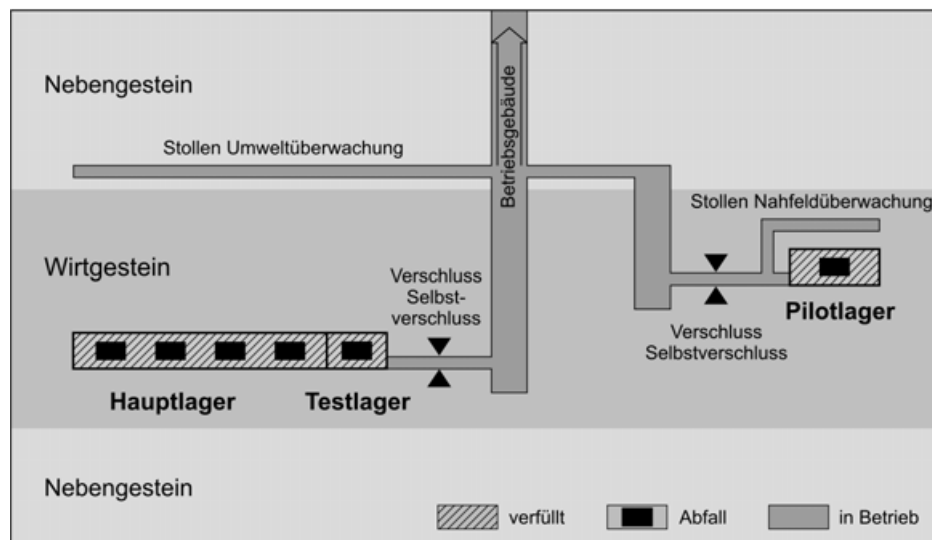


Abb. 2.3 Schematisches Schweizer Endlagerkonzept /WIL 00/

Die Langzeitsicherheit des Endlagers beruht auf einem Mehrbarrierenkonzept (*defence-in-depth*). Hierzu gehören technische Barrieren (Behälter, Konditionierungsmaterialien), geotechnische Barrieren (Verfüll-, Verschluss-, Versiegelungsmaterialien) und geologische Barrieren (Wirtsgestein und umgebendes Gestein) /NAG 03/. Das Barrierenkonzept (siehe Abb. 2.4) basiert auf der Voraussetzung, dass die Behälter eine Einschlusswirksamkeit von mindestens 1.000 Jahren gewährleisten (siehe Kapitel 2.4.3.1.1). Nach diesem Zeitraum gewähren Bentonit als Verfüll- und Versatzmaterial, Bentonitauflager für die in den Einlagerungskammern horizontal eingelagerten Endlagerbehälter und der Opalinuston als Wirtsgestein die einschlusswirksamen Eigenschaften. Der Bentonit als Verfüll- und Versatzmaterial wird in Form von Pellets in Einlagerungsstrecken eingebracht, die über den Zeitverlauf Wasser aus dem

Wirtsgestein aufnehmen und somit eine gering hydraulisch durchlässige Barriere darstellen. Aufbereiteter Opalinuston als Verfüllmaterial wird nicht verfolgt, da dessen Quellfähigkeit vergleichsweise gering ist, mikrobielle Aktivitäten begünstigt werden und sich nachteilig bzgl. Interaktion mit Behältern auswirken können /ENS 17/.

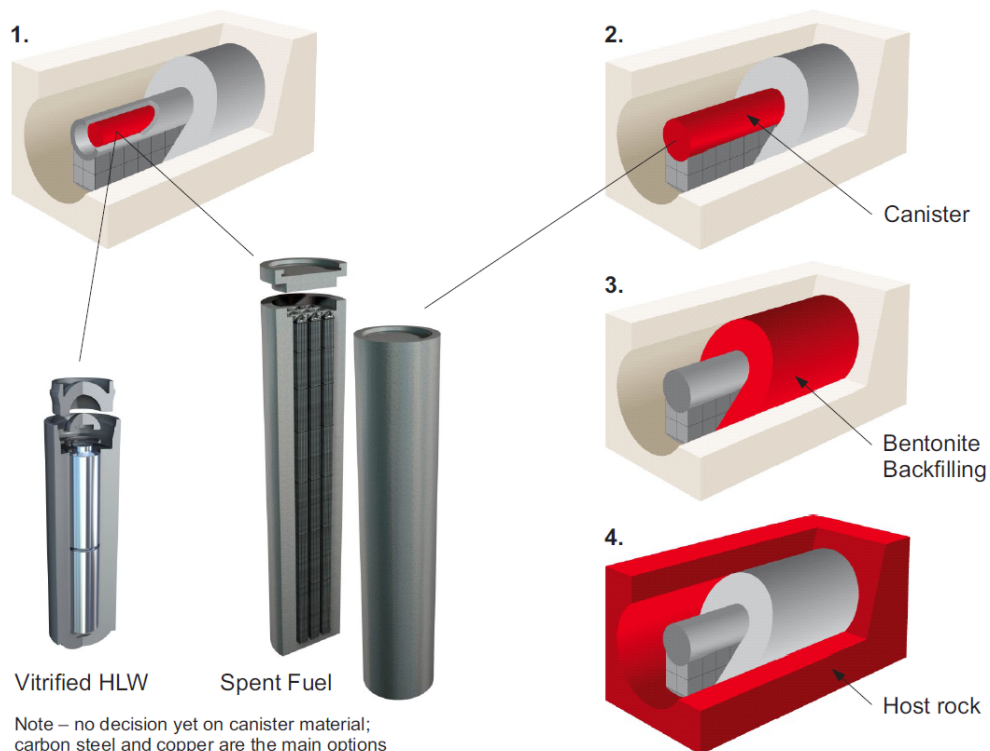


Abb. 2.4 Barrierenkonzept (Behälter, Verfüllmaterial, Wirtsgestein) /PAT 12/

Die Einlagerung von hochradioaktiven Abfällen erhöht die Temperatur in den technischen Barrieren bzw. des Wirtsgesteins. Hierdurch können sicherheitstechnische Eigenschaften (z. B. Quellfähigkeit des Bentonits, Anstieg des Porenwasserdrucks) der technischen und geologischen Barrieren beeinträchtigt werden /SCH 08/. Die Wärmeentwicklung darf daher nicht zu Temperaturen führen, welche die sicherheitsrelevanten Eigenschaften der technischen und geologischen Barrieren signifikant beeinträchtigen /ENS 10/, weshalb in der äußeren Hälfte des Bentonitbuffers eine Maximaltemperatur von 125 °C vorgeschrieben ist /JOH 02/. Bei einem erwarteten Wassergehalt von ca. 2 Gew. % im Bentonit wurde hieraus die Anforderung an eine Maximaltemperatur von 140 bis 160 °C an der Behälteroberfläche definiert und eine Maximaltemperatur von etwa 70 bis 95 °C an der Grenze zwischen Bentonit und Wirtsgestein.

2.4.3.1.1 Abfallinventar und -charakterisierung

Die in der Schweiz anfallenden radioaktiven Abfälle entstehen bei Betrieb und Stilllegung der Kernkraftwerke sowie des zentralen Zwischenlagers, bei der Wiederaufarbeitung von Brennelementen und in der Medizin, Industrie und Forschung (MIF-Abfälle).

Die Abfälle werden in vier Kategorien (Schweizer Nomenklatur) eingeteilt /NAG 08/. Diese Kategorien sind

1. Schwach- und mittelaktive Abfälle (SMA),
2. Abgebrannte Brennelemente,
3. Hochaktive Abfälle (HAA) sowie
4. Langlebige mittelaktive Abfälle (LMA).

Das Inventar für radioaktive Stoffe in der Schweiz wurde erstmals im „*Projekt Gewähr 1985*“ /NAG 84/ erfasst und basierend auf modellhaften Abschätzungen im Vorhaben „Modellhaftes Inventar radioaktiver Abfälle“ (MIRA) /ALD 94a/, /ALD 94b/ aktualisiert. Im Rahmen des Schweizer Entsorgungsnachweises wurde eine Teilrevision für Brennelemente/HAA durchgeführt /MCG 02/ und anschließend grundlegend für SMA, LMA und HAA/Brennelemente aktualisiert, das als „Modellhaftes Inventar für radioaktive Materialien“ (MIRAM) weitergeführt wird /NAG 08/.

Die abgebrannten Brennelemente werden nach ihrem Reaktortyp (DWR bzw. SWR) und ihrer Zusammensetzung (UO₂ oder MOX) unterschieden. Insgesamt ist mit ca. 4.070 t abgebranntem Brennstoff zu rechnen, das sich auf 8.667 SWR- und 3.617 DWR-Brennelemente verteilt /NAG 17/. Unverpackt entspricht dies einem Gesamtvolumen von 1.357 m³.

Die anfallenden Wiederaufarbeitungsabfälle (entstanden aus ca. 1.140 t Uran /NAG 17/) stammen von den AREVA-Anlagen sowie aus Sellafield. Die verglasten Abfälle befinden sich in 180-l-Kokillen. Insgesamt sind 115 m³ konditioniert und 380 m³ verpackt /NAG 15/. Die Rückführung der Glaskokillen ist seit dem Jahr 2016 abgeschlossen /NAG 17/.

Das Gesamtvolumen aller HAA beträgt unverpackt 9.402 m³ (inkl. weiterer 8 m³ HAA des Bundes) /NAG 17/.

2.4.3.1.2 Das Behälterkonzept der Schweiz

Das Auslegungskonzept der Behälter für ein Endlager soll die Einschlusswirksamkeit der Behälter für mindestens 1.000 Jahre gewährleisten /ENS 09/ (siehe Abb. 2.5). Hierfür werden zwei unterschiedliche Behälterkonzepte entwickelt. Diese sind

- Endlagerbehälter für abgebrannte Brennelemente und
- Endlagerbehälter für hochradioaktive Verglasungsabfälle aus der Wiederaufbereitung.

Bis zum Jahr 2025 sollen die Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zum Behälterdesign inkl. Materialuntersuchungen abgeschlossen sein. Danach sollen bis 2035 Optimierungs- und Detailstudien erfolgen, anschließend bis 2045 die Herstellung von Prototypen /PAT 12/.

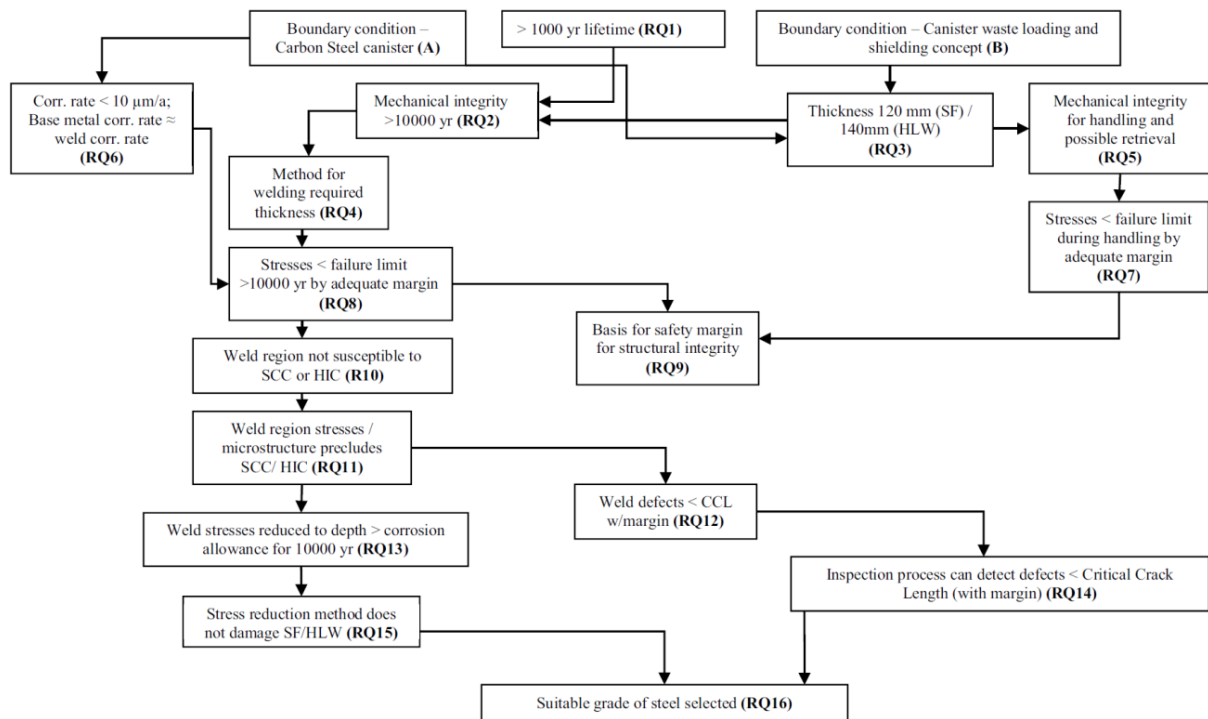


Abb. 2.5 Anforderungen an einen Behälter für HAA/Brennelemente /PAT 12/

Die Behälter sollen aus geschmiedetem Stahl ohne Beschichtung /ZUI 14/ des Typs „ASTM 1516 Grade 70“ bestehen /PIK 10/. Die erhöhte Gasbildung durch die mögliche Korrosion des Edelstahls bzw. dessen Auswirkungen gelten als unproblematisch /NAG 16a/. Ggf. kann ein beschichteter Stahl gewählt und metallische Einbauten entfernt werden, um die Gasbildung zu reduzieren. Zur Entscheidung einer Beschichtung/Ummantelung muss zunächst die Frage der gewählten Stollenverfüllung geklärt werden. Keramik wird ausgeschlossen /ENS 17/.

Die Stahlbehälter werden für eine mechanische Standfestigkeit von 1.000 Jahren ausgelegt. Hierfür werden für die mögliche Endlagertiefe typische mechanische Parameter zum geoechemischen Spannungsfeld und dem hydrostatischen Druck gewählt und der zunehmende Druck durch das Aufquellen des Bentonits als Verfüllmaterial berücksichtigt /PAT 12/. Als Alternativkonzept zu den Stahlbehältern soll an einem kupferbeschichteten Behälter geforscht werden /NAG 16b/.

Die Behälterauslegung nach /PAT 12/ zeigt, dass

1. nach zehn Jahren eine maximale Temperatur an der Behälteroberfläche von 140 °C erreicht wird und diese nach 10.000 Jahren lediglich 45 °C beträgt /LAN 09/,
2. der maximal zulässige Innendruck von 10 MPa infolge der Diffusion von gasförmigem Wasserstoff entstanden durch Korrosionsprozesse an der Behälteroberfläche in den Behälter hinein nach 8.000 Jahren erreicht wird /TUR 09/,
3. durch die Gebirgsauflast und das Quellen des Bentonits innerhalb von zehn Jahren ein isostatischer Druck von 10 MPa und nach 8.000 Jahren von 22 MPa erreicht wird,
4. und dass nach 10.000 Jahren bei einer Korrosionsrate von 2 µm/a /LAN 09/ die Materialwandstärke durch eine flächenhafte Korrosion um ca. 20 mm gesunken sein wird. Das Auftreten von lokalem Lochfraß in einem signifikanten Maß wird nicht erwartet /KIN 08/, /L. H. Johnson, F. King 2003/.

Als Endlagerbehälter für abgebrannte Brennelemente sollen zylindrische Stahlbehälter mit integrierter Abschirmung, einer Mindestwandstärke von 0,15 m, einer Länge von ca. 5 m und einem Durchmesser von ca. 1 m verwendet werden (siehe Abb. 2.6). In einen Endlagerbehälter sollen vier DWR- oder neun SWR-Brennelemente verpackt werden /NAG 17/.



Abb. 2.6 Stahlbehälter für abgebrannte Brennelemente /NAG 17/, /PAT 12/

Kokillen mit verglastem hochradioaktivem Abfall sollen in Endlagerbehälter aus Stahl (bzw. als Alternativmaterial Kupfer /PAT 12/) mit verschweißtem Deckel verpackt werden. Jeweils drei Stahlkokillen werden in einen Endlagerbehälter (siehe Abb. 2.7) mit einem Volumen von 1,89 m³ verpackt /NAG 17/.

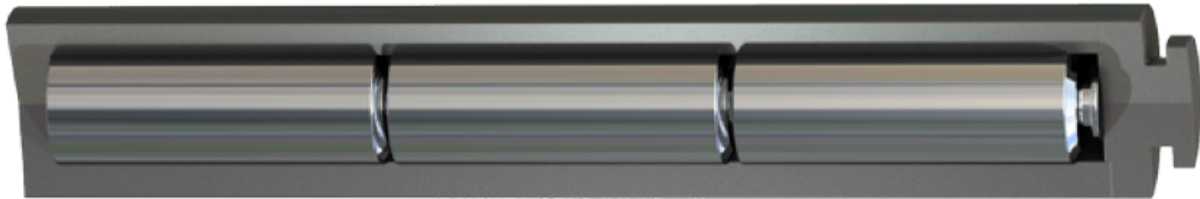


Abb. 2.7 Behälter aus Stahl mit drei Kokillen /NAG 17/

2.4.3.1.3 Hauptlager (Brennelemente/HAA)

Die Endlagerung der befüllten Brennelemente/HAA-Behälter ist im Hauptfeld des Endlagers vorgesehen. Dieses besteht aus 27 Einlagerungsstrecken (Lagerstollen) mit einer Länge von 800 m und einem Durchmesser von 2,5 m /NOL 02/. Die Anzahl an Einlagerungsstrecken ergibt sich aus der gewählten Streckengeometrie und dem anfallenden Abfallvolumen. Sollte zukünftig ein größerer Platzbedarf notwendig sein, ist es nach /NOL 02/ möglich, die Anzahl an Einlagerungsstrecken zu erhöhen. Als Abstand zwischen den Einlagerungsstrecken sind 40 m vorgesehen, um eine ausreichende Wärmeabfuhr zu ermöglichen und mögliche integritätsgefährdende, thermisch induzierte Prozesse zu verhindern /NOL 02/.

Um die Einlagerungsstrecken in ihrem Querschnitt am wenigsten zu beanspruchen und möglichst nur geringe Felssicherungsmaßnahmen (Verankerung mit Draht- und Armierungsnetzen) einbringen zu müssen, werden die Einlagerungsstrecken entlang der maximalen horizontalen Hauptspannungen des geomechanischen Spannungsfeldes im Opalinuston aufgeföhren. Zukünftige detaillierte Konzepte sollen auf dieser Annahme basieren, wodurch das Auföhren der Einlagerungsstrecken parallel zum Schichtverlauf des Wirtsgesteins favorisiert wird /ENS 17/. Sollten ungünstigere felsmechanische Bedingungen am ausgewählten Standort vorliegen, können zusätzliche stabilisierende Ausbauten notwendig sein. Für diesen Fall wird ein alternatives Ausbaukonzept „Liner concepts“ entwickelt, auf das bei Bedarf zurückgegriffen werden kann /NAG 09/.

Die Endlagerbehälter werden liegend auf kompaktierten Bentonitblöcken in den Einlagerungsstollen mit einem Abstand von 3 m zwischen den Behältern entlang der Stollenachse platziert (siehe Abb. 2.8). Die Hohlräume zwischen den Bentonitblöcken und dem Stoß bzw. First einer Einlagerungsstrecke werden mit Bentonitgranulat unmittelbar nach Einlagerung eines Endlagerbehälters verfüllt.

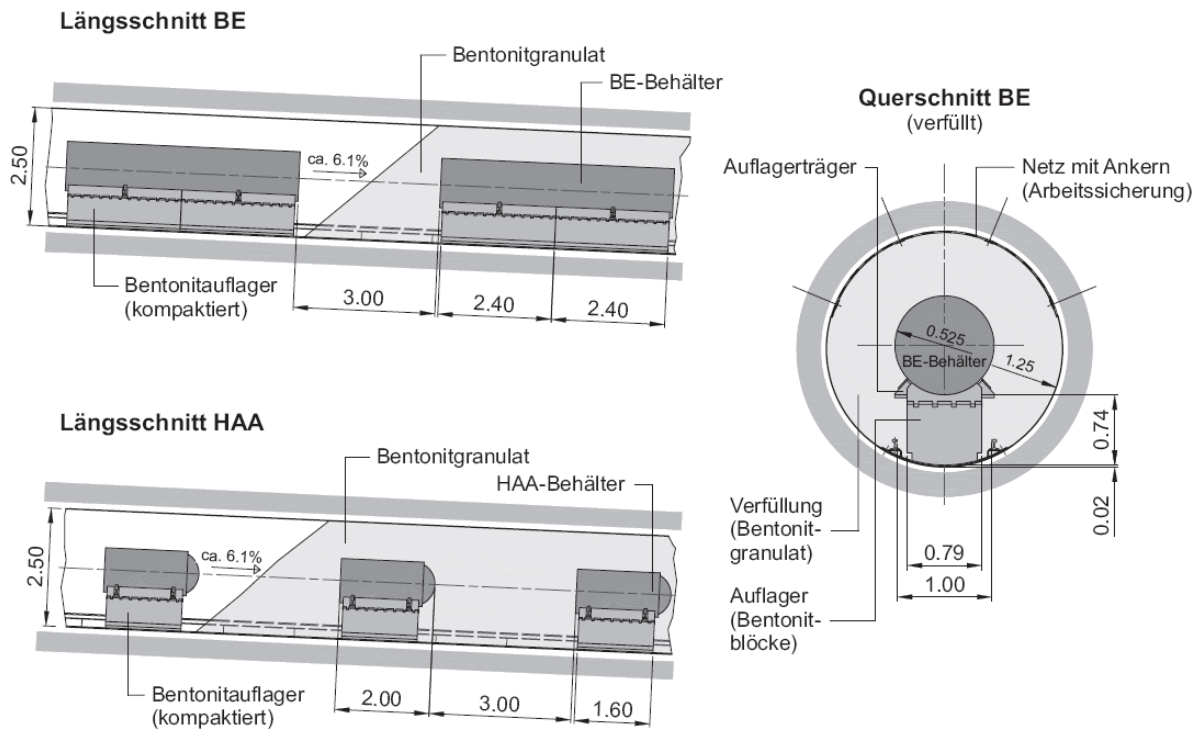


Abb. 2.8 Längsschnitt einer Einlagerungsstrecke für Brennelemente (oben) und HAA (unten) sowie der Querschnitt einer Einlagerungsstrecke /NOL 02/

In der Schweiz wurden bisher im Wesentlichen nur konzeptionelle Untersuchungen zum Einlagerungskonzept sowie zur Einlagerungs- und Verfülltechnik durchgeführt. Praktische Erfahrungen zur Einlagerungstechnologie und zur Verfüll- und Verschlusstechnologie stehen noch aus /ZIE 08/. Der Verschluss des Endlagers besteht aus einem System gestaffelter, passiver Sicherheitsbarrieren aus Streckenverfüllungen, Betonpropfen und Versiegelungen /NAG 03/. An dem Übergang zwischen Einlagerungsstrecke und Betriebstunnel existieren sog. Versiegelungsstrecken. Als Hauptdichtelement wird, wie zur Stollenverfüllung, Bentonitgranulat sowie eine Bentonit/Sand-Verfüllung genutzt, die von einer Betonwand abgeschlossen wird. Zwischen Bentonitgranulat und der Bentonit/Sand-Verfüllung wird ein statisches Widerlager aus Schotter eingebracht /NOL 02/.

2.4.3.1.4 Umverpackungsanlage

Die HAA-Abfallgebinde (bestrahlte Brennelemente und Kokillen mit verglasten Abfällen) werden in der HAA-Verpackungsanlage (siehe Abb. 2.9) in einer sog. Umladezelle (heiße Zelle) aus externen Transportbehältern entnommen und in Endlagerbehälter umgeladen, die wiederum in einem abschirmenden internen Transportbehälter verpackt sind. Anschließend werden die Endlagerbehälter kontrolliert und verschlossen. Die Umladezelle hat nach aktueller Planung /NAG 13/ vier der jeweils in Abb. 2.10 dargestellten Andockstationen, die parallel betrieben werden können. Dies gewährleistet einen angemessenen Durchsatz zur planmäßigen

Einlagerung der hochradioaktiven Abfälle. Ferner wird eine Redundanz geschaffen, die erlaubt, eine Andockstation für den Unterhalt (z. B. Dekontamination), die Intervention (z. B. Bergung eines beschädigten Brennelements) oder die Reparatur außer Betrieb zu nehmen und dennoch den planmäßigen Verpackungsbetrieb zu gewährleisten.

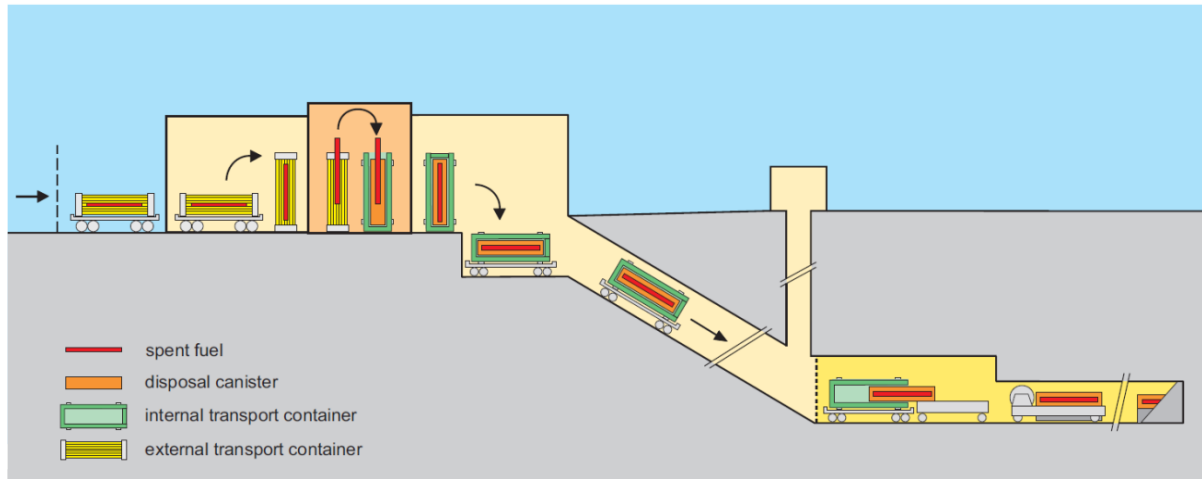


Abb. 2.9 Schema zur Handhabung der HAA-Behälter bis zur Einlagerung /PAT 12/

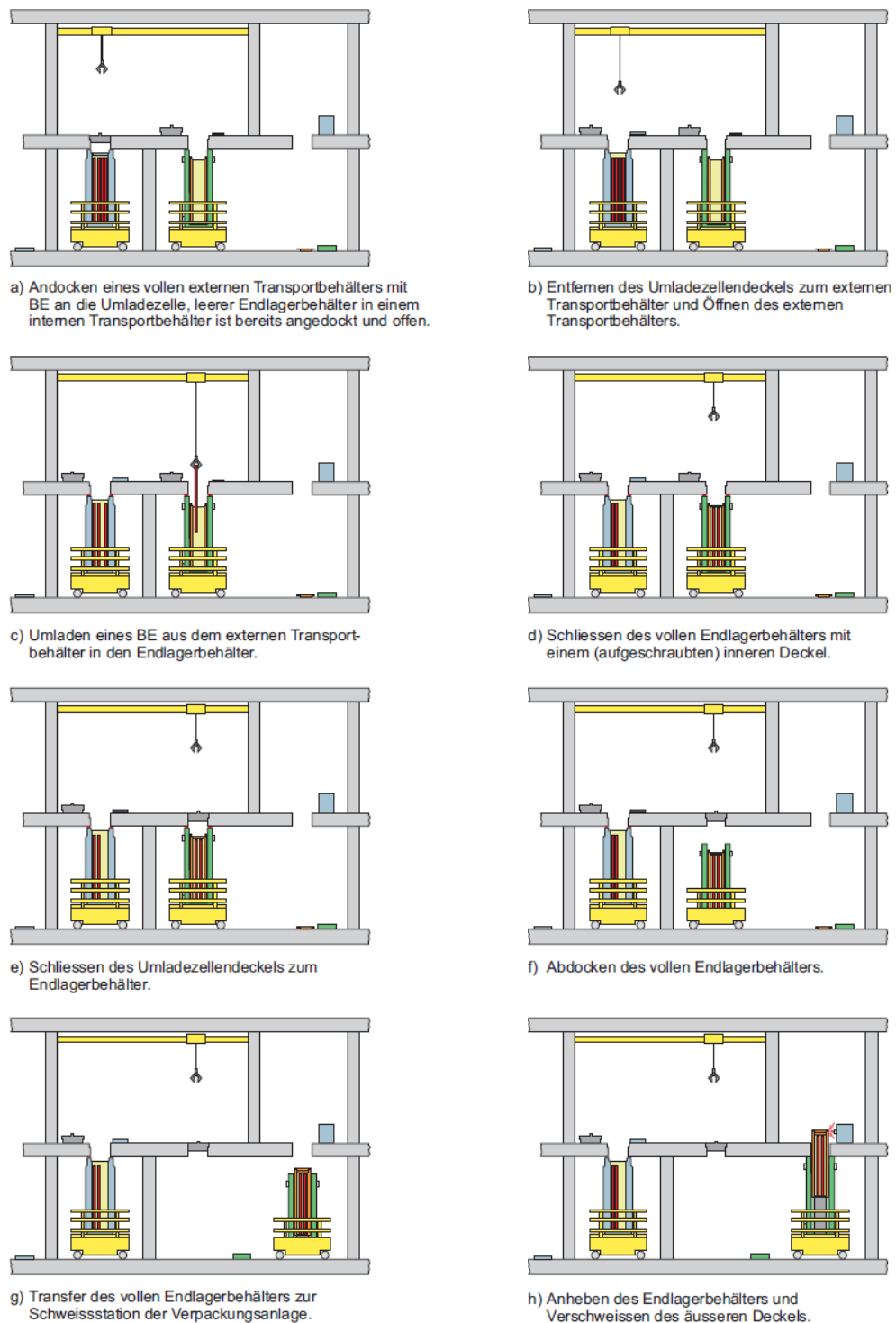


Abb. 2.10 Prozess der Umladung der HAA aus den externen Transport- in die internen Transportbehälter in der Umladezelle /NAG 13/

2.4.4 Endlagerkonzept im Kristallin, KBS-3, Schweden

Aufgrund der Tatsache, dass kristallines Wirtsgestein kaum zur Einschlusswirksamkeit eines Endlagersystems beiträgt, setzt das KBS-3-Konzept bevorzugt auf die Einschlusswirkung (geo)technischer Barrieren. Im Vordergrund steht hierbei die Einschlusswirksamkeit der End-

lagerbehälter. Diese sollen so lange wie möglich intakt bleiben und die in den Abfällen enthaltenen Radionuklide wirksam von der Biosphäre isolieren.

Das Sicherheitskonzept des z. B. in /FAß 17a/ und /FAß 17b/ ausgewerteten KBS-3-Endlagerdesigns für HAW in kristallinem Wirtsgestein in Schweden basiert auf einem Mehr-Barrieren-Konzept („Defence-in-Depth“ Prinzip) (siehe Abb. 2.11). Das Versagen einer Barriere wird demnach durch die Sicherheitsfunktionen der anderen Barrieren so weit wie möglich aufgefangen. Der endzulagernde Kernbrennstoff wird hierbei von mehreren Barrieren umgeben, beginnend mit der Brennstoffmatrix (Fuel pellet), der Brennstoffhülle (Cladding tube) über die Einkapselung in einen Kupferbehälter, der Einbringung von Bentonit zum Schutz des Behälters vor dem Zutritt von korrosiven Flüssigkeiten (Wasser) und der Einlagerung in einem Endlagersystem in ca. 500 m Tiefe in granitischem Gestein.

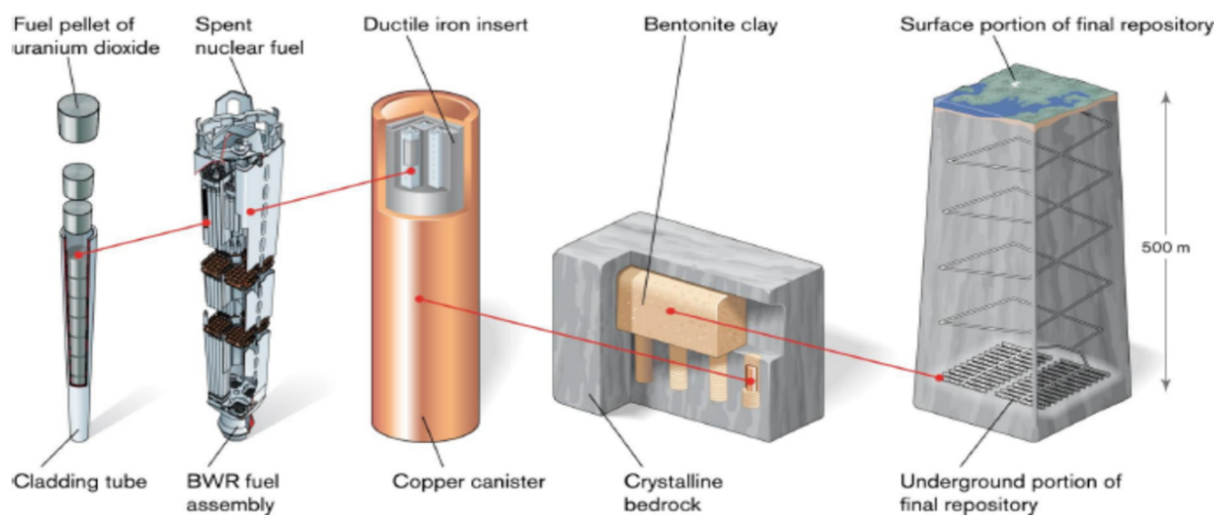


Abb. 2.11 Mehrbarrierenkonzept KBS-3 /SKB 10/

Das granitische Gebirge ist hierbei selbsttragend. Ein Ausbau wird daher nach /STA 15/ nur in besonders stark geklüfteten Abschnitten notwendig. Da das Wirtsgestein keine „selbstheilenden“ Eigenschaften wie Salz oder Ton besitzt, die radioaktiven Abfälle zeitnah zu umschließen, wird eine technische Barriere „Versatz“ wie bei Einlagerung in Tonstein zwingend benötigt.

Bei dem Endlagerkonzept in kristallinem Gestein stellen technische Barrieren die Hauptbarriere dar, da hier das Wirtsgestein nur in geringem Maße zur Einschlusswirksamkeit des Endlagersystems beiträgt /FAß 17a/. Insbesondere den Behältern wird hier demnach die primäre Sicherheitsfunktion zugeordnet.

Die Hauptanforderungen an die Behälterstabilität sind demnach vor allem deren Integrität, damit die in den Abfällen enthaltenen Radionuklide so lange wie möglich wirksam von der Bio-

sphäre isoliert bleiben. Daher dürfen weder Korrosion, isostatische Belastung oder der Einfluss von Scherkräften die Behälterintegrität gefährden. Als weitere Barriere umgibt Bentonit in den Einlagerungsbohrlöchern die Behälter. Bentonit hat hierbei die Aufgabe, den Endlagerbehälter vor Wasserzutritt zu schützen, ungünstige Bedingungen für sulfatreduzierende Bakterien zur Limitierung einer Sulfid-Korrosion der Behälter zu schaffen, den Endlagerbehälter in seiner Lage zu halten und (erdbebenbedingte) Scherbewegungen vom Behälter abzufedern. Der Quelldruck des Bentonits darf hierbei nicht zu einer unzulässigen isostatischen Belastung des Behälters führen.

Nach /SWE 08/ ist die regulatorische Anforderung in Schweden an das skandinavische KBS-3-Konzept, dass die Barrierefunktionen mindestens für einen Zeitraum von 10.000 Jahren gewährleistet sind. In seinem Sicherheitsnachweis zeigt der Betreiber, dass im angegebenen Referenzszenarium für den Auslegungszeitraum von 1 Mio. Jahre eine ausreichende Korrosionsbarriere gegeben ist /SVE 11a/. Zudem zeigt SKB (Svensk Kärnbränslehantering Aktiebolag) dort, dass bei pessimistischen Annahmen bzgl. der Erosion des Buffers, der Behälterkorrosion und dem Radionuklidtransport, das radiologische Risiko um zwei Größenordnungen niedriger ist, bezogen auf das regulatorisch maximal zulässige Risiko einer radiologischen Freisetzung von 10^{-6} für den Zeitraum von 100.000 Jahren nach Verschluss des Endlagers /SVE 11a/. Die Behälter müssen zudem einem isostatischen Druck von 45 MPa und einer Scherbewegung von 5 cm (bei 1 m/s und 0 °C) standhalten können /SVE 11a/.

Die Behälter müssen sowohl Radionuklide als auch Alpha-/Beta-Strahlung zurückhalten können. Gamma- und Neutronenstrahlung wird von den Behältern nur teilweise abgeschirmt, daher ist während des Transports und der Handhabung während des Einlagerungsbetriebes eine zusätzliche Strahlenschutzabschirmung notwendig. Neben der Strahlung, die aufgrund von betriebssicherheitlichen Anforderungen im schwedischen KBS-3-Konzept eine Dosisleistung von 1 Gy/h an der Behälteroberfläche nicht überschreiten darf, wird über die Behälter die beim Radionuklidzerfall entstehende Wärme an die umgebende technische Barriere Bentonit und das Wirtsgestein abgegeben. Diese Wärme kann sich sowohl auf das Behältermaterial als auch auf die Eigenschaften des Bentonits sowie die gebirgsmechanischen Eigenschaften des umgebenden Wirtsgesteins auswirken und darf diese nicht ungünstig verändern. Die Auslegungsanforderung liegt für Granit im KBS-3-Konzept bei einer Temperatur < 100 °C an der Behälteroberfläche /SVE 11a/.

2.4.4.1 Barrierenkonzept

Der Behälter im KBS-3-Endlagerkonzept weist eine Länge von 4,855 m und einen Durchmesser von 1,050 m auf und besteht aus den zwei Komponenten Gussstahl und Kupfer (siehe Abb. 2.12) /SVE 11b/.

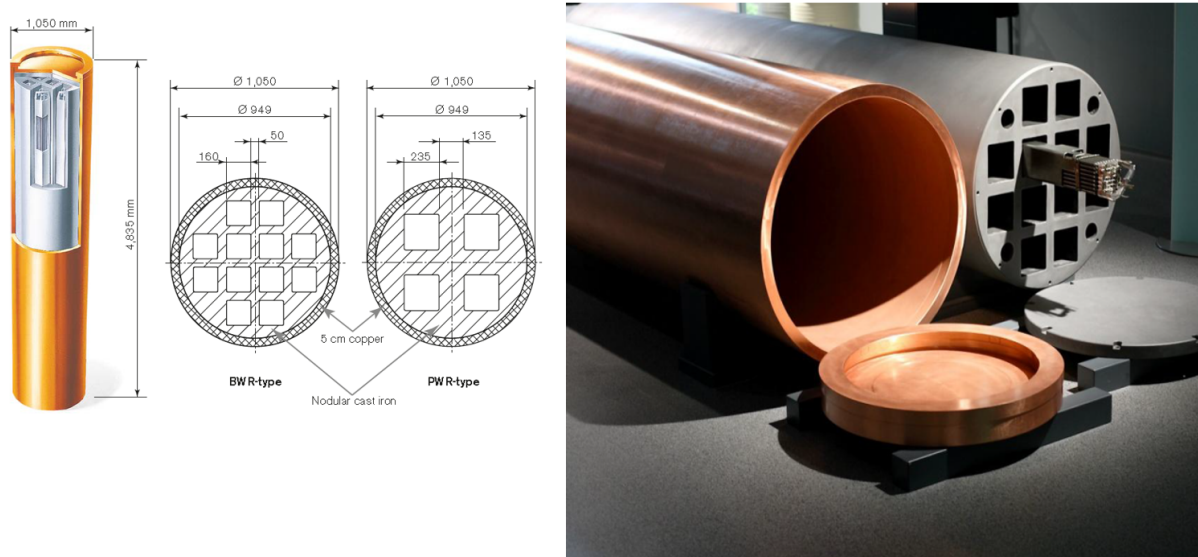


Abb. 2.12 Aufbau eines KBS-3-Endlagerbehälters /SVE 11a/

Ein innerer Brennelementbehälter aus Gussstahl dient zur Aufnahme von entweder zwölf Brennelementen aus SWR oder vier Brennelementen aus DWR und wird verschraubt. Im Zusammenwirken mit der äußeren Umhüllung dient der Behälter dazu, isostatische Lasten und Scherbewegungen schadlos aufzunehmen /SVE 11a/.

Die äußere Umhüllung bildet die Hauptbarriere und besteht aus einem Kupferbehälter mit einer Wandstärke von 5 cm. Die Deckel an der Unter- und Oberseite werden mit dem Kupferbehälter gasdicht verschweißt. Hauptaufgabe der äußeren Umhüllung ist es, den Einschluss von Radionukliden im Abfall über einen möglichst langen Zeitraum zu gewährleisten. Bevor die Brennelemente im Endlagerbehälter verpackt werden, waren sie zuvor mindestens 30 Jahre zwischengelagert. Die Nachzerfallsleistung liegt dann für DWR-Brennelemente bei 300 bis 450 W je Brennelement und für SWR-Brennelemente zwischen 100 und 150 W je Brennelement. Nach der Pufferlagerung soll die Temperatur an der Behälteroberfläche 100 °C unterschreiten /HER 08/.

Als nächste Barriere umgibt ein Ring aus Bentonit die Behälter in den Einlagerungsbohrlöchern. Der Bentonit dort („Buffer“) hat die Aufgabe, den Endlagerbehälter vor Wasserzutritt zu schützen, ungünstige Bedingungen für sulfatreduzierende Bakterien zur Limitierung einer Sulfid-Korrosion der Behälter zu schaffen, den Endlagerbehälter in seiner Lage zu halten und

(erdbebenbedingte) Scherbewegungen vom Behälter abzufedern. Sein Quelldruck darf nicht zu einer unzulässigen isostatischen Belastung des Behälters führen. Das KBS-3-Verschlusskonzept sieht vor, dass der Buffer aus mehreren Bentonit-Komponenten besteht (Pellets und Formsteine, siehe Abb. 2.13).

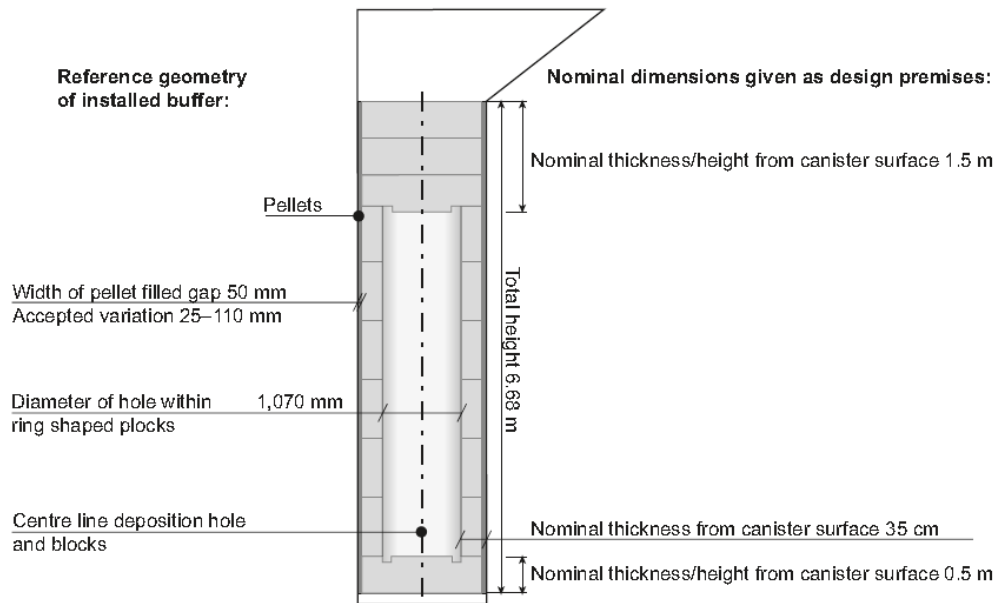


Abb. 2.13 Komponenten des den Endlagerbehälter umgebenden Buffer /SVE 11a/

Bei diesen Komponenten handelt es sich um quaderförmige Bentonit-Blöcke, Bentonit-Ringformsteine und Pellets, die im Zwischenraum zwischen Buffer und Gebirge eingefüllt werden. Insgesamt soll der Buffer nach Aufsättigung und der damit verbundenen Quellung eine Dichte zwischen 1.950 und 2.050 kg/m^3 annehmen, um die geforderten Schutzfunktionen für den Behälter ausüben zu können /SVE 11a/. Typische Quelldrücke liegen zwischen 4 und 8 MPa /ZHA 13/ wodurch hydraulische Leitfähigkeiten im Bereich von 10^{-12} m/s erreicht werden können. Die hierzu veranschlagten physikalischen Größen sind in Abb. 2.14 dargestellt.

Design parameter	Nominal design	Accepted variation
Solid blocks		
Bulk density (kg/m ³)	2,000	±20
Water content	As in the material ready for compaction.	As in the material ready for compaction.
Dimensions (mm)	Height: 500 Outer diameter: 1,650	±1
Ring-shaped blocks		
Bulk density	2,070	±20
Water content	17 (As in the material ready for compaction.)	±1 (As in the material ready for compaction.)
Dimensions (mm)	Height: 800 Height of top block: 760 Outer diameter: 1,650 Inner diameter: 1,070	±1
Pellets		
Dimensions (mm)	16-16.8	—
Bulk density loose filling (kg/m ³)	1,035	±40
Water content	17 (As in the material ready for compaction.)	±1 (As in the material ready for compaction.)

Abb. 2.14 Physikalische Materialeigenschaften des Buffer /SVE 11a/

Bentonitversatz in den Einlagerungsstrecken („Backfill“) hat als nächste Barriere die Aufgabe, Wasserzufluss aus Klüften, die in den Einlagerungsstrecken ggf. angeschnitten werden, durch eine geringe hydraulische Durchlässigkeit zu begrenzen. Andererseits soll der Backfill durch eine ausreichende Dichte gewährleisten, dass es nicht zu einem unzulässigen Dichteverlust des Buffer kommt. Konkret soll hierdurch gewährleistet werden, dass der Bentonit-Buffer um die Behälter nach unten und zu den Seiten in einem standfesten Gebirge eingespannt ist. Die einzige Möglichkeit des Buffers sich auszudehnen, besteht somit in einem Quellen nach oben in die mit Backfill versetzten Einlagerungsstrecken. Der Backfill muss daher ein ausreichendes Widerlager bilden. Im Bereich der Einlagerungsstrecken werden keine Applikationen von Zement (z. B. Spritzbeton) eingesetzt, um schädliche alkalische Verhältnisse zu vermeiden. Beim Backfill ist im KBS-3-Konzept eine Bentonit-Rezeptur vorgesehen, welche einen Montmorillonit-Gehalt von 50 bis 60 % (maximaler Wertebereich: 45 bis 90 %) vorsieht. Auch hier sind Bentonit-Ausführungen in verschiedener Form (Blöcke, Pellets und Bodenplatten) vorgesehen (siehe Abb. 2.15) /SVE 11a/, /SVE 11b/.

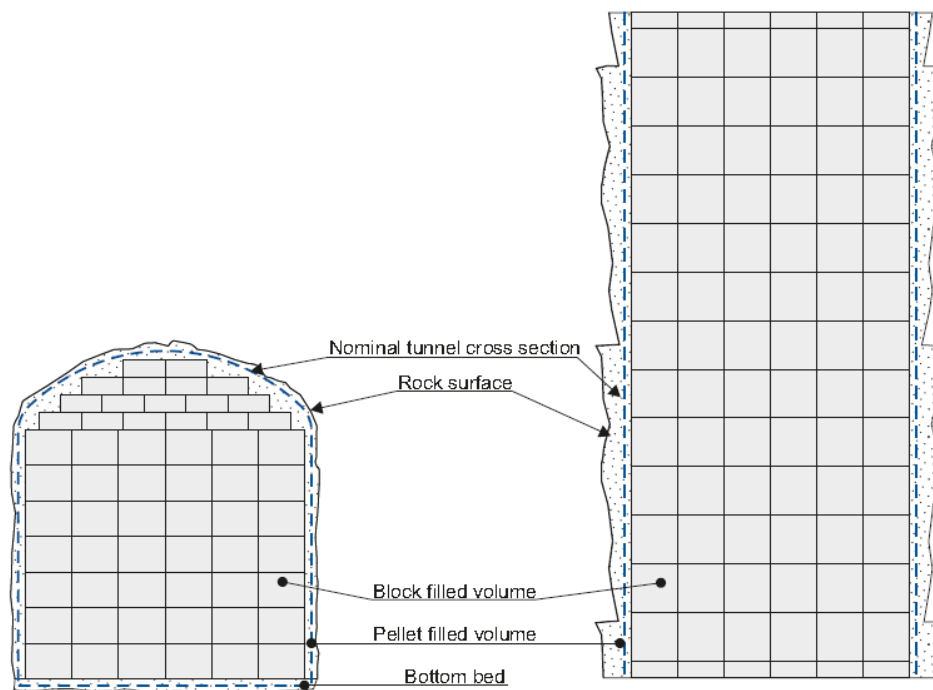


Abb. 2.15 Komponenten des Backfill in den Einlagerungstrecken /SVE 11a/

Die zur Gewährleistung der Schutzfunktionen erforderlichen physikalischen Größen sind in Abb. 2.16 dargestellt.

Design parameter	Reference design	Initial state
Montmorillonite content	45–90 wt-%	45–65 wt-% (58%)
Dry density of blocks (kg/m ³)		
– tunnel section	1,700±50 kg/m ³	1,700±50 kg/m ³
– upper part of deposition hole	1,710±17 kg/m ³	1,710±17 kg/m ³
Dry density of pellet filling (kg/m ³)	1,000±100 kg/m ³	1,000±100 kg/m ³
Dry density of compacted bottom bed (kg/m ³)	> 1,200 kg/m ³	> 1,200 kg/m ³
Block part of tunnel volume	Nominal: Figure 5-15 Accepted: ≥60%	Average: 74.1% Min 67.3% and max 78.7%

Abb. 2.16 Physikalische Materialeigenschaften des Backfill /SVE 11a/

Die Einlagerungstrecken werden zu den Haupt- und Transporttunneln durch geotechnische Abdichtungen (Plugs) abgedichtet (siehe Abb. 2.17), welchen jedoch keine Sicherheitsfunktionen zugeordnet werden. Die Plugs tragen allerdings zusätzlich dazu bei, dass Wasserzuflüsse außerhalb der Einlagerungsbereiche limitiert werden und spannen den Backfill innerhalb der Einlagerungstrecke ein, damit dieser seine sicherheitsgerichteten Eigenschaften behält /SVE 11a/.

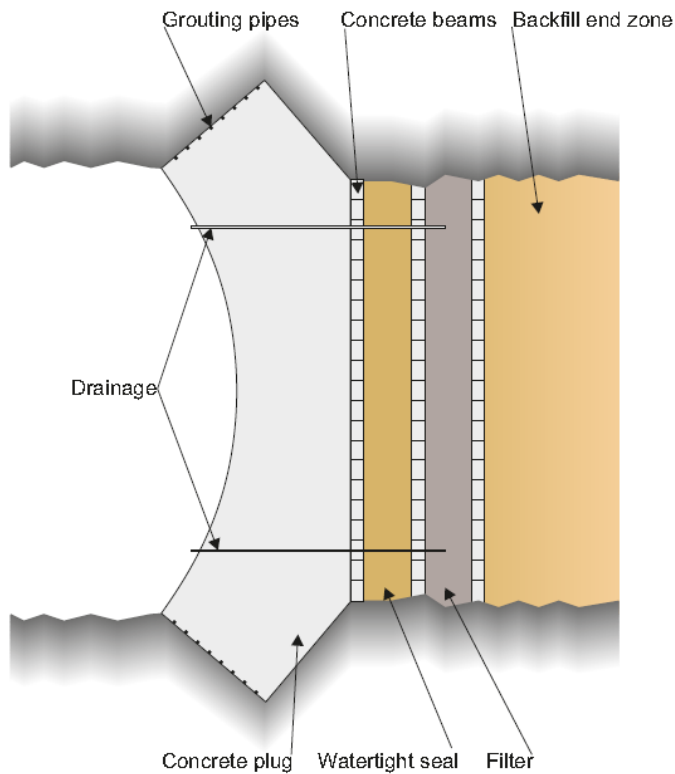


Abb. 2.17 Aufbau der Abdichtungen der Einlagerungsstrecken (Plugs) /SVE 11a/

Als weitere Verschlussmaßnahmen der Zugänge zum Endlager ist geplant, die oberen Sektionen mit gebrochenem Kristallingestein zu versetzen. Ab 200 m Tiefe kommen Ton-basierte Materialien zum Einsatz, wobei hochqualitative Abdichtungen in den Schacht- und Rampenabschnitten dort eingeplant sind, wo diese höher permeable Zonen des Wirtsgesteins anschneiden (siehe Abb. 2.18).

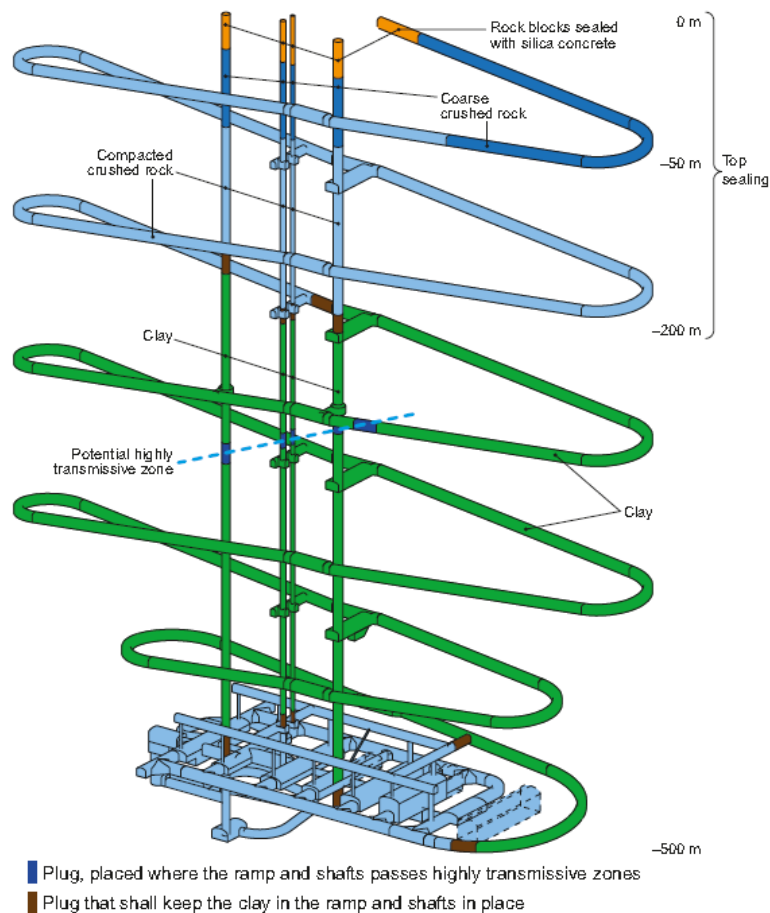


Abb. 2.18 Verschluss der Zugänge zum Endlager /SVE 11b/

2.4.5 Endlagerkonzept im Steinsalz

Endlagerkonzepte in steil lagerndem Steinsalz und die Anforderungen wurden in /FAß 17a/ und /LAR 17/ ausgewertet und dargestellt. Steinsalz als Wirtsgestein für hochradioaktive Abfälle wurde in Deutschland seit ca. 40 Jahren intensiv untersucht /LAR 17/. In einer Reihe von Forschungsarbeiten wurden entsprechende Endlagerdesigns für diese Option entwickelt und ihre Machbarkeit und Sicherheit bewertet. Aktuellere Arbeiten zum Endlagerdesign, z. B. im Forschungsprogramm KOMTESSA /BOL 17/, basieren auf Arbeiten im Rahmen des Forschungsvorhabens „Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben „VSG“ (u. a. /FIS 13/).

Im Forschungsvorhaben VSG wurde für ein Endlager für Wärme entwickelnde Abfälle auf Basis der Kenntnisse von konzeptionellen Einzeluntersuchungen /BOL 11b/, /BOL 12/ und /PEI 12/ ein Endlagerdesign für einen konkreten Standort im Salz (Salzstock Gorleben) entwickelt. Für ein Endlagerkonzept im steil stehenden Steinsalz stellen die Ergebnisse der VSG den aktuellen Stand von W & T dar, basierend auf den Vorgaben der deutschen „Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle“ von 2010 /BMU 10a/, /FIS 13/.

Das Wirtsgestein Steinsalz wird aufgrund seiner geringen Durchlässigkeit, seinen Krieeigenschaften, der hohen Wärmeleitfähigkeit und den gebirgsmechanischen Eigenschaften als günstig für die Einlagerung von radioaktiven Abfällen angesehen (u. a. /BOL 11a/). Die Hauptbarriereigenschaften werden im Steinsalz dem Wirtsgestein selbst zugeschrieben. Das viskoelastoplastische Materialverhalten von Salzgestein und Salzgrus führt letztendlich zu einem vollständigen Einschluss der Endlagerbehälter /BOL 14/. Die Geschwindigkeit der Salzgruskompaktion hängt dabei u. a. vom Feuchtegehalt im Salzgrus und der Umgebungstemperatur ab. Sollen die Endlagerbehälter nach Verschluss des Endlagers eine Barrierefunktion behalten (z. B. weil die Option der Rückholbarkeit/Bergbarkeit besteht /LAR 17/), müssen sie aufgrund des festen Einschlusses durch das aufkonvergierte Steinsalz mechanisch auf den herrschenden Gebirgsdruck ausgelegt sein /BOL 11a/.

Im Sicherheits- und Nachweiskonzept der VSG /MÖN 12/ wurden die deutschen Sicherheitsanforderungen von 2010 /BMU 10a/ auf einen zu dieser Zeit konkreten Standort präzisiert. Das Sicherheits- und Nachweiskonzept beinhaltet auch alternative Einlagerungskonzepte von Wärme entwickelnden radioaktiven Abfallgebinden vom Typ POLLUX®/CASTOR® in horizontalen Strecken, oder von TLB (Typ CASTOR®) in horizontalen Bohrlöchern sowie von Brennstabkaskaden (BSK) in vertikalen Bohrlöchern, jeweils in Kombination mit einem optionalen Co-Disposal von Abfallgebinden mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung in horizontalen Einlagerungskammern. Die Reflektion der Anforderungen aus dem Sicherheits- und Nachweiskonzept auf die Ergebnisse der konzeptionellen Einzeluntersuchungen und den anschließenden Sicherheitsanalysen in /KOC 12/ und /LAR 13/ der VSG erfolgte in einer Synthese in /FIS 13/.

Ausgehend von den Sicherheitsanforderungen des BMU von 2010 /BMU 10a/ wurden im Sicherheits- und Nachweiskonzept der VSG /FIS 13/ drei Grundanforderungen für die Endlagerung im Steinsalz definiert. Diese sind

- die eingelagerten Abfallgebinde sollen schnell und möglichst dicht vom Salzgestein im Verbund mit den geotechnischen Barrieren eingeschlossen werden (Einschlussgedanke),
- der ausgewiesene einschlusswirksame Gebirgsbereich¹ bleibt im Nachweiszeitraum erhalten und seine Barrierefunktion (geologische Barriere und geotechnische Barrieren) wird weder durch interne noch durch externe Vorgänge und Prozesse beeinträchtigt (Integritätsgedanke/Wartungsfreiheit) und
- eine Kritikalität muss in jeder Phase der Endlagerentwicklung ausgeschlossen werden (Kritikalitätsausschluss).

¹ Nach der Definition des „Arbeitskreis Auswahlverfahren Endlagerstandorte“ (AKEnd) /BFS 02/.

Steinsalz zeichnet sich gegenüber anderen Wirtsgesteinstypen durch eine geringere Temperaturempfindlichkeit aus /BOL 11a/. Die Gesteinseigenschaften, insbesondere das Kriechvermögen, ermöglichen zudem einen Verzicht auf Bentonit sowohl als die Gebinde umgebendes Abdichtungsmaterial als auch als Abdichtungs- und Verfüllmaterial für die untertägig aufgefahrenen Hohlräume /BOL 11a/. Durch die Möglichkeit des Verzichts auf tonmineralhaltige technische Barrieren entfallen die z. T. strikten Temperaturanforderungen, die sich aus den tonmineralhaltigen Barrieren in Tonstein und kristallinen Wirtsgesteinen ergeben können (siehe Kapitel 2.4.3 und 2.4.4), so dass die Anforderungen an die Endlagerbehälter eine deutlich höhere Auslegungstemperatur an der Behälteroberfläche zulassen (bis zu 200 °C) /LAR 17/.

Durch die relativ hohe Standsicherheit im steil lagernden Steinsalz sind spezielle technische Ausbaumaßnahmen in der Regel nicht notwendig /BOL 11a/.

2.4.5.1 Abfallinventar und -charakterisierung

Wie in /LAR 17/ dargestellt, wurden im Rahmen des Vorhabens VSG /FIS 13/ für die Entwicklung eines Endlagerkonzeptes im steil lagernden Steinsalz für Wärme entwickelnde radioaktive Abfälle inklusive eines möglichen Co-Disposal folgende Abfallströme berücksichtigt /PEI 11/. Diese sind

- bestrahlte Brennelemente aus Leistungsreaktoren (direkte Endlagerung von Brennelementen),
- radioaktive Abfälle aus der Wiederaufarbeitung im Ausland sowie aus der Wiederaufarbeitungsanlage in Karlsruhe (HAW-Kokillen),
- bestrahlte Brennelemente aus Prototyp- und Forschungsreaktoren sowie
- Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung.

Dabei wurde von einem Abfallvolumen bei den Wärme entwickelnden radioaktiven Abfällen – unter Berücksichtigung des Ausstiegbeschlusses aus der Kernenergie und der verbleibenden Laufzeiten der Kernkraftwerke – von 34.630 Brennelementen (UO₂, MOX, DWR, SWR) bzw. ca. 8.000 HAW-Kokillen und einem Volumen ca. 2.000 m³ für Brennstoffe aus Forschungsreaktoren ausgegangen /PEI 11/.

2.4.5.2 Behälterkonzepte

Nach /LAR 17/ wurden in Deutschland für eine Endlagerung im Steinsalz drei verschiedene Einlagerungskonzepte untersucht. Diese sind

- Streckenlagerung selbstabschirmender POLLUX®-Behälter,
- Direkte Endlagerung von TLB in kurzen horizontalen Bohrlöchern und
- Einlagerung von Kokillen (BSK, BSK-3 bzw. neuentwickelte rückholbare Bohrlochkokillen BSK-R) in tiefe vertikale Bohrlöcher.

Im Weiteren wird nur die Variante der Streckenlagerung betrachtet, da diese am ausführlichsten untersucht wurde und mit den anderen hier dargestellten Endlagerkonzepten (siehe Kapitel 2.4.3 und 2.4.4) am ehesten vergleichbar ist.

Für die Variante der Streckenlagerung wurden im Rahmen der VSG selbstabschirmende Behälter vom Typ POLLUX® berücksichtigt. Diese erfüllen

- die Anforderungen einer mechanischen Stabilität gegenüber dem im Einlagerungshorizont zu erwartenden Gebirgsdruck,
- einen gasdichten Einschluss der im Endlagerbehälter verpackten radioaktiven Stoffe,
- eine ausreichende Abschirmung der in dem Endlagerbehälter verpackten radioaktiven Stoffe während der Transport- und Handhabungsprozesse und
- eine Langzeitstabilität gegenüber Korrosion bis zum Zeitpunkt, an dem andere Barrieren den sicheren Einschluss gewährleisten müssen /BOL 11b/.

Grundlage sind die BMU-Sicherheitsanforderungen von 2010 /BMU 10a/.

Hierbei kommen für die unterschiedlichen Wärme entwickelnden Abfälle unterschiedliche Abfallgebinde zur Anwendung. Diese sind

- POLLUX®-Behälter (POLLUX®-10) für Brennstäbe ausgedienter Brennelemente aus DWR, SWR und WWER,
- CSD-V (HAW-Kokillen) in POLLUX®-Behältern (POLLUX®-9) für radioaktive Abfälle aus der Wiederaufarbeitung und
- TLB (CASTOR®-Behälter) für ausgediente Brennelemente aus Versuchs- und Prototyp-Kernkraftwerken und Forschungsreaktoren /BOL 12/.

Der POLLUX®-10 besteht aus einem Innenbehälter aus Feinkornbaustahl in einer Wandstärke von 160 mm und einem äußeren Abschirmbehälter aus Sphäroguss mit einer Wandstärke von ca. 270 mm. Der Innenbehälter wird durch einen geschraubten Primärdeckel und einen geschweißten Sekundärdeckel dicht verschlossen. Der Abschirmbehälter mit einem verschraubten Deckel hat keine Dichtfunktion. Im Mantel sind in radial verteilten Bohrungen Stäbe aus Polyethylen zur Verringerung der Neutronenstrahlung eingesetzt.

Die CASTOR®-Behälter der Typen THTR/AVR und KNK bestehen aus einem zylindrischen Grundkörper aus Gusseisen mit Kugelgraphit mit zwei übereinanderliegenden, einzeln abgedichteten Deckeln (Primär und Sekundärdeckel) aus Gusseisen bzw. aus unlegiertem Baustahl (vgl. auch Kapitel 2.1.1 und 2.1.2). Bei der Handhabung kann der CASTOR®-Behälter mit einer Schutzplatte aus Kohlenstoffstahl zum Schutz des Deckelsystems vor Staub, Feuchtigkeit und mechanischen Einwirkungen versehen werden. Zur Handhabung ist der Behälter oben und unten jeweils mit zwei Tragzapfen ausgerüstet /BOL 11b/.

2.4.5.3 Endlager-Layout

Das bevorzugte Konzept zur Einlagerung der Wärme entwickelnden radioaktiven Abfällen in steil lagerndem Steinsalz war die Endlagerung von POLLUX-Behältern in horizontalen Strecken /ENG 95/. Hierfür wurden, inklusive eines optionalen Co-Disposal von Abfallgebinden mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung, Einlagerungsfelder mit insgesamt ca. 130 Strecken geplant. Die Endlagerung von TLB in horizontalen Strecken oder horizontalen Bohrlöchern oder Brennstoffkokillen in (tiefen) vertikalen Bohrlöchern waren dabei alternative Konzepte, die hier jedoch nicht weiter betrachtet werden.

Die Konzeptplanungen laut VSG sahen eine Einlagerungssohle auf 870 m vor. Die Abstände zwischen Endlagerbehältern, Einlagerungsstrecken und -Bohrlöchern wurden aus bereits vorliegenden Ergebnissen thermischer Berechnungen abgeleitet, wobei auslegungsbestimmend eine Höchsttemperatur von 200 °C an der Kontaktfläche zwischen den Endlagerbehältern und dem Salzgrusversatz war, die über den betrachteten Zeitraum von 1 Mio. Jahren nicht überschritten werden darf /BOL 11b/.

Die Gesteinsfestigkeit und die Eigenstabilität des Gebirges erlaubten nach /BOL 14/ eine weitgehend ausbaulose und einfache Herstellung der Transport- und Einlagerungshohlräume. Auch unter Berücksichtigung einer Rückholbarkeitsoption war ein Ausbau der Strecken in den Einlagerungsfeldern nicht erforderlich.

2.4.5.4 Barrierenkonzept

Die verbleibenden Hohlräume sollten unmittelbar nach der Einlagerung der Abfälle mit Salzgrus, das bei der Strecken- und Hohlraumauffahrung anfällt, versetzt werden. Ein entsprechendes Verfüll- und Verschlusskonzept wurde erarbeitet. Das viskoelastoplastische Materialverhalten von Salzgestein und Salzgrus führt langfristig zum vollständigen Einschluss der Endlagerbehälter /BOL 14/. Eine Ausnahme bildet der Infrastrukturbereich, welcher mit langzeitstabilen Material versetzt werden sollte /BOL 11b/.

Zur Beschleunigung der Kompaktion des Versatzes sollte dem Salzgrus für die Richt- und Transportstrecken eine geringe Menge Lösung (max. 1 Gew.-%) beigegeben werden. Da möglicherweise über lange Zeiträume aus dem kompaktierenden Versatz der Richtstrecken austretende Feuchte in die Einlagerungsstrecke zu den POLLUX®-Behältern gelangen können, sollten die Querschläge in Richtung der Richtstrecke durch einen ca. 10 m langen Pfropfen aus Sorelbeton, welcher langzeitbeständig gegenüber salinaren Lösungen ist, verschlossen werden /BOL 11b/.

Als weitere Barrieren sollten an ausgewählten Stellen der Zugangs- und Transportstrecken Streckenverschlüsse eingebracht und die Tagesschächte mit einem gestaffelten System von Trag- und Abdichtelementen verschlossen werden /BOL 11b/.

2.4.6 Radionuklidinventar

Grundlage für die Rechnungen in Konsequenzenanalysen ist ein Radionuklidinventar im Abfall, das zum Zeitpunkt der Einlagerung vorliegt, sowie dessen zeitliche Änderung durch den radioaktiven Zerfall (siehe z. B. /PEI 11/, /SEH 13/).

Zu erwartende Abfälle aus der Zwischenlagerung für eine Endlagerung sind demnach

- LWR-Brennelemente (Urandioxid/MOX-Brennstoffe aus DWR, SWR und WWER-Anlagen),
- THTR- und AVR-Brennelementkugeln,
- Forschungsreaktor-, Prototypreaktorbrennstoffe und
- verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung

Die abgebrannten Brennstoffe/Abfallprodukte bleiben voraussichtlich auch nach einer möglichen Umkonditionierung noch in unterschiedlicher Weise innerhalb eines Endlagerbehälters

umschlossen. Dies sind, mit Ausnahme von defekten Brennstäben, die gegebenenfalls gesondert konditioniert werden müssen

- Hüllrohre aus Zirkoniumlegierungen für LWR-Brennstäbe,
- Umschließungen/Hüllrohre aus Metalllegierungen für Forschungsreaktor- und Prototypbrennstoffe und
- Edelstahlkannen und -kokillen für THTR- und AVR-Brennelementkugeln, verglaste Abfälle und kompaktierte Abfälle aus der Wiederaufarbeitung.

Es wird vorausgesetzt, dass die Abfälle immer endlagergerecht konditioniert sind, d. h. im Wesentlichen eine Umverpackung der Abfälle vor der Endlagerung in geeignete Endlagerbehälter erfolgt und Endlagerbedingungen für eine Abfallannahme (Waste Acceptance Criteria, WAC) eingehalten werden. Das setzt dann i.d.R. eine entsprechende Anlage voraus, in der ggf. auch defekte Brennelemente und „Sonderfälle“ behandelt werden können.

Allerdings müssen die konkreten WAC erst noch festgelegt werden, sodass derzeit keine Aussage möglich ist. Die weitergehende Konditionierung ist daher noch im Detail ungeklärt. Nach derzeitigem Stand ist jedoch zu erwarten, dass beispielsweise eine Verglasung physisch intakter Brennelemente oder -stäbe nicht erfolgen wird.

Die Radionuklidinventare der einzelnen Abfallarten nach einer Umkonditionierung der LWR-Brennelemente für ein generisches Endlagerkonzept können bspw. aus den Vorhaben VSG /LAR 13/ und KOSINA /KIN 18/ übernommen werden. Dabei wurden die verschiedenen Typen von ausgedienten Brennelementen aus Leistungsreaktoren zu einer Abfallart zusammengefasst (BE-Mix). Gleiches gilt für die zu den ausgedienten Brennelementen zugehörigen Strukturteile (Strukt.). Für die ausgedienten Brennelemente aus Versuchs- und Prototypreaktoren werden die Brennelemente aus AVR und THTR gesondert ausgewiesen, während die Brennelemente aus allen anderen Reaktoren zu einer Abfallart Forschungsreaktor-Brennelemente (FR-BE) zusammengefasst werden. Die Abfälle aus der Wiederaufarbeitung (CSD-V bzw. HAW-Glaskokillen) werden einzeln betrachtet. Damit ergeben sich die in Tab. 2.6 aufgeführten sechs Abfallarten zur Berücksichtigung beim Radionuklidinventar /LAR 13/ auf Basis von /PEI 11/. Das Bezugsjahr für die angegebene Aktivität ist 2075. Für die betrachteten Abfallarten ist jeweils abdeckend das Gesamtinventar der jeweiligen Abfallart angegeben.

Tab. 2.6 Inventare der einzelnen Abfallarten zum Jahr 2075 in Becquerel, bezogen auf die gesamte anfallende Menge einer Abfallart /LAR 13/

Nuklid	BE-Mix	Strukt.	CSD-V	AVR	THTR	FR-BE
C-14	3,94·E14	6,23·E12	6,63·E13	1,60·E12	1,90·E12	
Cl-36	1,13·E13	2,32·E11	1,88·E12	4,11·E10		
Ca-41	6,28·E11	7,46·E09	1,41·E11			
Ni-59	2,20·E15	4,03·E14	3,19·E11	1,54·E09		
Ni-63	2,14·E17	3,76·E16	2,73·E13	1,20·E11	2,83·E04	
Se-79	2,93·E13	8,81·E06	8,53·E12	1,99·E11	1,11·E11	
Sr-90	1,14·E19	3,55·E11	2,02·E18	4,08·E15	6,46·E15	1,35·E17
Zr-93	1,20·E15	1,51·E12	3,41·E14	8,77·E11	1,03·E13	
Nb-94	3,52·E15	9,66·E13	5,71·E10	2,12·E10	1,99·E09	
Mo-93	4,88·E13	1,75·E12	1,77·E11	9,10·E08		
Tc-99	8,97·E15	2,27·E11	2,64·E15	5,42·E12	8,10·E13	
Pd-107	9,18·E13	5,31·E06	1,97·E13	4,79·E09	8,07·E11	
Sn-126	3,84·E14	2,27·E07	9,60·E13	1,77·E11	3,41·E12	
I-129	1,91·E13	9,98·E05	4,97·E12	1,14·E10	1,68·E12	
Cs-135	3,14·E14	2,12·E07	8,21·E13	1,34·E11	2,31·E12	
Cs-137	1,92·E19	8,86·E11	3,08·E18	4,66·E15	6,94·E15	2,19·E17
Sm-151	1,59·E17	1,83·E10	3,49·E16	6,40·E13	1,31·E15	
Ra-226	4,01·E09	7,34·E01	5,33·E08	4,42·E08	2,48·E07	
Th-229	6,17·E09	1,51·E00	2,74·E08	7,58·E10	3,42·E11	3,04·E06
Th-230	3,50·E11	6,87·E03	1,56·E10	1,42·E10	2,40·E09	
Th-232	2,27·E08	3,84·E-03	1,09·E08	2,56·E10	2,74·E03	
Pa-231	3,07·E10	6,43·E02	7,53·E09	8,00·E10	1,95·E08	
U-232	2,31·E13	2,23·E04	8,13·E09	2,36·E13	1,59·E11	
U-233	1,17·E12	5,99·E02	2,13·E10	8,91·E12	4,79·E13	5,07·E08
U-234	8,88·E14	1,59·E07	9,19·E11	3,64·E12	6,29·E12	
U-235	5,51·E12	5,31·E05	6,15·E09	2,01·E10	5,56·E10	
U-236	1,37·E14	1,64·E06	7,72·E10	1,50·E11	1,10·E12	
U-238	1,26·E14	1,71·E07	9,11·E10	5,24·E08	1,40·E12	
Np-237	2,82·E14	4,08·E06	6,29·E13	8,32·E10	8,02·E10	2,18·E12
Pu-238	2,73·E18	1,00·E10	2,04·E15	2,68·E14	1,58·E16	
Pu-239	2,05·E17	7,36·E10	4,09·E14	1,66·E12	1,70·E15	
Pu-240	4,52·E17	5,16·E10	1,14·E15	4,52·E12	3,01·E15	
Pu-242	2,73·E15	4,13·E07	2,13·E12	1,88·E10	1,70·E13	
Pu-244	3,16·E11	8,99·E01	8,45·E09	2,10·E05	5,24·E09	
Am-241	4,03·E18	3,06·E11	1,55·E17	1,07·E14	3,33·E13	2,52·E16
Am-242m	1,33·E16	2,85·E08	8,42·E14	2,03·E10	3,37·E13	
Am-243	3,56·E16	9,32·E07	2,76·E15	7,96·E10	1,99·E14	
Cm-245	1,54·E15	5,52·E04	2,41·E13	2,01·E08	3,71·E12	
Cm-246	2,52·E14	3,31·E03	3,41·E12	2,81·E07	9,58·E11	
Cm-247	1,40·E09	1,86·E-03	8,89·E06	3,91·E06		
Cm-248	3,60·E09	1,11·E-03	1,70·E07	1,22·E07		
Gesamt	4,14·E19	3,81·E16	5,30·E18	9,26·E15	1,39·E16	4,01·E17

2.4.7 Radionuklidmobilisierung im Nahfeld – Quellterm

Der Begriff "Quellterm" (engl. "source term") findet insbesondere im Kontext der Endlagerung radioaktiver Abfälle häufig Verwendung, allerdings besteht keine einheitliche Definition desselben. Der Begriff bezeichnet in der Regel die Freisetzung von Radionukliden aus verschiedenen Bereichen eines Endlagersystems, darunter das Nahfeld, das Endlager und die Geosphäre, in die Biosphäre. In diesem Bericht liegt der Schwerpunkt auf dem Nahfeld, das den Behälter und die ihn unmittelbar umgebenden Materialien umfasst und für die Beschreibung der Radionuklidmobilisierung von entscheidender Bedeutung ist.

Die Ableitung eines Quellterms basiert auf einer Vielzahl von Prozessen, welche durch spezifische Parameterwerte charakterisiert werden. Die Mobilisierung von Radionukliden wird maßgeblich durch die Art der Abfälle sowie die im Endlagersystem ablaufenden chemischen und physikalischen Prozesse bestimmt. Die entscheidenden Parameter und Mechanismen ergeben sich dabei aus den jeweiligen stofflichen Eigenschaften und Reaktionen. Im Rahmen der Quelltermbestimmung werden diese Parameter daher systematisch berücksichtigt, um eine fundierte Beschreibung der Radionuklidfreisetzung zu ermöglichen.

Die Mobilisierung von Radionukliden ist abhängig von

- der Auflösungskinetik (z. B. Glas, Brennstoff),
- den Löslichkeiten der Radionuklide,
- der Temperatur und
- weiteren Einflussfaktoren.

Mit Annahmen und Randbedingungen werden für Modelle und Parameter zur mathematischen Beschreibung der Mobilisierung verwendet.

Quellterme für verschiedene, deutsche Abfallinventare wurden zuletzt von /KIE 12/, /KIE 13/ bezogen auf ein Endlager im Salzgestein abgeleitet. Die Quellterme beschreiben eine Kinetik der Radionuklidfreisetzung und die maximalen Radionuklidkonzentrationen in den verschiedenen Einlagerungskammern unter den erwarteten geochemischen Umgebungsbedingungen.

Die Mobilisierung der Radionuklide aus den Abfällen im Falle eines (angenommenen) Versagens eines Endlagerbehälters wurde in der Sicherheitsanalyse durch einen Quellterm für die Konsequenzenanalyse abgebildet /LAR 13/. Dieser Quellterm unterschied sich je nach Abfallinventar und Wirtsgestein. Es wurden nur die Eigenschaften der jeweiligen Abfallmatrix

berücksichtigt (siehe Kapitel 2.4.8), die Abfallumschließung des Abfalls wurde nicht gesondert berücksichtigt.

Weitere Arbeiten zu spezifischen Einzelfragen eines Quellterms erfolgten in den EU-Projekten First Nuclides /KIE 17a/ und Carbon-14 Source Term (CAST) /NEE 18/.

Im *Schweizer Endlagerkonzept* (siehe Kapitel 2.4.3.1) erfolgt die Mobilisierung der Radionuklide und relevanter stabiler Isotope aus der Abfallmatrix in eingedrungenes Porenwasser nach Behälterversagen unter Berücksichtigung einer Instant Release Fraction, einer langsamen Matrixauflösung und einer elementspezifischen Löslichkeit. Daher wird gelegentlich dort die Abfallmatrix als Barriere ausgewiesen, da diese für die Berechnung einer Radionuklidmobilisierung im Nahfeld wichtig ist (siehe Abb. 2.19).

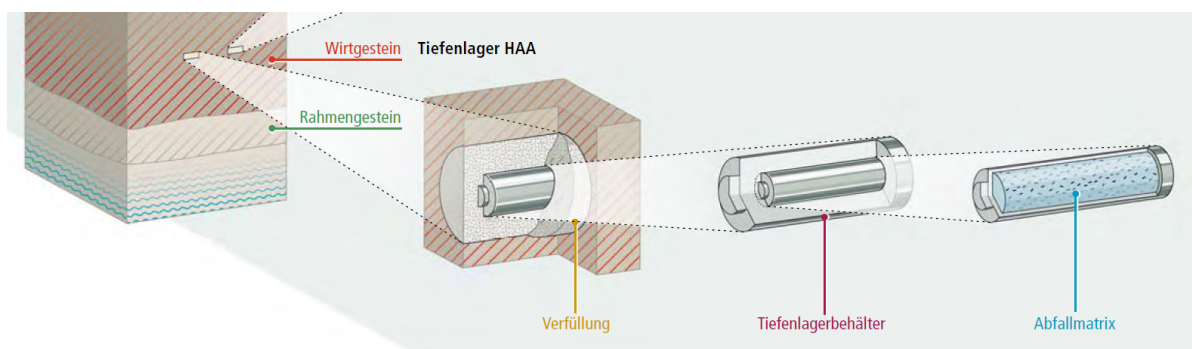


Abb. 2.19 Mehrbarrierensystem des Schweizer Konzepts /ENS 12/

Das für die Dosisberechnungen verwendete Nahfeldmodell der NAGRA (Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle) umfasst einen einzelnen Brennelement- oder HAA-Behälter inkl. Lagerstollenverfüllung sowie das unmittelbare geologische Umfeld /ENS 17/. Für die Lagerbehälter wird eine Lebensdauer von 10.000 Jahren angenommen. Die Mobilisierung der Radionuklide und relevanter stabiler Isotope aus der Abfallmatrix in eingedrungenes Porenwasser nach Behälterversagen erfolgt unter Berücksichtigung der langsamen Matrixauflösung und der elementspezifischen Löslichkeit. Der Radionuklidtransport in der Bentonitverfüllung eines Brennelement-/HAA-Lagerstollens erfolgt radial diffusiv, unter Berücksichtigung der Sorption, der elementspezifischen Löslichkeit und des radioaktiven Zerfalls bzw. Aufbaus /NAG 14/, /JOH 05/, /JOH 14/. Die so berechnete Radionuklidfreisetzung aus dem Nahfeld liefert den Quellterm für die Transportmodellierung in der Geosphäre.

Das *französische Endlagerkonzept* /AGE 15/ berücksichtigt für die Mobilisierung der Radionuklide z. B. die unterschiedlichen Eigenschaften für

- verglaste Abfälle,
- die Korrosion nicht reaktiver Metalle (Zirkoniumlegierungen, Inconel, Edelstahl und nicht legierte Stähle),
- die Wirkung organischer Bestandteile auf die Korrosionsrate sowie
- galvanische Wechselwirkungen.

Für graphithaltige Abfälle werden bspw. die Freisetzung der Radionuklide ^{137}Cs , ^{14}C und Tritium in Betracht gezogen. Der als instantan freisetzbare Radionuklidanteil wird bei MOX-Brennstoff zwischen 30 bis 50 % angenommen. Die Reaktivität bituminierter Abfälle (für Deutschland nicht relevant) wird bspw. abhängig von der Temperatur und der Wasserverfügbarkeit beschrieben.

Eine Zusammenfassung ist in /AGE 16/ und /INS 17/ zu finden. Die Mobilisierung erfolgt nach /AGE 16/ (S. 125 ff.) mit einer Instant Release Fraction und einer Freisetzungsrate (z. T. nach Behälterversagen) sowie Begrenzungen der Löslichkeit je nach Abfallart. Leider sind die in /AGE 16/ (S. 23 ff.) und /INS 17/ genannten Referenzen nicht allgemein oder frei verfügbar, jedoch werden Korrosionsraten für metallische Abfälle und mehrere Auflösungsdaten für verglaste Abfälle in /INS 17/ angegeben.

Das *schwedische Endlagerkonzept* (siehe Kapitel 2.4.4) geht im Basisfall von einer sehr geringen Korrosion der Behälter und somit von einem physischen Einschluss der Radionuklide aus. Nur unter der Annahme eines (vollständigen) Ausfalls des Behälters und dem Zutritt von Lösung zu einem gegebenen Zeitpunkt werden Radionuklide aus dem Abfallinventar mobilisiert. Der umgebende Bentonitbuffer wird nicht berücksichtigt /SVE 11c/. Es gilt dann:

- Der sofort freisetzbare Anteil an Radionukliden (Instant Release Fraction – IRF) wird vollständig gelöst und aus dem Behälter gespült. Dies führt zu einem Konzentrationspuls.
- Die Korrosion von Metallteilen setzt kongruent und anteilig die darin enthaltenen Radionuklide frei.
- Ebenfalls werden anteilig die Radionuklide aus der Brennstoffmatrix bei deren Auflösung kongruent freigesetzt.

Die Annahme der vollständigen und sofortigen Freisetzung von Aktivierungsprodukten aus den Strukturteilen wurde als unrealistisch angesehen. Daher wurde ebenfalls eine kongruente Freisetzung mit der Korrosionsrate angenommen.

Aufgrund der hohen Grundwasserfließraten im Umfeld des Behälters wird der sofort mobilisierbare Anteil der Radionuklide in wenigen Jahren aus dem Nahfeld freigesetzt. Da diese Radionuklide nicht sorbieren und Verzögerungen auf den Fließwegen gering sind, können diese zudem innerhalb weniger Jahre als Konzentrationspuls die Biosphäre erreichen.

Die Freisetzung bzw. Mobilisierung der Radionuklide wird somit von der Metallkorrosionsrate und Auflösungsrate des Brennstoffs bestimmt.

Dabei wird angenommen:

1. Da Uran in einer hohen Menge vorliegt, wird von einer maximalen Lösungskonzentration ausgegangen, die einerseits die Freisetzung bzw. Auflösungsrate für alle Uranisotope im Nahfeld begrenzt, andererseits aber zu einer höheren Freisetzung von Th-230, Th-229 und Pa-231 führt.
2. Es besteht die Möglichkeit, dass die Prozesse der Koprezipitation und Sorption im Bentonit zum Einschluss von Th-230 führen. In diesem Fall würde das mobilere Tochternuklid Ra-226 freigesetzt werden. Aus Sicht einer nachfolgenden Dosisabschätzung ist diese Annahme jedoch als ungünstig zu bewerten.

2.4.8 Quellterm in deutschen Sicherheitsanalysen

Eine Quelltermmodellierung ist die rechnerische Beschreibung der Mobilisierung und Mobilität von Radionukliden eingelagerter Abfälle im Endlagerbergwerk. Quellterme wurden auf deutscher Seite in der VSG /LAR 13/ und in den aktuellen Studien im Rahmen des Vorhabens RESUS /MÖN 20/ ermittelt. Diese werden im Nachfolgenden dargestellt.

2.4.8.1 Vorhaben VSG

/LAR 13/ beschreibt einen Quellterm zur Freisetzung eines volatilen und gelösten Anteils und berücksichtigt eine IRF für Radionuklide (hier C-14) aus Brennelementen als Modellvorstellung in einer Konsequenzenanalyse. Wesentliche Faktoren sind Korrosionsprozesse unter der Annahme eines Feuchtigkeitsgehalts in den Behältern /DÖR 12/ und im Salzgrusversatz. Diese tragen einerseits zu Behälterdefekten und andererseits zur Mobilisierung von Radionukliden – bspw. aus den Hüllrohren – bei.

Um die Auswirkungen einer Mobilisierung auf die Radionuklidfreisetzung aus dem Endlager und die radiologische Konsequenz aufzeigen zu können, wurden detailliertere Modellvorstellungen und Annahmen für das Referenzszenarium nach /BEU 12/ getroffen:

- Die POLLUX®-Behälter sind für mindestens 500 Jahre gasdicht ausgelegt. Somit wird frühestens ab diesem Zeitpunkt von einer Radionuklidfreisetzung aus den POLLUX®-Behältern ausgegangen.
- Es wurde angenommen, dass bis zu vier POLLUX®-10-Behälter mit Fertigungsfehlern eingelagert wurden. In den Modellberechnungen zur radiologischen Konsequenzenanalyse wurde vereinfacht angenommen, dass diese vier Behälter mit Start der Modellierung (initial) vollständig defekt sind und nicht zur Rückhaltung von mobilisierten Radionukliden beitragen.
- Zu Beginn der Einlagerung sind keine externen Lösungen in den Einlagerungsstrecken anzutreffen.
- Die Kontrolle bei der Umverpackung der Brennstäbe /DÖR 12/ von den CASTOR®-Behältern in die POLLUX®-10-Behälter stellt sicher, dass die Brennstäbe nicht beschädigt sind. Ob bis zu diesem Zeitpunkt schon gebildetes Gas freigesetzt wird, wird bei der Umverpackung geprüft.

Für das radioaktive Kohlenstoffisotop C-14 wurden folgende Anteile mit einer instantanen Freisetzung (IRF) in die Lösungs- und Gasphase nach Verschluss des Endlagers angenommen:

- Anteile aus den initial defekten POLLUX®-10-Behältern
- Anteile aus Strukturteilen (Hüllrohre und Strukturteile der Brennelemente)
- Anteile nach 500 Jahren aus den POLLUX®-10-Behältern.

Für die Radionuklidfreisetzung über den Gaspfad stehen ohne Korrosion der Brennstabhüllrohre (die abfallnah eingebrachten Lösungen reichen zunächst für eine weitergehende Korrosion nicht aus) in den initial defekten POLLUX®-10-Behältern nur die Radionuklide aus der Oxidschicht der Brennstabhüllrohre zur Verfügung.

Für die initial defekten POLLUX®-10-Behälter bedeutet dies in diesem Zusammenhang, dass zwar die POLLUX®-Behälter nicht mehr als gasdicht angenommen sind, aber aufgrund der geringen Restfeuchte im Behälter nicht durchgängig korrodieren. Nur Radionuklide, die sich an der Außenseite der Brennstabhüllen befinden oder durch Diffusion aus der Oxidschicht der Hülle heraustreten können, sind freisetzbar angenommen. Durch Diffusion oder Lösung aus

der Oxidschicht werden Radionuklide der Hülle (i. e. S. das Nuklid C-14) mit Beginn der Einlagerung in den Restporenraum des POLLUX®-10-Behälter als freigesetzt angenommen. Für die volatile Radionuklidfreisetzung des C-14 wurde basierend auf /SMI 93/ ein Anteil von 10 % des Inventars der Hüllrohre als Kohlendioxid ($^{14}\text{CO}_2$) in der Gasphase angenommen, da eine Reduktion zu Methan ($^{14}\text{CH}_4$) kinetisch stark gehemmt ist.

Die Radionuklide, die sowohl in der Brennstoffmatrix als auch im Zwischenraum von Brennstabmatrix und Hüllrohr anzunehmen sind, sind bis zum Defekt der Brennstabhüllen nicht freisetzbar.

Nach 500 Jahren wurden auch ohne Korrosion alle POLLUX®-10-Behälter mit Wiederaufarbeitungsrückständen als defekt angenommen, da dann keine weiteren Anforderungen (z. B. gegen mechanische Belastungen) an die Behälter gestellt sind. Zu diesem Zeitpunkt wurde nach der vorliegenden Modellvorstellung aus den POLLUX®-10-Behältern sowohl das auf der Oberfläche der Hüllrohre sorbierte bzw. aus der Oxidschicht diffundierte C-14 als auch die Radionuklide, die sich in der Brennstoffmatrix auf den Korngrenzen bzw. im Spaltraum befinden, freigesetzt, weil zu diesem Zeitpunkt auch die Brennstäbe als defekt angesehen werden. Es wurde unterstellt, dass das freigesetzte C-14 als gasförmiges Kohlendioxid vorliegt.

Die Verteilung und Speziation des C-14 auf bzw. in Oxidschicht, Zircaloymetall und Brennstoffmatrix ist nach wie vor weitgehend unbekannt und Gegenstand von Forschungs- und Entwicklungsstudien, beispielsweise wurden Untersuchungen in /NEE 18/, /KIE 17a/ durchgeführt. Oxidations- und Reduktionsprozesse an Kohlenstoffdioxid und Methan sind kinetisch stark gehemmt und werden für die vorliegenden Bedingungen im Behälter nicht erwartet. Oxidische Kohlenstoffverbindungen werden bevorzugt Kohlendioxid als Gasphase bilden, während carbidische Kohlenstoffverbindungen bevorzugt Methan als Gasphase bilden. Elementarer Kohlenstoff ist als inert anzusehen.

Neben der gasförmigen Freisetzung der Anteile kann die Freisetzung in Lösungen erfolgen. Diese Freisetzung ist sowohl abhängig von einem Lösungszutritt als auch von den Abfällen und den darin enthaltenen Radionukliden. Zur Entwicklung einer Modellvorstellung zum Quellterm wurde daher angenommen, dass Lösungen die POLLUX®-10-Behälter sowie die Zircaloyhüllen der Brennstäbe korrodieren. Somit sind bei Laugenkontakt und Korrosion die Radionuklide aus dem Zwischenraum und der Brennstoffmatrix als mobilisierbar zu berücksichtigen. Diese Anteile werden für die Abfallmatrix (Kornoberflächen bzw. Klüfte der Brennstoffpellets und Zwischenraum) bspw. in /KIE 12/ angegeben. Nach der Modellvorstellung der gleichzeitigen Freisetzung der Radionuklide aus der Brennstabhülle und Brennstoffmatrix wurde als Anteil 10 % des jeweiligen Radionuklidinventars der Brennstäbe angenommen.

Eine weitere Modellvorstellung der C-14-Freisetzung ist, dass die auf der Oberfläche der Hüllrohre sorbierten und aus der Oxidschicht stammenden oxidischen Verbindungen mit C-14 unter reduzierenden Verhältnissen vollständig zu Methan ($^{14}\text{CH}_4$) weiter reagieren könnten. Diese lägen dann in der Folge auch fast vollständig in der Gasphase vor. Nach der Einschätzung /LAR 13/ ist diese Reduktion zu Methan jedoch unter Zwischen- und Endlagerbedingungen kinetisch stark gehemmt und im Rahmen von F&E weiter zu untersuchen.

2.4.8.2 Vorhaben RESUS

Die Modellierungsansätze hinsichtlich der Radionuklidmobilität und -mobilisierung für Endlagersysteme in Salzgestein, Tongestein und Kristallingestein aus dem Vorhaben RESUS /MÖN 20/ werden nachfolgend dargestellt. Es wurden in allen Endlagersystemen POLLUX®-10-Behälter angenommen mit der Ausnahme für das Kristallingestein, für das auch Endlagersysteme mit kupferummantelten BSK und CASTOR®-Behältern angenommen wurden.

2.4.8.2.1 Salzgestein

Die Modellannahmen für den Quellterm sind identisch hinsichtlich der Radionuklidmobilität und -mobilisierung für Endlagersysteme in flach bzw. steil lagernden Salzformationen bei 100 °C Auslegungstemperatur an der Behälteroberfläche /BER 20a/, /BER 20b/ und bei einer höheren Auslegungstemperatur von 150 °C /BER 20c/.

Die Annahme ist, dass die Oberflächen der Endlagerbehälter zu korrodieren beginnen, sobald sie in Kontakt mit Lösungen kommen. Dies geschieht im Modell direkt zu Beginn der Nachverschlussphase. Abhängig von der Art der Abfallgebinde und -fixierung werden Radionuklide mit unterschiedlichen Raten aus der Abfallmatrix mobilisiert, d. h. sie werden in die flüssige Phase gelöst und stehen somit für Transportprozesse zur Verfügung. Hierbei sind Löslichkeitsgrenzen wirksam. Sorption wurde nicht berücksichtigt. Der Transport der gelösten Nuklide im Grubengebäude erfolgt hauptsächlich diffusiv, da zu späten Zeiten, wenn der Lösungskontakt mit den Abfällen erfolgt, die Volumenabnahme durch Konvergenz vernachlässigbar gering ist.

Das Vorhaben RESUS betrachtet ausschließlich den Transport von Radionukliden in der gelösten Phase. Ein Teil der mobilisierten Radionuklide kann im Behälter oder den Einlagerungsstrecken wieder aus der Lösung in eine feste Phase ausgefällt werden, falls die Radionuklidkonzentration in Lösung die Löslichkeitsgrenze des entsprechenden Elements erreicht. Bezüglich der Löslichkeit werden räumlich und zeitlich konstante geochemische Bedingungen angenommen.

Umsetzung in der Modellierung

Die Radionuklidmobilisierung aus den verschiedenen Abfallmatrices beginnt nach dem Ausfall der Abfallbehälter. Der Ausfallzeitpunkt wird durch die Korrosion der Abfallbehälter bestimmt, die aber im Modell vereinfachend weder zeitabhängig noch spezifisch für die verschiedenen Abfallbehältertypen ist. Vielmehr wird im Modell konservativ angenommen, dass alle Behälter instantan zum Zeitpunkt 500 a nach Verschluss des Endlagerbergwerks ausfallen.

Die Mobilisierung der Radionuklide wird für jede Abfallmatrix spezifisch angegeben und beginnt, sobald der Ausfallzeitpunkt der Behälter (500 Jahre) erreicht ist. Eine Rückhaltewirkung des Behälters, z. B. durch Sorption der mobilisierten Radionuklide an Korrosionsprodukten der Behältermaterialien, wird im Modell nicht berücksichtigt. Die Radionuklidmobilisierung beginnt mit dem Zeitpunkt des ersten Lösungskontaktes und erfolgt im Modell jeweils mit einer spezifischen konstanten Rate. Mobilisierte Schadstoffe gelangen entweder in Lösung oder fallen als Bodenkörper aus, dies wird durch elementspezifische Löslichkeitsgrenzen gesteuert. Gelöste Stoffe verteilen sich instantan gleichmäßig im gesamten Lösungsvolumen der Einlagerungstrecken.

Die Parameterwerte der einzelnen Abfallarten für die Radionuklidmobilisierung basieren auf den Annahmen im Vorhaben KOSINA /KIN 18/, die aus /BUH 08/ übernommen wurden. Die Mobilisierung der Radionuklide aus den verglasten Abfällen (CSD-V) erfolgt kongruent mit der Korrosion der Glasmatrix bei den für das Endlagersystem berechneten repräsentativen Temperaturverläufen an der Behälteroberfläche im CSD-V-Einlagerungsfeld. Die Parameter der Endlagersystem sind identisch mit denen, die für die Mobilisierung aus verglasten Abfällen und aus Strukturteilen verwendet wurden.

Für die Mobilisierung der Radionuklide aus den ausgedienten Brennelementen wird ein Ansatz verwendet, der eine Mobilisierung mit einer konstanten Rate aus drei Bereichen der Brennelemente vorsieht: aus den Metallteilen, der Brennstoffmatrix und aus der IRF. Die Behälterdaten sind angegeben.

Die (konstanten) relativen Freisetzungsraten für die Mobilisierung aus den Metallteilen, der Matrix und der IRF sind nach /BUH 08/ für LWR-Brennelemente ermittelt. Diese werden für die Mobilisierung aus dem Gemisch aus LWR-, DWR- und WWER-Brennelementen verwendet. Angegeben sind auch die Löslichkeitsgrenzen. Sorption wurde nicht berücksichtigt. Blei und Polonium sind nicht im eingelagerten Inventar enthalten, werden aber als Tochternuklide berücksichtigt. Es wird angenommen, dass sie unbegrenzt löslich sind.

Für den Ausfall aller Brennelement-Behälter wurde eine Lebensdauer von 500 Jahren angesetzt.

2.4.8.2.2 Tongestein

Die Modellannahmen sind identisch für den Quellterm in den Tonformationen bei 100 °C /ALF 20a/, /ALF 20b/ und bei 150 °C /ALF 20c/ Auslegungstemperatur an der Behälteroberfläche.

Nach dem Ausfall der Behälter werden die Radionuklide in den Abfällen mobilisiert und aus den Behältern heraustransportiert. Im Vorhaben RESUS wird nur der Transport von Radionukliden in der gelösten Phase betrachtet. Gasförmige Radionuklide müssen erst gelöst werden, um in die überliegenden Schichten transportiert zu werden. Ein Teil der mobilisierten Radionuklide kann im Behälter oder dessen unmittelbarer Umgebung wieder aus der Lösung in eine feste Phase ausgefällt werden, falls die Radionuklidkonzentration in Lösung die Löslichkeitsgrenze des entsprechenden Elements erreicht. Bezüglich der Löslichkeit werden räumlich und zeitlich konstante geochemische Bedingungen angenommen.

Der Transport der mobilisierten Radionuklide erfolgt im Basisfall im Nahfeld um den Behälter ausschließlich durch Diffusion radial durch die dort vorliegenden geotechnischen Barrieren. Danach erfolgt der weitere Transport sowohl durch Advektion als auch durch Diffusion durch das Wirtsgestein aus Tonstein.

Für die Berechnung der Mobilisierung und den Transport im Behälterumfeld wird der Endlagerbereich des Endlagersystems als bestehend aus acht Gruppen von gleichartigen Elementen betrachtet (siehe Abb. 2.20). Jede der acht Gruppen entspricht dabei einem Teilbereich des Endlagers für die Einlagerung einer der acht Abfallarten. Für jede dieser acht Gruppen wird jeweils ein repräsentatives Element der Gruppe modelliert. Im Fall des Endlagersystems T1 ist dieses repräsentative Element ein Einlagerungsbohrloch mit den Endlagerbehältern und den darin enthaltenen Abfällen.

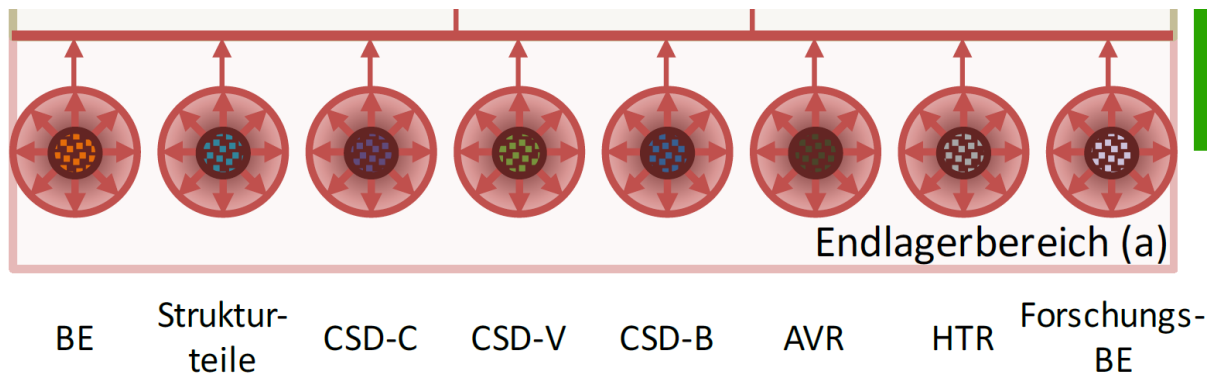


Abb. 2.20 Behälter und Nahfeld im Endlagermodell /ALF 20a/

Die Mobilisierung der Radionuklide im Behälter wird für jede der acht betrachteten Abfallarten spezifisch angegeben. Die Radionuklid-Mobilisierung erfolgt mit einer konstanten Rate und beginnt mit dem Zeitpunkt des Behälterausfalls, d. h. sobald Lösungen in den Behälter eindringen können. Mobilisierte Schadstoffe gelangen entweder in Lösung oder fallen als Bodenkörper aus. Dies wird durch elementspezifische Löslichkeitsgrenzen gesteuert. Gelöste Stoffe verteilen sich instantan gleichmäßig im gesamten Lösungsvolumen des Behälters. Durch die geotechnische Nahfeldbarriere der Bohrlochverfüllung bewegen sich die Schadstoffe ausschließlich diffusiv. Bei der Diffusionsrechnung wird eine radial symmetrische Geometrie betrachtet, und es werden eine elementspezifische lineare Sorption sowie der radioaktive Zerfall berücksichtigt.

Die Parameterwerte der einzelnen Abfallarten für die Radionuklidmobilisierung basieren auf den Annahmen in /KIN 18/. Die Mobilisierungsdauer der Glasmatrix wurde entsprechend der Endlagerauslegung in konservativer Weise berechnet und dabei eine zeitlich konstante Temperatur von 100 °C zugrunde gelegt, die der Maximaltemperatur an der Behälteroberfläche entspricht. Die Behälterlebensdauer wurde entsprechend einer Abschätzung im Vorhaben ANSICHT /JOB 16/² und die für die Lösung zur Verfügung stehenden Volumina in den Behältern durch Schätzung festgelegt. Es wird im Basisfall nicht angenommen, dass einzelne Behälter schon zu Beginn der Einlagerung undicht sind.

Für die Berechnung des Radionuklidtransports wurden die Parameterwerte bezüglich der Löslichkeitsgrenzen und der Sorptionskoeffizienten weitgehend dem Projekt Opalinuston /NAG 02a/ entnommen, da für die Unterkreidetone kein adäquater Datensatz zur Verfügung

² In der angegebenen Literaturstelle /JOB 16/ ist allerdings *keine* Abschätzung der Behälterlebensdauer zu finden. Lediglich aus der Annahme der Korrosionsrate und des Liner- bzw. Behälterausfalls nachdem die halbe Wandstärke korrodiert ist, ergibt sich ein Zeitpunkt, der hier als Behälterlebensdauer interpretiert worden sein könnte.

steht. Für Iod wurde keine Sorption angenommen, da neuere Untersuchungen /BAE 14/ dies nicht als gerechtfertigt erscheinen lassen.

Der Diffusionskoeffizient für Radionuklide wurde aus dem experimentellen Wert für den effektiven Diffusionskoeffizienten von Tritium im Opalinuston /VAN 04/ abgeleitet. Dabei wurde eine Erhöhung des Diffusionskoeffizienten durch die natürlich erhöhte Temperatur in der Endlagertiefe von 40 °C gegenüber jener bei den Experimenten von 25 °C berücksichtigt, was einen Faktor 1,41 ergibt /HOL 00/. Die Erhöhung der Temperatur durch die Wärme der Abfälle wird bei den Transportparametern nicht berücksichtigt, da das Temperaturmaximum zum Zeitpunkt des Behälterausfalls bereits deutlich überschritten ist. Für Anionen wurde eine Verringerung des Diffusionskoeffizienten gegenüber dem der sonstigen Radionuklide durch den Anionenausschluss um einen Faktor 4 berücksichtigt /VAN 04/.

2.4.8.2.3 Kristallingestein

Die Modellannahmen für den Quellterm in den Kristallingesteinsinformationen bei 100 °C Auslegungstemperatur an der Behälteroberfläche sind in den Berichten zum Vorhaben RESUS dokumentiert /BEC 20b/, /ALF 20d/, /BEC 20c/.

K1: Endlagerbehälter in vertikalen Bohrlöchern /BEC 20b/

Das für die langzeitsicherheitsanalytischen Rechnungen zur Bewertung des Einschlusses von Radionukliden zugrunde gelegte abstrahierte Modell des Endlagersystems gilt für eine Kristallinformation mit mehreren einschlusswirksamen Gebirgsbereichen (ewG). Dabei kommen drei Haupttypen von Behältern zum Einsatz:

- kupferummantelte BSK für Bohrlochlagerung
- kupferummantelte CASTOR®-Behälter für Streckenlagerung
- Gussbehälter für Strukturteile aus Leistungsreaktoren (MOSAIK®)

Die kupferummantelten BSK- und CASTOR®-Behälter sind auf eine Standzeit von mindestens 1 Mio. Jahre ausgelegt. Für den Basisfall wird angenommen, dass sie dieser Spezifikation gerecht werden, also während der Modellzeit von 10⁶ Jahren nicht ausfallen. Für die Strukturteilebehälter vom Typ MOSAIK® kann davon allerdings nicht ausgegangen werden. Hier ist mit einem korrosionsbedingten Behälterausfall nach einigen Jahrhunderten oder Jahrtausenden zu rechnen. Vereinfachend wird angenommen, dass alle zum gleichen Zeitpunkt nach 500 Jahren komplett ausfallen.

Der Modellierung liegen weiterhin folgende Annahmen zugrunde:

- Die Radionuklide in den Strukturteilebehältern liegen in zwei Teilbereichen – Metall und Gas – vor, denen unterschiedliche, jeweils konstante, Mobilisierungsraten zugeordnet sind. Der Teilbereich Gas umfasst diejenigen Radionuklide, die bereits vor Beginn der Nachbetriebsphase aus den Strukturteilen freigesetzt wurden und sich in den Behälterhohlräumen angesammelt haben. Diese werden als IRF betrachtet. Vereinfachend wird angenommen, dass dies 1 % des Gesamtinventars betrifft.
- Die Mobilisierung beginnt mit dem Zeitpunkt des Ausfalls. Eine Rückhaltewirkung des Behälters wird danach nicht mehr angenommen.
- Die Radionuklide unterliegen innerhalb des Behälters elementspezifischen Löslichkeitsgrenzen. Isotope teilen die gemeinsame Löslichkeit entsprechend ihren Inventaranteilen untereinander auf.
- Der Transport von Radionukliden erfolgt durch radiale Diffusion aus dem Behälter.
- Die Radionuklide sorbieren am Kristallingestein. Sorption an anderen Stoffen wird vernachlässigt.

Daten zur Sorption, Löslichkeit und Mobilisierung von Radionukliden für ein Endlager im Granit sind aus /LÜH 00/ und /CAR 97/ entnommen.

K2: Kristallingesteinsinformation mit einer überlagernden Salzformation /BEC 20a/

Der Bericht war nur als Entwurf zugänglich und wurde daher nicht ausgewertet.

K3: Kristallingesteinsinformation mit einer überlagernden Tonformation /ALF 20d/

Die Radionuklidmobilisierung aus den verschiedenen Abfallmatrices beginnt nach dem Ausfall der Abfallbehälter. Der Ausfallzeitpunkt wird durch die Korrosion der Abfallbehälter bestimmt, die aber im Modell vereinfachend weder zeitabhängig noch spezifisch für die verschiedenen Abfallbehältertypen berechnet wird. Vielmehr wird im Modell konservativ angenommen, dass alle Behälter instantan zum Zeitpunkt 500 Jahre nach Verschluss des Endlagerbergwerks ausfallen. Bis zu diesem Zeitpunkt müssen die Abfallbehälter gemäß den Sicherheitsanforderungen des BMU /BMU 10a/ bergbar sein, was bedeutet, dass die Abfallbehälter dann nachweislich noch soweit intakt sein müssen, dass sie bei der Bergung handhabbar sind und dabei eine Freisetzung von radioaktiven Aerosolen vermieden werden kann. Die Radionuklide erreichen in den Modellrechnungen nach ihrer Mobilisierung aus der Abfallmatrix ohne Zeitverzug die Streckenwandung.

Der Modellierung liegen weiterhin folgende Annahmen zugrunde:

- Die Radionuklide in den Strukturteilebehältern (MOSAIK®) werden mit einheitlicher Mobilisierungsrate behandelt. In den übrigen Behältern liegen die Radionuklide in drei Teilbereichen – Gas, Metall und Matrix – vor, denen unterschiedliche elementabhängige, jeweils zeitlich konstante Mobilisierungsraten zugeordnet sind. Der Gasbereich umfasst diejenigen Radionuklide, die bereits vor Beginn der Nachbetriebsphase freigesetzt wurden und sich in den Behälterhohlräumen angesammelt haben. Diese werden als Instant Release Fraction betrachtet.
- Die eigentliche Mobilisierung beginnt, sobald der Ausfallzeitpunkt der Behälter erreicht ist (500 Jahre). Eine Rückhaltewirkung des Behälters, z. B. durch Sorption der mobilisierten Radionuklide an Korrosionsprodukten der Behältermaterialien, wird im Modell nicht berücksichtigt, d. h. die Radionuklide verteilen sich zum Ausfallzeitpunkt spontan gleichmäßig in dem gesamten, der Behälterlänge entsprechenden Abschnitt der Strecke bzw. des Bohrlochs.
- Die Radionuklide unterliegen innerhalb des Behälters und der Strecke bzw. des Bohrlochs elementspezifischen Löslichkeitsgrenzen. Isotope teilen die gemeinsame Löslichkeit entsprechend ihren Inventaranteilen untereinander auf.

Daten zur Sorption, Löslichkeit und Mobilisierung von Radionukliden für ein Endlager im Kristallingestein sind aus /LÜH 00/ entnommen.

K4: Kristallingesteinsinformation mit Einschluss der Radionuklide durch technische und geotechnische Barrieren /BEC 20c/

Modellrechnungen zur Schadstofffreisetzung aus einem technisch auf Dichtheit ausgelegten Behälter werden nicht als sinnvoll erachtet. Daher wird – ohne Bewertung der Wahrscheinlichkeit eines solchen Szenariums – untersucht, welche Konsequenzen ein unterstellter Ausfall eines solchen Behälters während des Zeitraumes von 1 Mio. Jahre hätte. Als Ausfall wird dabei nach konservativen Gesichtspunkten ein plötzlich eintretender Totalverlust des Einschlussvermögens bezeichnet, d. h. im Modell wird angenommen, dass die Behälterwandung zu einem bestimmten Zeitpunkt verschwindet und die gelösten Radionuklide somit in direktem Kontakt zum Innenrand des Buffers stehen. Eine Schädigung des Buffers wird nicht angenommen. Daraus leitet sich ein Quellterm für das Nahfeld ab.

Es sind verschiedene Behältertypen für die unterschiedlichen Abfallarten zu erwarten. Weil die BSK dabei für die direkte Endlagerung von Brennelementen das höchste Gesamtinventar enthalten und in der größten Anzahl vorhanden sind, wird hier beispielhaft der Ausfall eines sol-

chen Behälters betrachtet, der einzeln in einem vertikalen Bohrloch eingelagert ist. Der vollständige Ausfall dieses Behälters kann zu verschiedenen Zeitpunkten (z. B. nach 1, 10.000 oder 100.000 Jahren) stattfinden.

Die nach dem Behälterausfall austretenden Radionuklide werden rein diffusiv durch den Buffer transportiert, wobei sie Löslichkeitsgrenzen und Sorption unterliegen. Es wird angenommen, dass direkt außerhalb des Buffers wasserführende Klüfte vorhanden sind, über die die Radionuklide im Vergleich zur Diffusion schnell abtransportiert werden, so dass eine Nullkonzentrations-Randbedingung angenommen werden kann. Dies ist konservativ, denn eine nichtverschwindende Radionuklidkonzentration am Außenrand des Buffers würde den Konzentrationsgradienten verringern und somit den Diffusionsprozess verzögern.

Der Modellierung liegen weiterhin folgende Annahmen zugrunde:

- Die Radionuklide in den BSK liegen in drei Teilbereichen – Metall, Gas und Brennstoffmatrix – vor, denen unterschiedliche, jeweils zeitlich konstante Mobilisierungsraten zugeordnet sind /LÜH 00/. Der Gasbereich umfasst diejenigen Radionuklide, die bereits vor Beginn der Nachbetriebsphase aus den Strukturteilen freigesetzt wurden und sich in den Behälterhohlräumen angesammelt haben. Diese werden als Instant Release Fraction betrachtet.
- Die Mobilisierung beginnt, sobald der Ausfallzeitpunkt erreicht ist. Eine Rückhaltewirkung des Behälters wird danach nicht mehr angenommen. Auch weitere Eigenschaften des Behälters im Hinblick auf eine Radionuklidmobilisierung oder -mobilität werden nicht berücksichtigt.
- Die Radionuklide unterliegen innerhalb des Behälters elementspezifischen Löslichkeitsgrenzen /LÜH 00/. Isotope teilen die gemeinsame Löslichkeit entsprechend ihren Inventaranteilen untereinander auf.
- Der Transport von Radionukliden erfolgt durch radiale Diffusion durch den Buffer. Die Sorption wird mit Koeffizienten (K_d -Werte) nach /LÜH 00/ oder /NAG 02a/ berücksichtigt.

Die Parameterwerte zur Mobilisierung aus abgebranntem Brennstoff, Strukturteilen, Glas sowie der IRF lassen sich unverändert auf /KEE 05/ zurückführen. In /KEE 05/ ist keine Erläuterung für die angegebenen Werte zu finden. Die Werte sind allerdings identisch mit /LÜH 00/, worin auf /BAU 00/ verwiesen wird.

2.4.9 Zusammenfassung und Schlussfolgerung

Für die betrachteten Endlagerkonzepte wurden die jeweiligen technischen und geotechnischen Barrieren aufgezeigt und die technischen Parameter für mögliche Modellierungsansätze im Kapitel 4 dargestellt.

Die dargestellten technischen und geotechnischen Barrieren unterscheiden sich in Abhängigkeit vom gewählten (oder betrachteten) Endlagerkonzept und sind damit abhängig vom jeweiligen Wirtsgestein. Bei einer Endlagerung im Salz spielen technische oder geotechnische Barrieren für die langzeitsichere Endlagerung keine Rolle. Hauptbarriere ist hier das Salzgestein selbst, welches den langzeitsicheren Einschluss liefert. Im Tonstein stellt der Endlagerbehälter in Verbindung mit der umgebenden geotechnischen Bentonit-Barriere eine bedeutende, die Barriere des Wirtsgesteins ergänzende Barriere dar, während im Kristallin der Behälter die primäre Barriere darstellt, dessen Sicherheitsfunktionen durch die umgebende geotechnische Bentonit-Barriere geschützt und aufrechterhalten werden sollen. Im Schweizer Endlagerkonzept im Tonstein ist die Einschlusswirksamkeit der Behälter auf 1.000 Jahre ausgelegt, im schwedischen Kristallin-Konzept auf mind. 10.000 Jahre.

In diesem Vorhaben wird daher angenommen, dass die Barriere „Behälter“ im Endlager versagt („aus welchen Gründen auch immer“). Wichtige Einflussfaktoren auf die Radionuklidmobilität im Endlager entstammen daher aus den technischen/geotechnischen Barrieren, die den Behälter umgeben, sowie der Brennstoffmatrix, Metallmatrix und ggf. einer Verglasung.

Alle o. g. Studien berücksichtigen in der Modellierung des Quellterms sehr vereinfachende Annahmen, die das Abfallinventar zunächst nach Brennstoffmatrix, Metallmatrix und Verglasung unterscheiden. Für diese Abfälle werden im Quellterm nach einem Behälterausfall ein sofort freisetzbarer Anteil (IRF) und eine Rate für die Mobilisierung der Radionuklide in gelöster oder gasförmiger Form angenommen. Sofern Sorption aufgrund von eingesetzten (Buffer-) Materialien erwartet wird, werden elementspezifische Annahmen getroffen. Dies gilt auch für eine Sorption und Diffusion im Nahfeld. Nur in einer Quelltermmodellierung wird ein gasphasengetragener Transport eines Radionuklids unterstellt /LAR 13/. Elementspezifische Löslichkeiten werden auf der Basis einer Lösungszusammensetzung für das jeweilige Wirtsgestein angewendet. Weitere spezifische Eigenschaften des Abfalls, weiterer Materialien und Prozesse gehen nicht in den Quellterm ein, da die getroffenen Annahmen als abdeckend angesehen werden.

Auf Basis dieser Modelle können Einzelmaßnahmen der Zwischenlagerung oder der Endlagerung, die zu Änderungen in den technischen Endlagerkonzepten führen würden, nur sehr

eingeschränkt berücksichtigt werden. Komponenten (z. B. Behältermaterialien, Behälterverfüllung, Konditionierungsmaterialien), die für eine detailliertere Quelltermberechnung in Frage kommen könnten, sind in den vorliegenden Ansätzen für Modellierungen einer Mobilisierung und Mobilität von Radionukliden weder berücksichtigt noch parametrisiert. Beispielsweise ist für eine Modellierung der Zeitpunkt des angenommenen Ausfalls eines Behälters einer der wichtigsten Parameter.

Untersuchungen zur Ableitung von Parameterwerten sind bspw. in /IAE 07/ zusammengefasst. Als aktuelle Reviews von Daten und Parametern für Quellterme der verschiedenen Abfallarten – jedoch nur für das Wirtsgestein Steinsalz – sind /KIE 12/, /KIE 13/ zu werten. Weitere zusammenfassende Auswertungen sind nach derzeitigem Kenntnisstand nicht vorhanden. Einige spezifische Forschungsarbeiten sind im EU-Projekt *First Nuclides* zu finden /KIE 17a/.

Die Ableitung von Parameterwerten für Mobilisierungsraten der Radionuklide aus den Abfällen sind derzeit in der Literatur nicht an die unterschiedlichen Abfallgebinde, Wirtsgesteine und Konzepte angepasst, sondern ebenfalls abdeckend erfolgt.

Um positive oder negative Auswirkungen von Maßnahmen in der Zwischenlagerung auf die Sicherheit einer Endlagerung untersuchen zu können, sind daher einerseits Annahmen für wirtsgesteinsspezifische Endlagerkonzepte erforderlich als auch Verfeinerungen in der modelltechnischen Abbildung der Mobilisierung und Mobilität von Radionukliden im Nahfeld. Dabei sind insbesondere chemische und geochemische Prozesse der Mobilisierung und Mobilität und die dazu zu treffenden Annahmen entscheidend.

3 Zwischenlageranalyse

3.1 Auswahl konkreter Beladungen von Transport- und Lagerbehältern

Die Effekte, die Einfluss auf die Behälter und Inventare in der Zwischenlagerung haben, wurden bereits in Kapitel 2 ausführlich beschrieben. Für die Zwischenlagerfähigkeit der Inventare sind die Einflussfaktoren von Interesse, welche die Integrität einer Barriere, wie z. B. die Hüllrohre der Brennstäbe, beeinträchtigen können. Das Versagen einer Barriere während der Zwischenlagerung wird für den Einzelfall nicht ausgeschlossen und durch das Multibarrierenkonzept abgefangen. Im folgenden Kapitel werden charakteristische Beladungen mit maximal zulässigen Wärmeleistungen in der Zwischenlagerung betrachtet, um zunächst mögliche Folgen auf die Integrität der Umschließungen und Matrices für das Verhalten bei längeren Lagerzeiten sowie mögliche Auswirkungen auf die Radionuklidmobilität im Endlager ableiten zu können.

Relevante Behälterinventare

Als relevante Behälterinventare in der Zwischenlagerung sind zunächst die LWR-Brennelemente zu benennen. Dieser Inventartyp stellt zahlenmäßig die größte Gruppe als auch die höchsten Abbrände sowie Wärmeleistungen und Aktivitäten der betrachteten Brennelemente dar. Die ebenfalls als eigenständige Inventarkategorie betrachteten WWER-Brennelemente, als Unterkategorie der LWR-Brennelemente, grenzen sich von den in Deutschland üblich verwendeten LWR-Brennelementen sowohl in der Geometrie als auch in der Besonderheit der bei der Abfertigung festgestellten Undichtigkeiten einzelner Brennstäbe ab.

Eine weitere Inventarkategorie bilden die Versuchs- und Forschungsreaktor-Brennelemente, an die andere Anforderungen im Betrieb als an die LWR-Brennelemente gestellt werden bzw. wurden. Diese unterscheiden sich hauptsächlich im geometrischen Aufbau sowie in der Zusammensetzung des Brennstoffes. Die letzte der relevanten Behälterinventargruppen bilden die verglasten Abfälle aus der Wiederaufarbeitung.

Für die Auswahl konkreter Beladungen von TLB werden die zwischengelagerten Inventare analog zum Kapitel 2 folgendermaßen gruppiert. Diese Gruppierung umfasst

- LWR-Brennelemente,
- WWER-Brennelemente,
- Versuchs- und Forschungsreaktor-Brennelemente (RFR, AVR/THTR, KNK, FRM II, FRMZ) und

- verglaste hochaktive Spaltprodukte.

Die Effekte, die zu einer systematischen Änderung der Integrität der Umschließung der jeweiligen Inventare führen können, werden oftmals von der Temperatur, der Strahlung oder mechanischen Belastungen vorangetrieben. Um deren Einfluss genauer bestimmen zu können, werden zu den unterschiedlichen Brennelementarten und den verglasten Abfällen vereinfachte Rechnungen durchgeführt. Um die Vielfalt der unterschiedlichen Brennstoffe miteinander vergleichen und bewerten zu können, muss zunächst eine einheitliche Datenebene geschaffen werden. Dies sind Aktivitätsangaben und Nachzerfallswärmeleistungen vor der Zwischenlagerung mit einer zeitlichen Entwicklung der Größen bis 100 Jahre. Diese Zeitspanne wird als mögliche verlängerte Zwischenlagerdauer gesehen. Im Weiteren sind anhand der vorhandenen Daten plausible Annahmen über die Dauer einer verlängerten Zwischenlagerung getroffen und skizziert.

Bei Vorliegen geeigneter Inputparameter für die Inventare wurden die Radioaktivität und die Nachzerfallswärmeleistungen der Brennelemente mit dem GRS-Abbrandsimulationsprogramm OREST /HES 86/ berechnet. Ergänzend dazu wurden Daten und Angaben aus der Literatur herangezogen.

3.1.1 LWR-Brennelemente

Die in Deutschland eingesetzten LWR-Brennelemente zeigen eine große Vielfalt an Geometriedesigns, Brennstabanordnungen und verwendeten Materialien bei jeweils unterschiedlichen Einsatzbedingungen. Im Nachfolgenden werden nur 18x18 Brennelemente aus DWR als ungünstiger Referenzfall betrachtet. Diese werden durch die Druckbeaufschlagung und die größeren Belastungen während des Betriebs als ungünstiger Fall abdeckend für die LWR-Inventare angesehen.

Ausgehend von den in Deutschland verwendeten LWR-Brennstoffen werden repräsentative Abbrandrechnungen für ein UO_2 -Brennelement mit einem mittleren Brennelement-Abbrand von 55 GWd/Mg SM, mit einem mittleren Brennelement-Abbrand von 65 GWd/Mg SM als Hochabbrand, sowie für ein MOX-Brennelement mit einem mittleren Brennelement-Abbrand von 55 GWd/Mg SM durchgeführt. Die Werte stellen die maximal erlaubten mittleren Brennelement-Abbrände für verschiedene genehmigte Beladeszenarien des CASTOR® V/19 dar, welche in den weiterführenden Betrachtungen Eingang in die Analysen finden. Für die Leistungsreaktor-Brennelemente aus Siedewasserreaktor (SWR) und Druckwassereaktoren (DWR) werden als Referenz die DWR-Brennelemente betrachtet. Bei ähnlichen Abbränden ist das Niveau der Spaltgasmenge ähnlich, jedoch unterscheiden sie sich durch die höhere

Druckbeaufschlagung bei der Fertigung. Der Brennstabinnendruck ist bei DWR-Brennelementen deutlich höher als bei SWR-Brennelementen /HUM 18/. Damit sind die sich ergebenden Lastzustände bei DWR-Brennstäben als ungünstiger zu betrachten. Als Referenzfall für die Simulationen dient ein 18x18 DWR-Brennelement mit einer Schwermetallmasse von 526 kg. Die Anfangsanreicherungen wurden derart gewählt, dass der Abbrand reaktivitätsmäßig erreicht werden kann. Das Fahrtdiagramm entspricht einer typischen Bestrahlungshistorie mit insgesamt fünf Zyklen zu je 305 Tagen.

Als Ergebnis der Berechnungen sind die Nachzerfallswärmeleistung und die Aktivität in Abhängigkeit von der Abklingzeit in Tab. 3.1 gelistet. Die Abb. 3.1 zeigt die Entwicklung der Nachzerfallswärmeleistung und Abb. 3.2 die Entwicklung der Aktivität der betrachteten Brennelemente für einen Zeitraum bis 100 Jahre nach dem Bestrahlungsende.

Tab. 3.1 LWR-Brennelemente

Nachzerfallswärmeleistung und Aktivität pro BE mit UO₂ bzw. MOX-Brennstoff und 55 bzw. 65 GWd/Mg SM Abbrand für einen Abklingzeitraum bis 100 Jahre

Abklingzeit [a]	5	10	15	20	30	50	70	100
UO ₂ , 55 GWd/Mg SM, 526 kg SM								
Leistung [W]	1,6E+03	1,1E+03	9,4E+02	8,4E+02	7,0E+02	5,0E+02	3,7E+02	2,6E+02
Aktivität [Bq]	1,6E+16	1,2E+16	1,0E+16	8,6E+15	6,6E+15	3,9E+15	2,4E+15	1,3E+15
UO ₂ , 65 GWd/Mg SM, 526 kg SM								
Leistung [W]	2,2E+03	1,5E+03	1,3E+03	1,1E+03	9,2E+02	6,4E+02	4,7E+02	3,2E+02
Aktivität [Bq]	2,0E+16	1,4E+16	1,2E+16	1,0E+16	7,9E+15	4,8E+15	3,0E+15	1,5E+15
MOX, 55 GWd/Mg SM, 526 kg SM								
Leistung [W]	3,4E+03	2,8E+03	2,5E+03	2,3E+03	2,0E+03	1,6E+03	1,3E+03	1,1E+03
Aktivität [Bq]	3,1E+16	2,3E+16	1,9E+16	1,6E+16	1,1E+16	6,2E+15	3,8E+15	2,2E+15

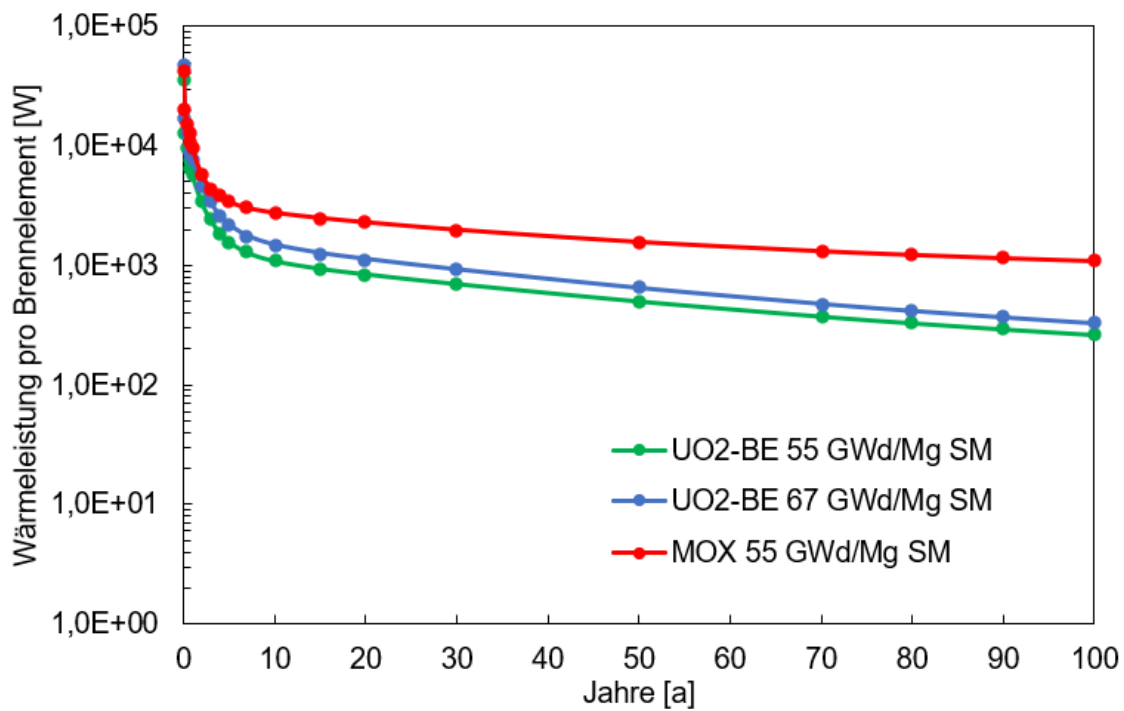


Abb. 3.1 Nachzerfallswärmeleistung eines LWR-BE mit UO_2 bei Abbränden von 55 GWd/Mg SM (grün) bzw. 65 GWd/Mg SM (blau) und für MOX bei 55 GWd/Mg SM (rot) mit jeweils 526 kg SM pro BE

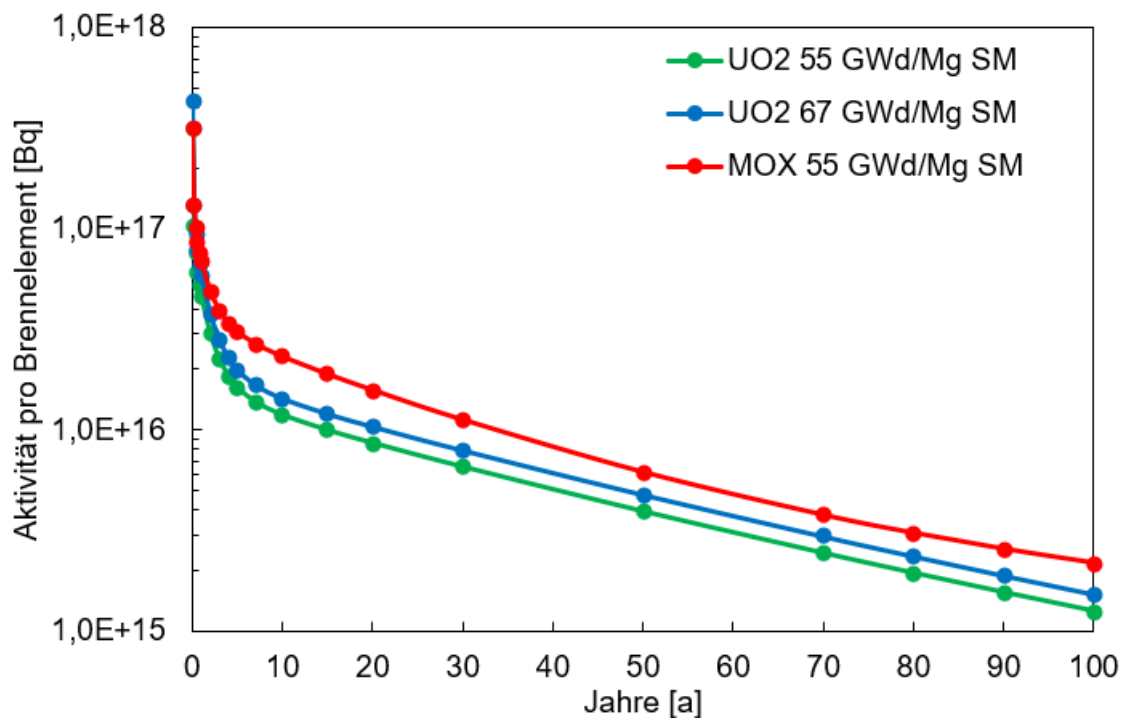


Abb. 3.2 Aktivität eines LWR-BE mit UO_2 bei Abbränden von 55 (grün) bzw. 65 GWd/Mg SM (blau) und für MOX bei 55 GWd/Mg SM (rot) mit jeweils 526 kg SM pro BE

Die für eine Abklingzeit von bis zu 100 Jahren berechneten Werte zeigen, dass bei gleichem Abbrand die Wärmeleistung für das MOX-Brennelement um den Faktor zwei bis vier höher ist als bei dem UO_2 -Brennelement (siehe Abb. 3.1). Im gleichen Zeitraum ist die Aktivität des MOX-Brennelements um einen Faktor zwei größer als die des UO_2 -Brennelements. Die Nachzerfallswärmeleistung und Aktivität des 65 GWd/Mg SM Hochabbrand- UO_2 -Brennelements ist im Vergleich zu dem 55 GWd/Mg SM UO_2 -Brennelement um etwa 30 bis 25 % erhöht, jedoch immer noch um rund einen Faktor 2 niedriger als die des 55 GWd/Mg SM MOX-Brennelements.

Beladevarianten

Für die nachfolgenden Betrachtungen besteht die grundlegende Überlegung darin, Beladeszenarien auszuwählen, die zu maximalen Temperaturen und somit zu maximalen Belastungen der Brennstäbe bzw. Hüllrohre führen. Für diese ist die Wahrscheinlichkeit einer Beeinträchtigung der Hüllrohrintegrität am größten und es kann sich daraus ggf. die Notwendigkeit einer Maßnahme im Hinblick auf weitere Behandlungsschritte dieser Brennelemente ableiten lassen (vgl. Kapitel 3.2.2). Eingang in die Analysen finden deshalb drei (eine homogene und zwei heterogene) genehmigte Beladeszenarien des CASTOR® V/19 unter der Randbedingung der Ausschöpfung der maximalen Wärmebelastung des Behälters. Der TN24E kann zwar mit 21 Brennelementen, also mit zwei Brennelementen mehr als der CASTOR® V/19, beladen werden, allerdings ist die zulässige Nachzerfallswärmeleistung der einzelnen Brennelemente im Vergleich zum CASTOR® V/19 niedriger. Die drei Beladevarianten (siehe Abb. 3.7) stellen im Hinblick auf die Temperaturverteilung und die resultierenden Spannungen in den Brennstäben in einem Behälter eine konservative Behälterbeladung dar. Die ausgewählten Behälterbeladungen sowie die Brennelementdaten für die Temperaturverteilungsrechnungen fließen als Eingangsgrößen in Kapitel 3.2 ein.

Homogene Beladung – Szenario 1

Die Annahme im Szenario 1 ist eine homogene Beladung des Behälters mit insgesamt 19 gleichen UO_2 -Brennelementen mit einer Nachzerfallswärmeleistung von 2,05 kW, was jeweils einem Abbrand von 55 GWd/Mg SM entspricht. Die Beladung entspricht einer Behälterwärmeleistung von 39 kW.

Heterogene Beladung – Szenario 2

Die erste heterogene Beladung – Szenario 2 – bildet eine Belegung mit 15 UO_2 -Brennelementen mit einer Nachzerfallswärmeleistung von jeweils 1,83 kW bei einem Abbrand von 55 GWd/Mg SM und mit vier UO_2 -Brennelementen mit jeweils 2,65 kW und einem Abbrand

von 65 GWd/Mg SM auf vier der sechs Positionen im inneren Ring. Die Beladung entspricht einer Behälterwärmeleistung von 38 kW.

Heterogene Beladung – Szenario 3

In der zweiten heterogenen Beladung – Szenario 3 – sind im äußeren Ring zwölf UO₂-Brennelemente mit jeweils 2,10 kW angeordnet, im inneren Ring sechs MOX-Brennelemente mit einer Nachzerfallswärmeleistung von jeweils 2,10 kW und ein zentrales UO₂-Brennelement mit 1,20 kW. Die Beladung entspricht einer Behälterwärmeleistung von 39 kW.

3.1.2 WWER-Brennelemente

Brennelemente vom Typ WWER weichen ab von den in LWR üblichen Brennelementen insbesondere durch die hexagonale Geometrie. Von den WWER-Brennelementinventaren sind während der Zwischenlagerung ähnliche Mechanismen, wie sie für LWR-Brennelemente bekannt sind, zu erwarten (siehe Kapitel 2.2). Aufgrund der bei der Einlagerung festgestellten Undichtigkeiten einiger WWER-Brennelemente infolge betrieblicher Einflüsse, werden diese, hier als eigenständige Inventarkategorie betrachtet.

Die WWER-Brennelemente aus dem Reaktorbetrieb in Greifswald und Rheinsberg sind seit 2006 vollständig in 65 CASTOR® 440/84-Behältern verpackt worden und lagern seither im ZLN. Die insgesamt 5.048 Brennelemente haben einen hexagonalen Querschnitt. Eine Anfangsanreicherung von 3,6 % U-235 und ein mittlerer Brennelement-Abbrand von 33 GWd/Mg SM stellen konservative Größen für die Ermittlung der Nachzerfallsleistung und der Aktivität der WWER-Brennelemente dar /BFS 97/. Die Schwermetallmasse eines Brennelements beträgt frisch 120 kg. Für die Abbrandrechnung wird eine schematische Bestrahlungsdauer in drei Zyklen von jeweils 300 Volllasttagen und 65 Tagen Revisionszeit verwendet. Die Brennstoffleistung wird während der Volllasttage als konstant 36,67 MW/Mg SM angesetzt. Dadurch wird ein Endabbrand von 33,0 GWd/Mg U erzielt /HES 94/. Die Ergebnisse der Berechnungen sind in Abhängigkeit von der Abklinglagerzeit in Tab. 3.2 gelistet und in Abb. 3.3 dargestellt.

Tab. 3.2 WWER-BE: Nachzerfallswärmeleistung und Aktivität für ein BE /HES 94/

Abklingzeit [a]	5	10	15	20	30	40	50	100
UO ₂ , 33 GWd/Mg SM, 120 kg SM								
Leistung [W]	2,1E+02	1,4E+02	1,2E+02	1,1E+02	9,0E+01	7,8E+01	6,7E+01	3,9E+01
Aktivität [Bq]	2,6E+15	1,8E+15	1,5E+15	1,3E+15	9,7E+14	7,5E+14	5,8E+14	1,9E+14

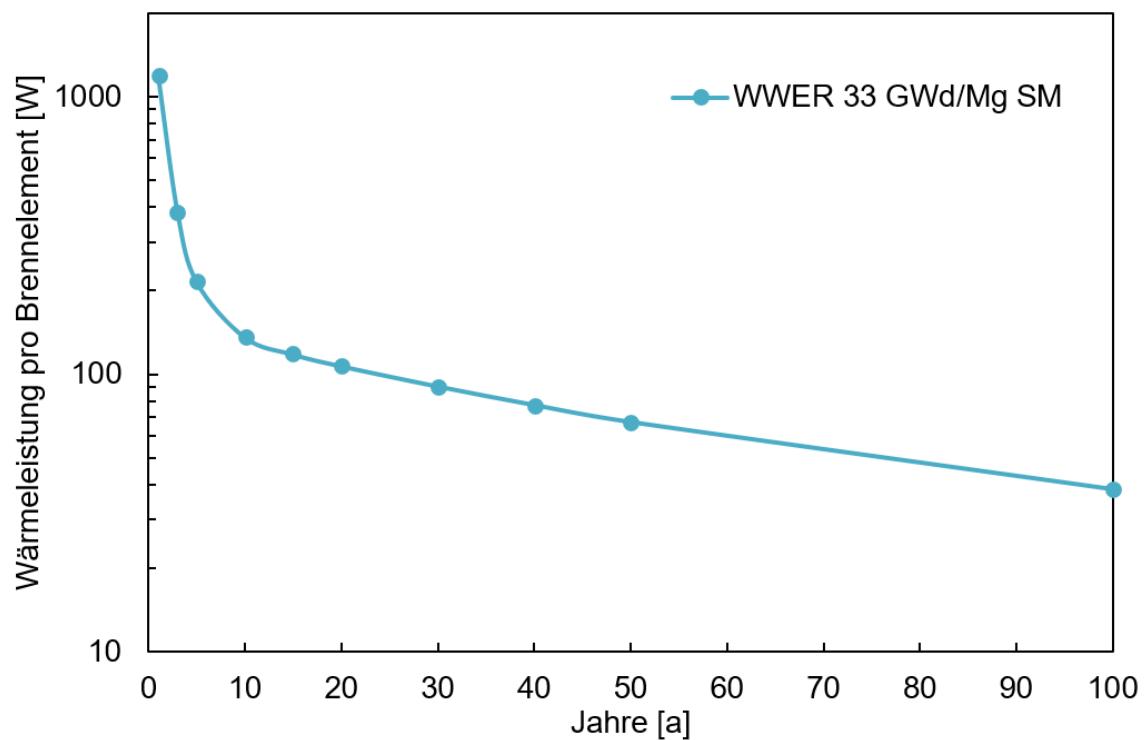


Abb. 3.3 Wärmeleistung eines WWER-BE mit UO_2 bei einem Abbrand von 33 GWd/Mg SM mit 120 kg SM pro BE

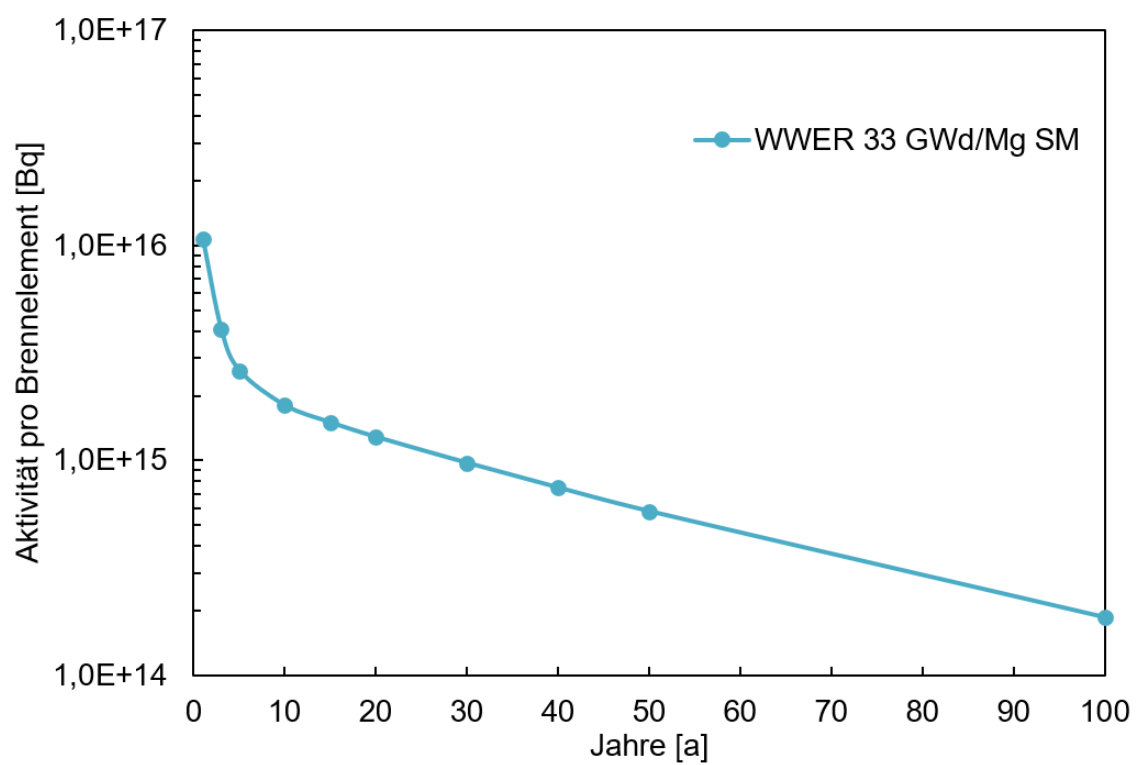


Abb. 3.4 Aktivität eines WWER-BE mit UO_2 bei einem Abbrand von 33 GWd/Mg SM mit 120 kg SM pro BE

Die Beladungen von 61 Behältern vom Typ CASTOR® 440/84 weisen einige Besonderheiten auf. Neben den intakten WWER-Brennelementen sind auch defekte Brennstäbe und Filterkerzen, sog. Restwasseradsorber, zum Binden von Restfeuchte aus den defekten Brennstäben eingesetzt. In jedem TLB der WWER-Brennelemente ist mindestens ein Restwasseradsorber eingebracht. Dabei wurde ein Adsorberstab für acht als defekt eingestufte Brennelement- und Regelement-Brennstoffteile bzw. zwei Restwasserabsorber für bis maximal 16 als defekt eingestufte Brennelemente in den Behälter eingesetzt /BFS 99/. Mehr defekte Brennelemente in einem Behälter sind nicht zugelassen. Der Restwasseradsorber besteht aus einem mit mineralischem Molekularsieb gefüllten Sintermetallrohr, das auftretende Feuchtigkeit bindet und dadurch Korrosion verhindert. Daneben sind in einem Behälter 68 Anfahrquellen aus Plutonium-Beryllium, 54 Ionisationskammern in acht der 84 Korbschächten mit eingelagert sowie in zwei Behältern zusätzlich Core-Bauteile /LAN 00/.

Ein weiterer Behälter mit verändertem Korb (CASTOR® 440/84 mvK) ist mit geometrisch gestörten, unvollständigen, defekten und defektfreien Brennelementen aus dem Kernkraftwerk Rheinsberg beladen. Sonderbrennelemente bestehen hier aus bestrahlten Uranproben mit einem Maximalabbrand von 21 GWd/Mg SM. Insgesamt sind nur 46 der 84 Positionen verfügbar. Eine davon ist für den Restwasserabsorber vorgesehen.

Drei weitere Behälter vom Typ CASTOR® KRB-MOX sind mit WWER-Brennelementen aus dem Kernkraftwerk Greifswald beladen. Diese Brennelemente sind in ihrer Geometrie und Integrität gestört. Die Brennelementteile sind in zusätzlichen Kanistern eingebracht. Bei der Trocknung wurde der Behälter CASTOR® KRB-MOX aufgrund der geringen Wärmeleistung der Brennstäbe zusätzlich beheizt.

Die Beladungsvarianten CASTOR® 440/84 mvK und CASTOR® KRB-MOX weisen niedrigere Nachzerfallswärmeleistungen sowie zusätzliche Barrieren der Brennstäbe auf. Daher ist die Behälterbeladungsvariante CASTOR® 440/84 mit defekten Brennstäben und Filterkerzen als konservativ und repräsentativ anzusehen.

3.1.3 Brennelemente aus Versuchs- und Forschungsreaktoren

An Versuchs- und Forschungsreaktorbrennelemente werden andere Anforderungen im Betrieb als an LWR-Brennelemente gestellt. Damit sind ihr geometrischer Aufbau und die Zusammensetzung durchweg anders geartet. Zumeist sind die Brennelemente mit hochangereichertem Uran versehen.

Im folgenden Kapitel werden die vorhandenen Spezifikationen der zu entsorgenden Forschungs- und Testreaktorbrennstoffe dargestellt. Die Datengrundlage für die Betrachtungen im Kapitel 3.2 ist für einige der FR-Brennelemente teilweise fehlend oder unvollständig. Der Vollständigkeit halber werden jedoch die vorhandenen Daten aller Forschungs- und Testreaktorbrennstoffe beschrieben. Bei mehrfach in der Literatur vorkommenden Datensätzen wurden immer die konservativeren Werte für die Betrachtungen herangezogen, um maximale Belastungen aus Aktivität und Nachzerfallswärmeleistung zu berücksichtigen.

3.1.3.1 Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor Jülich (AVR) und Thorium-Hochtemperaturreaktor (THTR)

Die Brennelemente aus dem AVR und aus dem THTR sind kugelförmig mit einem Durchmesser von ca. 6 cm. Sie bestehen aus einer im Zentrum liegenden Graphitmatrix mit einem Durchmesser von ca. 5 cm, die den Brennstoff in Form von bis zu ca. 40.000 kleiner beschichteter Partikel (coated particles) enthält, und einer äußeren ca. 5 mm dicken Graphitschale. Der äußere Bereich von etwa 5 bis 10 mm ist brennstofffrei und sorgt für die mechanische Stabilität und Abriebfestigkeit. Die beschichteten Partikel bestehen aus einem Brennstoffkern aus karbidischem oder oxidischem Uran sowie Thoriumverbindungen und den Brennstoffkern umgebenden Beschichtungen zur Rückhaltung der Spaltprodukte. Die Beschichtungen bestehen aus einer porösen Pufferschicht, die entweder mit zwei Schichten aus Pyrokohlenstoff (Bistructural Isotropic, BISO) oder zwei Schichten aus Pyrokohlenstoff mit eingefügter Siliciumcarbid-schicht (Tristructural Isotropic, TRISO) umgeben ist.

Die AVR-Brennelemente haben jeweils eine Gesamtmasse von 214 g und die THTR-Brennelemente von 203 g je Brennelement. Die 288.161 AVR-Brennelementkugeln lassen sich in verschiedene Brennstoffarten unterteilen, die sich nach ihrem Brenn- und Brutstoffgehalt in hoch und niedrig angereicherte Kugeln zusammenfassen lassen (siehe Tab. 3.3). Hoch angereicherte Brennelementkugeln (HEU-Brennelementkugeln) besitzen bei einem Gesamturananteil von 1,08 g einen Anfangsanreicherungsgrad von maximal 93 %, was einem Ausgangsbrennstoffgehalt an U-235 von ca. 1 g entspricht. Bei Kugeln mit niedrigem Anfangsanreicherungsgrad (LEU-Brennelementkugeln) von maximal 17 % beträgt Brennstoffmasse an U-235 etwa 1,4 g. Thorium ist jeweils der Brutstoff. Die HEU-Brennelementkugeln wurden bis auf maximal 194 GWd/Mg SM abgebrannt, der Abbrand der LEU-Brennelementkugeln schwankt dagegen stark, was auf unterschiedliche Betriebs- und Einsatzzeiten im Kern zurückzuführen ist.

Die 617.606 THTR-Brennelementkugeln weisen einen maximalen Abbrand von 114 GWd/Mg SM. Die Masse an U-235 pro Brennelementkugel beträgt 0,96 g bei einem maximalen Anfangsanreicherungsgrad von 93 % /JEN 19/, /DBE 11/, /BFS 16a/, /BFS 07/.

In Tab. 3.3 sind die Spezifikationen und Anteile der jeweils eingesetzten Brennelementkugeln tabellarisch gelistet.

Tab. 3.3 Spezifikationen und Anteile der eingesetzten AVR/THTR-Brennelementkugeln aus /DBE 11/, /BFS 93/, /BFS 16a/

HTI: high-temperature isotropic, LTI: low-temperature isotropic

BISO: Bistructural-Isotropic, TRISO: Tristructural-Isotropic

BE-Typ		Brennstoff	Partikel-Beschichtung	Brennstoff pro BE-Kugel [g]			Eingesetzter BE-Anteil [%]	
				U-235	U _{tot}	Th	AVR	THTR
Erstkern-BE		UC ₂ , ThC ₂	HTI-BISO	1,00	1,08	5	10,7	
Tapeten-BE		UC ₂ , ThC ₂	HTI-BISO	1,00	1,07	5	2,7	
Isostatisch gepresst	karbidisch	UC ₂ , ThC ₂	HTI-BISO	1,00	1,08	5	17,8	
	oxidisch	UO ₂ , ThO ₂	HTI-BISO LTI-BISO	1,00	1,08	5	32,2	
	THTR-BE	UO ₂ , ThO ₂	HTI-BISO	0,96	1,03	10,2	12,6	100
	Getrennte Abbrand und Brutpartikel	UO ₂ , ThO ₂	LTI-BISO LTI-BISO	1,00	1,08	10	7,2	
		UO ₂ , ThO ₂	LTI-TRISO LTI-BISO	1,00	1,08	10		
		UC ₂ , ThO ₂	LTI-TRISO LTI-BISO	1,00	1,08	5		
		UCO, ThO ₂	LTI-TRISO LTI-BISO	1,00	1,08	5		
	Oxidisch, niedrig angereichert	UO ₂	LTI-BISO	1,40	20	-	0,9	
		UO ₂	LTI-BISO	1,00	10	-	8,8	
		UO ₂	LTI-BISO	1,00	6	-	7,1	

Behälterbeladung

Die AVR-Brennelementkugeln sind in Edelstahl-Kannen zu je 950 Kugeln pro Kanne gefüllt. Die Kannen haben eine Wandstärke von 8 mm und sind mit einem Stopfen verschlossen, der durch eine Elastomerdichtung abgedichtet wird. Jeweils zwei Kannen sind in einem CASTOR® AVR/THTR übereinander eingebracht. Es gibt Kugeln, die mit Wasser in Kontakt gekommen sind und durch Gewichtsüberprüfung aussortiert und für die Zwischenlagerung speziell behandelt wurden. Da Wasserdampf Korrosion bewirken kann, wurden diese Kugeln in der Kanne mit Helium inertisiert und die Kannen gasdicht verschweißt /KRU 04/.

Von den THTR-Brennelementkugeln sind je 2.100 Kugeln in eine Edelstahl-Kanne eingebracht worden. Dabei ist diese Kanne etwa doppelt so groß wie die AVR-Kanne und besteht ebenfalls aus Edelstahl mit einer Wandstärke von 8 mm. Jeweils eine THTR-Kanne ist in einen CASTOR®-AVR/THTR eingestellt. Die THTR-Kannen sind ebenfalls mit einem Stopfen ver-

geschlossen, der in diesem Fall jedoch mit einer Quetschkupferdichtung abgedichtet ist /FZJ 11/, /BUN 16/, /BFS 16a/, /DBE 11/.

In Tab. 3.4 ist die Nachzerfallswärmeleistung und Aktivität für jeweils eine THTR- und in Tab. 3.5 für jeweils eine AVR-Brennelementkugel und eine Kanne gelistet und der Vergleich der Kannen ist in Abb. 3.5 und Abb. 3.6 dargestellt.

Tab. 3.4 THTR-Brennelementkugeln: Nachzerfallswärmeleistung und Aktivität für eine Brennelementkugel und eine THTR-Kanne mit 2.100 Brennelementkugeln
/GRS 99/, /GES 11/

Abklingzeit [a]	1	3	5	7	10	32	40	100
THTR-Brennelementkugel, 112 GWd/Mg SM, 11,23 g SM								
Leistung [W]	3,0E-01	1,1E-01	7,3E-02	5,9E-02	4,9E-02	2,8E-02	2,4E-02	7,8E-03
Aktivität [Bq]	2,6E+12	1,0E+12	7,2E+11	6,1E+11	5,3E+11	3,0E+11	2,4E+11	6,2E+10
THTR-Kanne, 112 GWd/Mg SM, 23,6 kg SM								
Leistung [W]	6,4E+02	2,4E+02	1,5E+02	1,2E+02	1,0E+02	6,0E+01	5,1E+01	1,6E+01
Aktivität [Bq]	5,6E+15	2,2E+15	1,5E+15	1,3E+15	1,1E+15	6,2E+14	2,1E+14	1,3E+14

Tab. 3.5 AVR- Brennelementkugeln: Nachzerfallswärmeleistung und Aktivität für eine Brennelementkugel und eine AVR-Kanne mit 950 Brennelementkugeln
/GRS 99/, /GES 11/

Abklingzeit [a]	0	10	13	20	30	50	70	100
AVR-Brennelementkugel, 194 GWd/Mg SM, 6,08 g SM								
Leistung [W]	3,7E-01	4,0E-02	3,7E-02	3,2E-02	2,5E-02	1,6E-02	1,0E-02	5,6E-03
Aktivität [Bq]	1,6E+12	2,4E+11	2,2E+11	1,9E+11	1,5E+11	9,3E+10	5,8E+10	2,9E+10
AVR-Kanne, 194 GWd/Mg SM, 5,8 kg SM								
Leistung [W]	3,5E+02	3,8E+01	3,5E+01	3,0E+01	2,4E+01	1,5E+01	9,9E+00	5,4E+00
Aktivität [Bq]	1,5E+15	2,3E+14	2,1E+14	1,8E+14	1,4E+14	8,8E+13	5,5E+13	2,8E+13

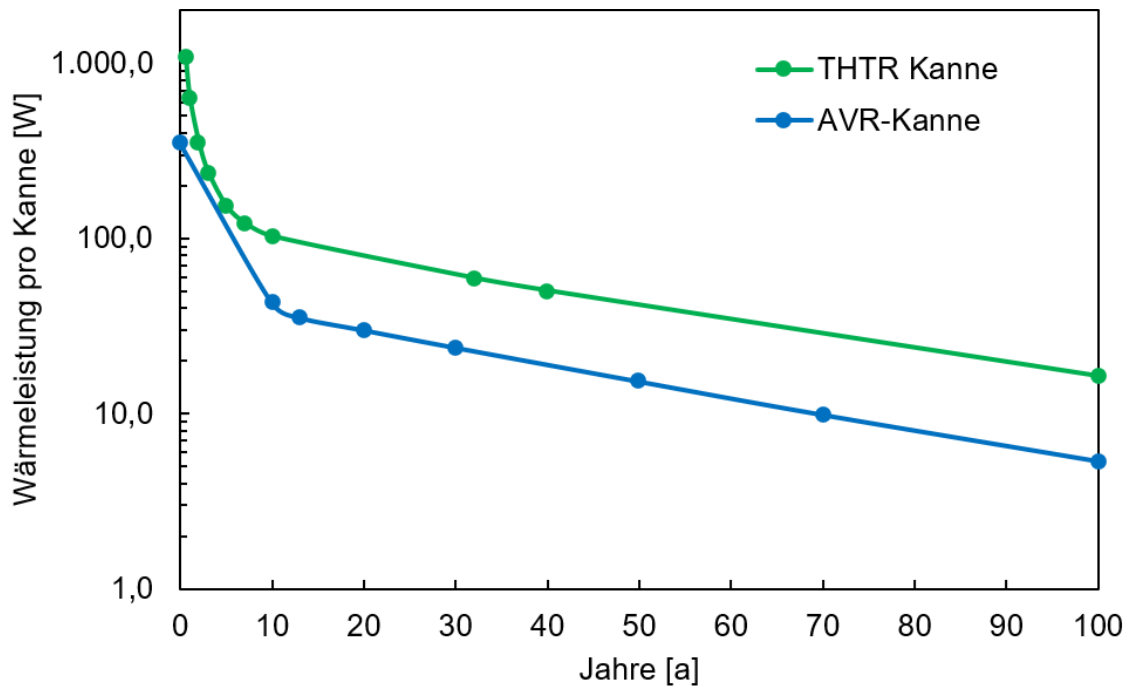


Abb. 3.5 Wärmeleistung einer AVR- (Blau) und THTR-Kanne (Grün) mit 950 bzw. 2.100 Brennelementkugeln bei einem Abbrand von 194 bzw. 112 GWd/Mg SM

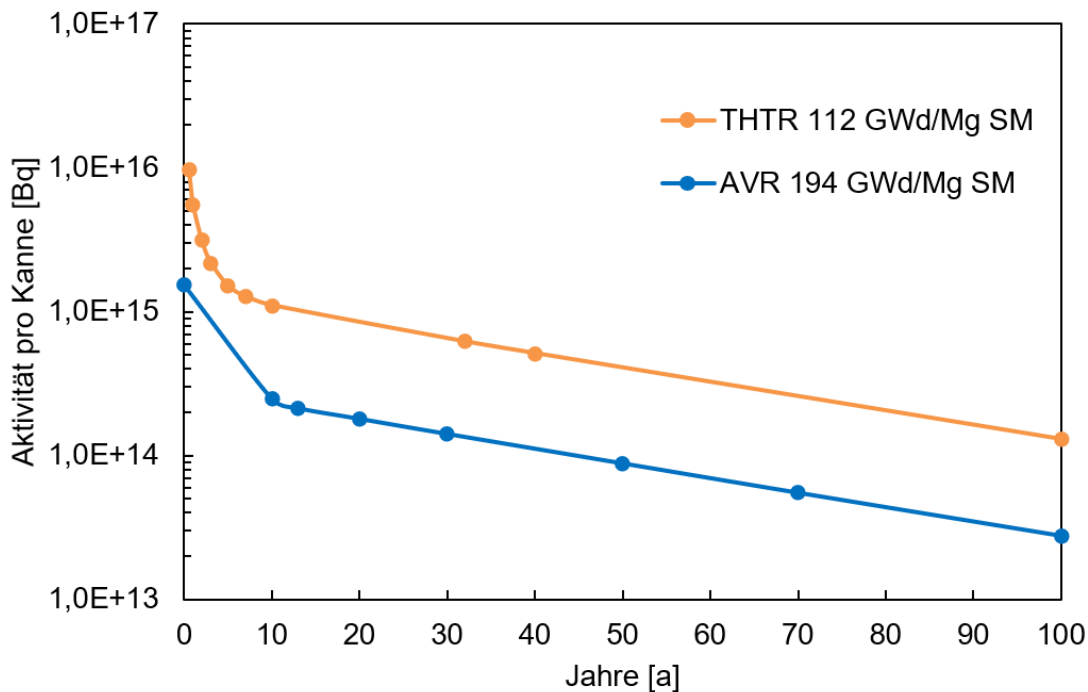


Abb. 3.6 Aktivität einer AVR- (Blau) und THTR-Kanne (Grün) mit 950 bzw. 2.100 Brennelementkugeln bei einem Abbrand von 194 bzw. 112 GWd/Mg SM

Die Wärmeleistung einer AVR-Brennelementkugel ist trotz des höheren Abbrandes im Vergleich zu einer THTR-Brennelementkugel im gelisteten Zeitraum von 100 Jahren geringer. Der Grund dafür ist, dass eine AVR-Brennelementkugel rund um die Hälfte weniger Brennstoff als

eine THTR-Brennelementkugel enthält. Umgerechnet auf ein Mg SM liegt die Wärmeleistung der AVR-Brennelementkugeln um einen Faktor von rund 1,5 höher als die der THTR-Brennelementkugeln. Im Gegensatz dazu ist die Aktivität pro Mg SM bei den AVR-Brennelementkugeln um rund 10 % niedriger als bei den THTR-Brennelementkugeln.

Bringt man die Abklingzeit von etwas über 30 Jahren Lagerzeit seit der Stilllegung des THTR (1989) und AVR (1988) in den Ansatz, so ergibt sich für einen CASTOR® AVR/THTR derzeit eine Wärmeleistung von 50 bis 60 Watt. Aus dieser Leistung heraus werden keine signifikanten Temperaturen erwartet, welche eine für Hochtemperaturen ausgelegte Brennelementkugel oder eine 6,3 mm (AVR) bzw. 8 mm (THTR) starke Edelstahlwandung beeinträchtigen /NIE 99/. Auch in der Literatur wird die Nachwärmeerzeugung der üblicherweise über vier Jahre und länger abgeklungenen AVR-Brennelementkugeln auf 100 W pro beladener AVR-Kanne abgeschätzt, was zu Oberflächentemperaturen der Kanne von höchstens 36 °C führt /KFA 87/. Von weiteren thermischen Analysen wurde daher abgesehen, und die Betrachtungen werden argumentativ fortgeführt.

3.1.3.2 FRM II

Ein Brennelement des FRM II ist ein Hohlzylinder aus zwei konzentrisch angeordneten Tragrohren von 132,6 cm Länge, 24,3 cm Durchmesser und einem Gesamtgewicht von 53 kg. Es enthält 8,106 kg U_{tot} , mit einer Anfangsanreicherung von 93 % (7,538 kg U-235). Der verwendete Brennstoff mit 0,6 mm Mächtigkeit ist eine U_3Si_2 -Al Dispersion, die zwischen zwei Deckblechen aus einer Aluminiumlegierung (AlFeNi) mit je 0,38 mm Dicke fest eingewalzt ist. Der Rahmen des Brennelements besteht aus $AlMg_2$ (DIN 3.3525). Ein Brennelement enthält 113 solcher Brennstoffplatten, die zwischen einem Innen- und einem Außenrohr mit Durchmessern von 118 mm bzw. 237 mm montiert sind. Die Brennstoffdichte der insgesamt 1,36 mm dicken Platten ist im äußeren Teil auf 1,5 g/cm³ im Vergleich zu 3 g/cm³ in der restlichen Platte verringert. Die Platten sind in eine Evolventenform gebogen mit einer Kühlschlitzbreite von 2,3 mm.

In einem abgebrannten Brennelement, d. h. nach 52 Volllasttagen (1040 MWd), sind noch rund 7,015 kg U_{tot} enthalten, davon 6,221 kg U-235. Das entspricht einer verbleibenden Anreicherung von 88,7 % bei einem Abbrand von 128,3 GWd/Mg SM. Im abgebrannten Zustand sind neben dem Uran noch rund 9,7 g Pu_{tot} (8,8 g Pu_{fiss}) und 4,5 g Np pro Brennelement enthalten /TEC 19/, /TÜV 00/, /BAY 15/. In Tab. 3.6 ist die Nachzerfallswärmeleistung sowie die Aktivität bis 100 Jahre Abklinglagerung gelistet /GES 11/.

Tab. 3.6 FRM II-Brennelemente: Nachzerfallswärmeleistung und Aktivität pro BE mit 128 GWd/Mg SM Abbrand für einen Abklingzeitraum bis 100 Jahre

Abklingzeit [a]	5	10	15	20	30	50	75	100
UO ₂ , 128 GWd/Mg SM, 8,1 kg SM								
Leistung [W]	5,2E+01	3,3E+01	2,8E+01	2,5E+01	1,9E+01	1,2E+01	6,9E+00	3,9 E+00
Aktivität [Bq]	3,0E+14	3,0E+14	-	-	-	-	-	2,3E+13

3.1.3.3 Forschungsreaktor BER II

Ein Brennelement des BER II ist in der Grundform kastenförmig mit einer Länge von 874 mm, einem 81 x 77 mm großen Querschnitt und besitzt im Inneren ebene Brennstoffplatten. Die niedrig angereicherten Brennelemente bestehen aus U₃Si₂-Al Dispersion mit einer Anfangsanreicherung von 19,75 % U-235 bei 1,673 kg U_{tot}. Der Brennstoff ist in den Platten als dünne Schicht auf einem Aluminiumrahmen mit Aluminiumdeckplatten zusammengewalzt. Die Brennstoffplatten sind insgesamt 1,36 mm stark und bestehen aus einer Aluminiumhülle von jeweils 0,38 mm und einer 0,6 mm mächtigen Brennstoffschicht.

In Tab. 3.7 ist die Nachzerfallswärmelistung sowie die Aktivität bis 50 Jahre Abklinglagerung gelistet. Der maximale Abbrand der Brennelemente liegt bei 111,78 GWd/Mg SM. Die minimale Abklingzeit vor der Beladung der Behälter ist mit 4,5 Jahren angegeben /DBE 11/, /SCH 11/, /DEU 11/.

Tab. 3.7 BER II Brennelemente: Nachzerfallswärmeleistung und Aktivität pro Brennelement mit 112 GWd/Mg SM Abbrand für einen Abklingzeitraum bis 50 Jahre /GES 11/

Abklingzeit [a]	5	10	20	30	40	50
U ₃ Si ₂ -Al Dispersion, 128 GWd/Mg SM, 1,67 kg SM						
Leistung [W]	5,3E+00	3,4E+00	2,6E+00	2,1E+00	1,5E+00	8,0E-01
Aktivität [Bq]	1,1E+14	7,6E+13	5,4E+13	4,1E+13	2,5E+13	7,8E+12

3.1.3.4 Forschungsreaktor Mainz (FR MZ)

Die Brennelemente des FR MZ haben eine Länge von 733 mm und einen Durchmesser von 38,5 mm. Die Brennelemente bestehen aus zwei unterschiedlichen Hüllrohrmaterialien – Aluminium und Edelstahl – mit einer Mächtigkeit von 0,76 bzw. 0,51 mm. Der Brennstoff UZrH_x, besteht aus einer homogenen Mischung aus 8 Gew. % Uran, 91 Gew. % Zirkon und 1 Gew. % Wasserstoff. Die Brennelemente haben je nach Hüllrohrmaterial eine unterschiedliche Anfangsanreicherung von 21,8 % oder 20,6 % U-235 (Aluminium und Edelstahl). Der maximale Abbrand der Brennelemente liegt bei 24,9 GWd/Mg SM /DBE 11/, /INS 12/. Die Nachzerfallswärmeleistung eines Brennelementes ist mit maximal 0,35 W vor der Beladung angegeben.

Behälterbeladung der abgebrannten Brennelemente der FRM II, BER II und des FR MZ

Die abgebrannten Brennelemente der FRM II, BER II und des FR MZ werden jeweils in Behälter des Typs CASTOR® MTR3 eingestellt.

Seit dem Beginn des Betriebes des FRM II im Jahr 2002 sind noch keine abgebrannten Brennelemente in einen CASTOR® MTR3 verpackt worden. Die Dauer der Abklinglagerung beträgt damit bis zu 20 Jahre. Ein CASTOR® MTR3 kann mit bis zu fünf FRM II Brennelementen beladen werden. Bei einer Abklinglagerung von mindestens 6,5 Jahren liegt die Wärmeleistung eines Behälters bei weniger als 300 Watt.

Es werden insgesamt drei Behälter vom Typ CASTOR® MTR3 für die 66 Brennelemente des BER II benötigt. Demnach ergibt sich rechnerisch bei der angegebenen minimalen Abklingzeit der Brennelemente von 4,5 Jahren vor der Beladung der Behälter eine Wärmeleistung eines Behälters von rund 120 Watt.

Insgesamt werden alle 89 Brennelemente des FR MZ in einen Behälter vom Typ CASTOR® MTR3 verpackt werden. Die Behälterwärmeleistung beträgt demnach bei der Beladung maximal 31 Watt.

Alle hier dargestellten Wärmeleistungen sind äußerst gering im Vergleich zu denen der kommerziellen Brennelemente und lassen geringe Temperaturen erwarten. Für die nachfolgenden thermischen Analysen zum Inventarverhalten im Kapitel 3.2.3 wird aufgrund der höchsten Wärmeleistung exemplarisch die Beladung eines CASTOR® MTR3 mit FRM II-Brennelementen betrachtet.

3.1.3.5 Rossendorfer Forschungsreaktor (RFR)

Aus dem RFR des sowjetischen Typs WWR-S (M/M2) verbleiben zur Endlagerung in der Summe 951 Brennelemente unterschiedlichen Typs, welche in insgesamt 18 CASTOR® MTR2 zwischen März 1999 und November 2000 eingelagert und seit 2005 im Transportbehälterlager Ahaus zwischengelagert sind /VKT 19/.

Von den 951 Brennelementen sind 148 Brennelemente vom Typ EK-10, welche bis 1965 im RFR eingesetzt worden sind. Ab 1965 sind im RFR Brennelemente mit höherer Anreicherung und anderer Geometrie eingesetzt worden. Weitere 725 Brennelemente bestehen aus 269 einfach-Brennelementen und 456 dreifach-Brennelementen des Typs WWR-M. Die verbleibenden 78 Brennelemente setzen sich aus 42 einfach-Brennelementen und 36 dreifach-Brennelementen des Typs WWR-M2 zusammen.

Brennelement Typ EK-10

Das EK-10 Brennelement hat einen quadratischen Querschnitt, wobei die Brennstabanordnung mit einem Al-Blechgehäuse umfasst ist. Die Masse eines einzelnen Brennelements beträgt 3,25 kg. Das Brennelement besteht aus insgesamt 16 einzelnen Brennstäben mit jeweils 0,17 kg Masse. Die Brennstäbe bestehen aus Pellets mit einer UO_2 -Mg Brennstoffmatrix und haben einen Anteil von 13 Gew. % Mg. Der UO_2 -Mg Dispersionsbrennstoff ist in eine 1,5 mm starke Aluminium-Umschließung eingebettet. Die Anfangsanreicherung von U-235 beträgt 10 % bei einem Gewicht von 1,2875 kg Uran. Der maximale Abbrand ist mit 30,7 GWd/Mg SM beziffert, der mittlere Abbrand liegt bei 14,2 GWd/Mg SM.

Zum Zeitpunkt der Beladung lag die Nachzerfallswärmeleistung bzw. Aktivität der Brennelemente bei maximal 0,66 W (im Mittel 0,35 W) bzw. maximal $7,61\text{E}12$ Bq (im Mittel $4,1\text{E}12$ Bq). Vor der Beladung der Behälter ist eine minimale Abklingzeit von 31 Jahren angegeben /BFS 16b/, /LAN 98/, /GES 98/, /GES 95/, /BUN 97/, /DBE 11/, /BUN 05/, /CHW 01/.

Brennelement Typ WWR-M/M2

Die WWR-M-Brennelemente haben einen hexagonalen Querschnitt und sind als Einzelelement oder im Verbund von drei Brennelementen vorhanden. Die Masse eines einzelnen Brennelements beträgt 1,03 kg bei einfach-Brennelementen und 3,03 kg bei dreifach-Brennelementen. Diese setzen sich aus insgesamt drei bzw. neun sog. Brennstoffrohren zusammen. Die UO_2 -Al-Brennstoffmatrix besteht aus jeweils ca. 50 Gew. % UO_2 und Al (ca. 82 Vol. % Al und 18 Vol. % UO_2). Der UO_2 -Al-Dispersionsbrennstoff ist in eine 0,9 mm starke Aluminium-Umschließung eingebettet. Die Anfangsanreicherung von U-235 beträgt für die WWR-M Brennelemente 37,3 % und für die WWR-M2-Brennelemente 36,6 % bei einem Gewicht von 112,5 g und 124,9 g Uran.

Die maximalen Abbrände sind mit 261,6 GWd/Mg SM für einige wenige WWR-M-Brennelemente angegeben, der Mittelwert liegt bei ca. 130 GWd/Mg SM. Für die WWR-M2-Brennelemente liegen die Abbrände bei maximal 92,9 GWd/Mg SM. Zum Zeitpunkt der Beladung lag die Nachzerfallswärmeleistung bzw. Aktivität bei maximal 1,83 W bzw. $2,16\text{E}13$ Bq. Vor der Beladung der Behälter ist eine minimale Abklingzeit von elf bzw. 6,9 Jahren für die WWR-M- und WWR-M2-Brennelemente angegeben /BFS 16b/, /LAN 98/, /GES 98/, /GES 95/, /BUN 97/.

Behälterbeladung

Der CASTOR® MTR2 besitzt sieben Tragkorbpositionen. Jede dieser Positionen kann mit bis zu 21 Brennelemente des WWR-M1/2-Typs oder vier Brennelemente des EK-10-Typs bela-

den sein. Insgesamt sind fünf der 18 Behälter ausschließlich mit EK-10-Brennelementen beladen. Zwei Behälter haben eine Mischbeladung aus EK-10 und WWR-M-Brennelementen, die verbleibenden elf Behälter sind ausschließlich mit WWR-M-Brennelementen beladen. Die Nachzerfallswärmeleistung der Behälter zum Zeitpunkt der Beladung lag zwischen 7 und 62 Watt, wobei die Behälter nur mit EK-10-Brennelementen maximal 12,7 Watt erreichen. Die Beladung der CASTOREN fand trocken mit Hilfe einer speziellen Beladevorrichtung statt.

Zum Zeitpunkt der Verpackung im Jahr 2000 lag die mittlere Wärmeleistung eines bestrahlten Brennelementes bei 0,8 Watt bei einer Gesamtaktivität von etwa 9 TBq. Für den CASTOR® MTR2 wurden damit etwa 40 Watt und 500 TBq kalkuliert /GES 11/.

Ausgehend von den sehr geringen Wärmeleistungen und in Verbindung mit den Vorbetrachtungen werden keine signifikanten Temperaturen und thermischen Effekte erwartet, die die Umschließung der RFR-Brennelemente gefährdet. Aus diesem Grund und aufgrund der der unüblichen Geometrie werden keine weiteren thermischen Analysen für die RFR-Brennelemente in Kapitel 3.2 vorgenommen. Eine weitere Betrachtung wird argumentativ fortgeführt.

3.1.3.6 KNK II (Kompakte Natriumgekühlte Kernreaktoranlage)

Bestrahlte Brennelemente des Brutreaktors KNK II wurden zur Wiederaufarbeitung an das Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Energies Alternatives (CEA) nach Marcoule (Frankreich) und zum Forschungszentrum Mol (Belgien) abgegeben, nachdem sie vorher in den Heißen Zellen des Kernforschungszentrums Karlsruhe zerlegt und die Brennstäbe in Büchsen verpackt worden waren. Eine Teilmenge dieser Brennelemente (2.416 Brennstäbe aus 27 unterschiedlichen Brennelementen aus Cadarache und 68 bestrahlte und drei unbestrahlte Brennstäbe aus dem Forschungszentrum Mol) konnte nicht wiederaufgearbeitet werden. Die Lagerung der nicht aufgelösten Brennstäbe erfolgte in Cadarache, bis sie im Dezember 2010 in vier Behältern des Typs CASTOR® KNK zurück nach Deutschland zur Zwischenlagerung im ZLN transportiert wurden /ELL 10/, /KER 19/, /BUN 10/, /DBE 11/. Die Nachzerfallswärmeleistung und Aktivität des Behälters mit den höchsten Werten sind in Tab. 3.8 gegeben und liegen nur bis 50 Jahre Lagerzeit vor.

Tab. 3.8 Nachzerfallswärmeleistung und Aktivität für einen CASTOR® KNK mit den KNK II und OH-Brennelemente für eine Zeitdauer von 50 Jahren nach der Einlagerung /GES 11/

Lagerzeit [a]	10	20	30	40	50
Leistung [W]	3,7E+02	3,5E+02	3,3E+02	3,1E+02	3,0E+02
Aktivität [Bq]	2,4E+15	1,8E+15	1,3E+15	1,0E+15	8,2E+14

KNK II - Testelemente

Insgesamt 2.400 Brennstäbe wurden aus den Testelementen entnommen und weisen UO_2 Brutstoff unter- und oberhalb einer UO_2 - PuO_2 -Brennstoffzone auf. Die Anfangsanreicherung beträgt maximal 93 % an U-235 und 83 % Pu_{fiss} . Die Abbrände der Testelemente liegen zwischen 2,9 und 137 GWd/Mg SM. Die Länge eines Brennstabs beträgt 1557 bzw. 1562 mm mit einer Hüllrohrmächtigkeit von 0,76 bzw. 1 mm. Das Hüllrohrmaterial ist austenitischer Stahl 1.4970.

KNK II - Treiberelemente

Weitere sechzehn Brennstäbe aus KNK II wurden aus den Treiberelementen entnommen. Fünfzehn Brennstäbe enthalten Moderatormaterial und ausschließlich UO_2 als Brennstoff. Ein Brennstab enthält kein Moderatormaterial. Der Brennstoff hat eine Anfangsanreicherung von maximal 59 % U-235. Die Abbrände der Treiberelemente liegen bei maximal 47,9 GWd/Mg SM. Die Länge eines Brennstabs beträgt 1372 mm und das Hüllrohr ist 1 mm mächtig und besteht aus austenitischem Stahl 1.4981 bzw. 1.4988.

Mol - Testelement

Die 49 Brennstäbe aus den Nuklearexperimenten in Mol entstammen ursprünglich aus einem Testelement der KNK II. Die Spezifikationen sind die gleichen wie oben beim KNK II-Testelement angegeben. Die Abbrände liegen hier bei maximal 11 GWd/Mg SM.

Mol - Unbestrahlte Brennstäbe

Drei unbestrahlte Brennstäbe stammen aus den Experimenten MOL 11 A und MOL 11 C und bestehen aus Uran- und Plutoniumkarbid. Die Brennstäbe haben eine Länge von 1022 mm und eine Hüllrohrmächtigkeit von 0,76 mm, bestehend aus austenitischem Stahl 1.4970.

Mol - Testelement Mol 7C7

Das Testelement Mol 7C7 besteht aus 19 hexagonal angeordneten Brennstäben sowie einer sog. aktiven Blockade aus Uran mit 90 % U-235 und enthält als Brennstoff UO_2 und PuO_2

sowie UO_2 als Brutstoff. Die Brennstäbe haben eine Länge von 1.562 mm mit einer Hüllrohrmächtigkeit von 0,76 mm. Das Hüllrohrmaterial ist austenitischer Stahl 1.4970. Die Brennstäbe des Testelementes Mol 7C7 sind von einem Hüllkasten von 1.590 mm Länge und 3 mm Wandstärke aus austenitischem Stahl 1.4970 umschlossen

Das Beladeschema für die KNK II ist zusammen mit dem Beladeschema der Brennstäbe des Nuklearschiffes Otto Hahn im nächsten Absatz dargestellt.

3.1.3.7 Otto Hahn

Das Nuklearschiff Otto Hahn wurde im Jahr 1979 stillgelegt. Die Brennstäbe wurden bis 1979 zur Wiederaufarbeitung zur WAK (Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe) verbracht. 52 Brennstäbe hingegen verblieben zunächst bei dem ehemaligen Betreiber des Schiffs. Im Juli 2010 wurden diese in das französische Forschungszentrum des CEA in Cadarache transportiert, um von dort im Dezember 2010 zusammen mit abgebrannten Brennstäben aus der KNK II des ehemaligen Kernforschungszentrums Karlsruhe in vier Behältern im Rahmen des KNK-Rücktransportes aus Cadarache in das ZLN eingelagert zu werden. Sie sind in einem der vier CASTOR® KNK-Behälter mit enthalten.

Von den 52 Brennstäben sind drei unbestrahlt. Die restlichen 49 Brennstäbe entstammen ausschließlich aus dem zweiten Kern des ersten (1972 bis 1975) und zweiten (1976 bis 1979) Zyklus. Diese Brennstäbe bestehen ausschließlich aus UO_2 mit Anfangsanreicherungen von maximal 6,6 % an U-235. Die Abbrände belaufen sich auf 12,5 bis 22,0 GWd/Mg SM. Die Abmessungen der Brennstäbe reichen von einer Gesamtlänge von 984,5 bis 991,4 mm sowie einem Außendurchmesser von 14,3 bis 11,4 mm. Die Hüllrohre der Brennstäbe haben eine Wandstärke von 0,72 mm und bestehen aus den Zirkon-Legierungen Zircaloy-2, Zircaloy-4 und Zr3.0NbSn . Ein Brennstab ist 1.260 mm lang und dessen Hüllrohr besteht aus einer CrN-iNb-Stahllegierung. Zusätzlich zu den 52 Brennstäben ist eine Stahldose mit Brennstab- und Hüllrohrabschnitten, Pellets und Pelletbruchstücken mit in der OH-Büchse verpackt. Acht Brennstäbe enthalten zusätzlich eingebettete UB_4 -Teilchen mit einem Anteil von 0,7 Gew. %, sowie Natururan welches jeweils unter- und oberhalb der Brennstoffzone anschließt. Einige der Brennstäbe enthalten zylindrischen, borierten Graphit innerhalb der hohlzylindrischen Brennstoffpellets. Die Brennstoffdichte beträgt bei allen Brennstäben rund $10,4 \text{ g/cm}^3$ /BUN 18/, /BUN 10/, /GKS 81/, /DBE 11/.

Beladungsschema

Alle intakten und gekapselten Brennstäbe aus der KNK II und den Nuklearexperimenten in Mol sind in Büchsen vom Typ KfK bzw. CEA verpackt, die wiederum in insgesamt 35 Phenix-Büchsen dicht eingeschweißt sind. Die nahezu baugleichen KfK- und CEA-Büchsen wurden zur Trocknung perforiert, in die 35 Phenix-Büchsen verpackt und dicht eingeschweißt. Die Phenix-Büchsen mit einer Höhe von 1.974 mm und einem Durchmesser von 118 mm bestehen aus nichtrostendem Stahl (1.4565) mit einer Wandstärke von 5 mm. Das Leergewicht beträgt 34 kg.

Die 52 Brennstäbe und eine Stahldose mit Brennstababschnitten des Nuklearschiffes Otto Hahn befinden sich dicht in einer OH-Büchse eingeschweißt. Diese Büchse hat eine Höhe von 1.974 mm und einen Durchmesser von 139,7 mm, besteht aus nichtrostendem Stahl (1.4306) mit einer Wandstärke von 4 mm und einem Leergewicht von 30 kg.

Im CASTOR® KNK Behälter sind die dicht verschweißten Phenix-Büchsen und die eine OH-Büchse als erste Barriere anzusehen /BUN 10/, /DBE 11/, /VAL 07/, /GRA 06b/

Der Behälter CASTOR® KNK ist für eine maximale Wärmeleistung von 450 Watt und eine Gesamtaktivität von $3E+15$ Bq ausgelegt /EWN 20/.

Trotz der im Vergleich zu den vorhergehenden Forschungsreaktorinventaren höheren Wärmeleistung eines CASTOR® KNK, werden die Beladevarianten aufgrund der Heterogenität der KNK II Brennstäbe und Beladungen sowie der multiplen Barrieren der einzelnen Brennstäbe nicht weiter für die thermischen Analysen in Kapitel 3.2.3 betrachtet. Eine weitere Betrachtung wird argumentativ fortgeführt.

3.1.4 Verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung

Bei den hochradioaktiven Abfällen aus der Wiederaufarbeitung handelt es sich um verglaste Spaltproduktlösungen mit einer chemischen und radiologischen Heterogenität des Abfallstroms. Deutschland hat sowohl verglaste hochradioaktive Abfälle aus der Wiederaufarbeitung in Frankreich und Großbritannien zurückgenommen als auch eigene Abfälle in der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe produziert. Das erzeugte Glasprodukt wird in Edelstahlkokillen mit einer Höhe von 1.340 mm, einem Außendurchmesser von 430 mm und einer Wandstärke von 5 mm abgefüllt. Bei einem Kokillenvolumen von 180 l sind ca. 150 l mit Glas befüllt. Das Gesamtgewicht einer Kokille beläuft sich auf ca. 490 kg /COG 86/. Eine Ableitung des Inventars aus Abbrandrechnungen ist nicht möglich. Es besteht die Verpflichtung, dass nach Deutschland gelieferte CSD-V alle Garantiewerte einhalten. Für die CSD-V aus Frankreich beträgt die

garantierte Wärmeleistung pro Kokille bei Abfertigung 2,0 kW, für die Kokillen aus Karlsruhe betrug die garantierte Wärmeleistung 0,73 kW /ELL 10/. In der Tab. 3.9 sind die Nachzerfallsleistung sowie die Aktivität einer Glaskokille bis 100 Jahre nach Herstellung angegeben.

Tab. 3.9 Nachzerfallswärmeleistung und Aktivität einer Glaskokille (CSD-V) /GES 11/

Abklingzeit [a]	0	5	10	20	30	50	70	100
Leistung [W]	3000	1487	1200	924	729	466	302	166
Aktivität [Bq]	2,9E+16	1,7E+16	1,4E+16	1,1E+16	8,3E+15	5,2E+15	3,2E+15	1,6E+15

Beladeszenarien

Für die Rückführung und Zwischenlagerung der CSD-V wurden bisher TS 28 V, TN 85 Behälter sowie zum überwiegenden Teil Behälter vom Typ CASTOR® HAW 20/28CG oder CASTOR® HAW28M verwendet. Die zulässige Wärmeleistung des CASTOR® HAW28M-Behälters beträgt 56 kW bei einer maximalen Beladung mit 28 Kokillen. Der CASTOR® HAW 20/28CG kann ebenfalls mit 28 Kokillen beladen werden, die maximale Wärmeleistung beträgt 46 kW. Aufgrund der Temperaturabhängigkeit vieler Effekte, sowohl während der Zwischenlagerung als auch in der Endlagerung, stellt eine Behälterbeladung mit den maximal möglichen Ausgangswärmeleistungen sowohl den repräsentativen als auch ungünstigen Fall dar.

3.2 Betrachtungen zum Inventarverhalten

In diesem Kapitel wird das Verhalten der unterschiedlichen Inventare während des Zeitraums der verlängerten Zwischenlagerung genauer analysiert und mit Hilfe von (vereinfachten) Modellbetrachtungen thermische Analysen für die zeitliche Entwicklung wichtiger Parameter mit Potenzial für mögliche Auswirkungen auf die Barrierenfunktion (wie z. B. die Umfangsspannung bei DWR-Brennelementen) und somit ggf. auch im Hinblick auf die Radionuklidmobilität im Endlager durchgeführt. Die Bearbeitung erfolgte iterativ mit den Arbeiten im Kapitel 4.

Für die DWR-Brennelemente werden die Programme COBRA-SFS /PER 19/ und Tespa-Rod /SON 17/ eingesetzt, da hier aufgrund vielfältiger Untersuchungen bereits entsprechende Datensätze zur Verfügung stehen und viele physikalische und materialtechnische Modelle implementiert sind. Für die weiteren Inventare wurden aufgrund der schlechteren Ausgangslage (teilweise) vereinfachte Modelle verwendet. Das vereinfachte Behältermodell ist ein semi-analytisches Modell zur Berechnung von Temperaturfeldern innerhalb eines TLB. Als Vereinfachung werden alle Behälterstrukturen, das Inventar und der Behältermantel in diskrete Zonen aufgeteilt. Innerhalb dieser Zonen werden alle Materialparameter homogenisiert. In diskreten

Zeitintervallen wird der Wärmeaustausch zwischen den Zonen und der Umgebung ermöglicht. Hierbei wird lediglich der Wärmeaustausch in radialer Richtung berücksichtigt. Das Modell ermöglicht die Berechnung der Behältertemperatur unter statischen („steady-state“) Bedingungen, d. h. mit konstanter Wärmequellenstärke und Umgebungstemperatur.

3.2.1 LWR-Brennelemente

Die Analyse des Inventarverhaltens für LWR-Brennelemente erfolgt gemäß den Ausführungen in Kapitel 3.1.1, d. h. eine homogene und zwei heterogene Beladungen des CASTOR® V/19 mit DWR-Brennelementen werden näher untersucht. Die Beladevarianten stellen sich wie folgt dar und sind in Abb. 3.7 noch einmal schematisch dargestellt:

- *Homogene Beladung:* 19 UO₂-Brennelemente; max. Abbrand 55 GWd/Mg SM; max. Wärmeleistung 2,05 kW/Brennelement zum Beladezeitpunkt (entspr. fünf Jahren Abklingzeit)
- *Heterogene Beladung:* Vier Hochabbrand-UO₂-Brennelemente auf den Positionen 6 bis 7, 13 bis 14; max. Abbrand 65 GWd/Mg SM mit max. Wärmeleistung 2,65 kW/Brennelement übrige UO₂ Brennelemente mit 1,83 kW/Brennelement zum Beladezeitpunkt (entspr. fünf Jahren Abklingzeit)
- *Heterogene Beladung:* Sechs MOX-Brennelemente auf den Positionen 6, 7, 9, 11, 13 und 14 max. Wärmeleistung mit 2,1 kW/Brennelement (entspr. zehn Jahren Abklingzeit) übrige UO₂-Brennelemente mit 2,1 kW/Brennelement; zentrales UO₂-Brennelement mit 1,2 kW/Brennelement zum Beladezeitpunkt (entspr. fünf Jahren Abklingzeit).

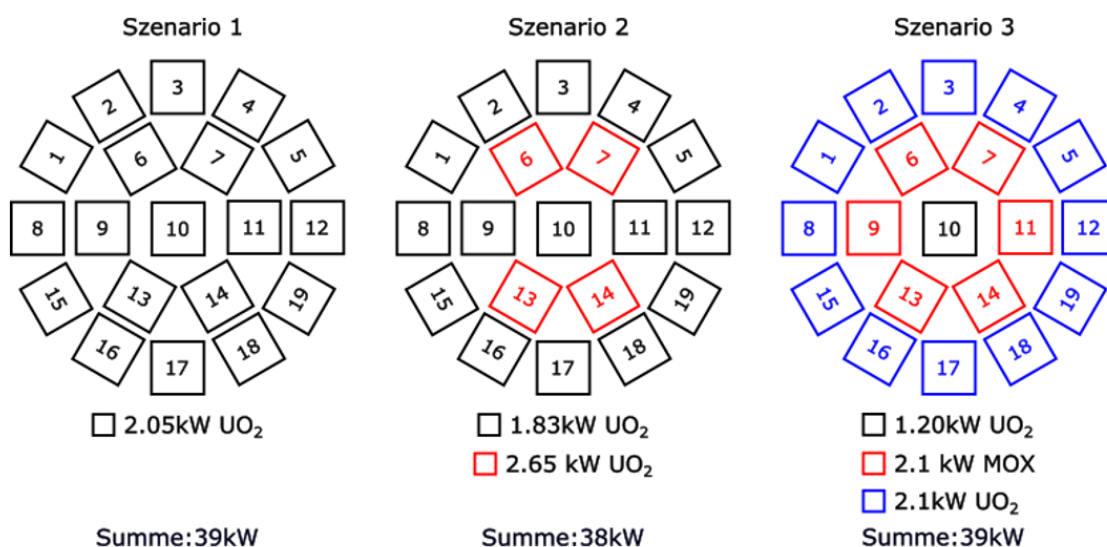


Abb. 3.7 Darstellung der drei Szenarien für die Beladung eines generischen CASTOR® V/19 mit BE

Bezüglich der angewandten Methodik wird eine Kopplung vorgenommen zwischen

- den in Kapitel 3.1.1 dargestellten Abbrand- bzw. Nachzerfallsleistungsberechnungen,
- den thermischen Analysen mit dem Code COBRA-SFS /PER 19/ für ein generisches Behältermodell, angelehnt an den CASTOR® V/19, zur Berechnung der maximalen Hüllrohrtemperaturen der Brennelemente 10 (zentrales Element), 6 (im inneren Ring) und 2 (im äußeren Ring) gemäß Abb. 3.7 und
- den Spannungs- und Dehnungsrechnungen mit dem Brennstabcode Tespa-Rod /SON 17/.

Tespa-Rod /SON 17/ benötigt zusätzliche Eingabeparameter, u. a. den Abbrand, die Oxidschichtdicke und den Wasserstoffgehalt. Diese Parameter variieren erfahrungsgemäß in Abhängigkeit der Position im Brennstab. In Tespa-Rod wird dies durch eine Aufteilung des Brennstabs in axiale Zonen berücksichtigt. Die axiale Variation der Eingangsparameter der hier diskutierten Simulationen orientieren sich jeweils an typischen Werten für einen Brennstab mit einem Zircaloy-4 Hüllrohr und einem Abbrand von 55 bzw. 65 GWd/Mg SM. Zusammen mit dem bei der Fertigung eingebrachten Füllgas bestimmt die Menge an freigesetztem Spaltgas die Gasmenge im Brennstab und folglich den Brennstabinnendruck zu Beginn der Simulation eines Zwischenlagerszenarios. Zu Beginn der Simulation führt Tespa-Rod eine abbrandabhängige Berechnung der über die betriebliche Lebenszeit des Brennstabs gebildeten Spaltgase durch. In Tab. 3.10 sind die verwendeten axialen Profile mit den jeweiligen Stabmitteln für den Abbrand, die Oxidschicht, den Wasserstoffgehalt und die Hüllrohrtemperatur für den hier betrachteten heißesten Stab im Szenario 1 nach einer Abklingzeit von fünf Jahren aufgelistet. Anschließend wird ein Teil der gebildeten Spaltgase basierend auf einer empirischen Korrelation freigesetzt. Das Modell in Tespa-Rod basiert auf Auswertungen der Spaltgasfreisetzung von DWR-Brennstäben mit UO_2 -Brennstoff und sieht keine Unterscheidung zwischen MOX und UO_2 vor /MAN 00/. Während der Zwischenlagerung erfolgt keine weitere signifikante Spaltgasfreisetzung. Eine dann noch stattfindende Zunahme des Innendrucks ist auf freigesetztes Helium aus den Alphazerfällen zurückzuführen.

Tab. 3.10 Verwendete Eingangsparameter des im Szenario 1 betrachteten Brennstabes

Zone	Abbrand [GWd/t SM]	Oxidschicht [µm]	Wasserstoff gehalt [ppm]	Temperatur/ 5 Jahre [°C]
1 (unteres Ende)	39,9	27,7	181	181
2	59,6	41,9	230	265
3	60,8	51,6	255	293
4	60,8	62,3	279	309
5	60,7	74,9	304	319
6	60,5	86,6	324	327
7	60,2	96,2	351	330
8	59,6	103,3	353	329
9	56,3	104,3	354	321
10 (oberes Ende)	31,6	90,0	330	278
Stabmittelwert	55,0	73,0	295	
Pellet Durchmesser			8,05 mm	
Hüllrohr Innendurchmesser			9,437 mm (angepasst von 9,5 mm)	
Fülldruck (nach Fertigung)			2,25 MPa	

Tespa-Rod verfügt über ein bisher nicht validiertes, konservatives Pelletschwellmodell /SON 17/. Dieses nimmt an, dass das Pellet über die Zeit der Zwischenlagerung durch Gitterversetzungen aufgrund von Alphazerfällen und anschließender Heliumbildung kontinuierlich anschwillt. Kommt es während der Lagerung zu einem Verschluss des Pellet-Hüllrohr-Spalts, ändert sich infolge der Interaktion von Pellet und Hüllrohr die Druckbelastung des Hüllrohrs. Während die Umfangsspannung zuvor lediglich vom inneren Gasdruck und damit vornehmlich von der Temperatur, dem Fülldruck und der Spaltgasfreisetzung abhing, kommt es bei fortwährendem Aufschwellen zu einem Festkörperdruck auf die Hüllrohrinnenwand. Dies hat eine starke Zunahme der Umfangsspannung zur Folge. Modellbedingt können Umfangsspannungen erreicht werden, welche über dem maximal tolerierbaren/genehmigten Wert von 120 MPa liegen. Deshalb werden für die präsentierten Einzelszenarien die Ergebnisse der Umfangsspannungsberechnungen sowohl ohne als auch mit Pelletschwellen dargestellt. Die Differenz beider Modelle stellt einen möglichen Unsicherheitsbereich dar, der nur experimentell aufgelöst bzw. genauer spezifiziert werden muss. Die Diskussion zu den bestehenden Wissenslücken hinsichtlich des Pelletschwellens erfolgt im entsprechenden Abschnitt im Kapitel 3.3.1.

Im Beladungsszenario 1 stellt sich zu Beginn der Trockenlagerung (Abklingzeit von fünf Jahren für UO₂-Brennelemente) die maximale Hüllrohrtemperatur von 330 °C im innersten Brennelement 10 ein. Diese Temperatur nimmt in den ersten Jahren der Trockenlagerung rasch ab und ist nach 45 Jahren auf 142 °C gesunken. Im direkten Vergleich mit Szenario 2 zeigt sich, dass trotz der erhöhten Nachzerfallsleistung der Elemente 6, 7, 13 und 14 (in Szenario 2) das innerste Brennelement auch hier die höchste Hüllrohrtemperatur (322 °C) im Behälter aufweist. Allerdings ist die maximale Hüllrohrtemperatur des Elements 6 mit 303 °C gegenüber dem Szenario 1 (284 °C) deutlich erhöht (siehe Abb. 3.8).

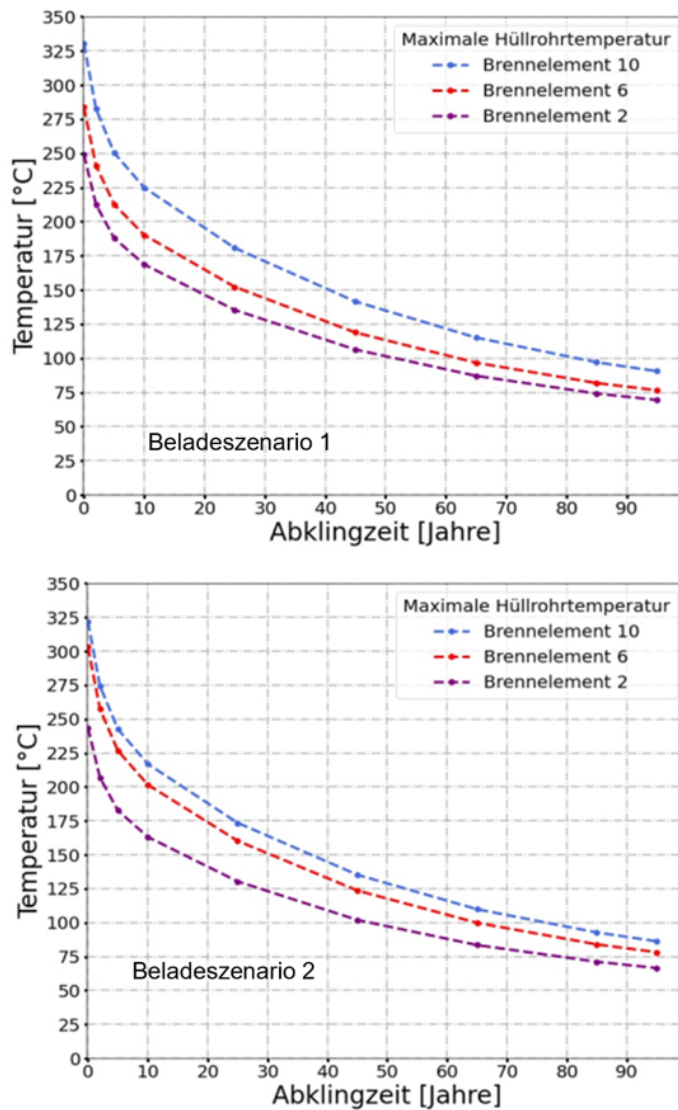


Abb. 3.8 Maximale Hüllrohrtemperaturen der BE 10, 6 und 2 für die Beladeszenarien 1 bzw. 2 über einen Zeitraum von 95 Jahren Trockenlagerung berechnet mit COBRA-SFS, gültig für den heißesten Stab und die maximal belastete Axialzone

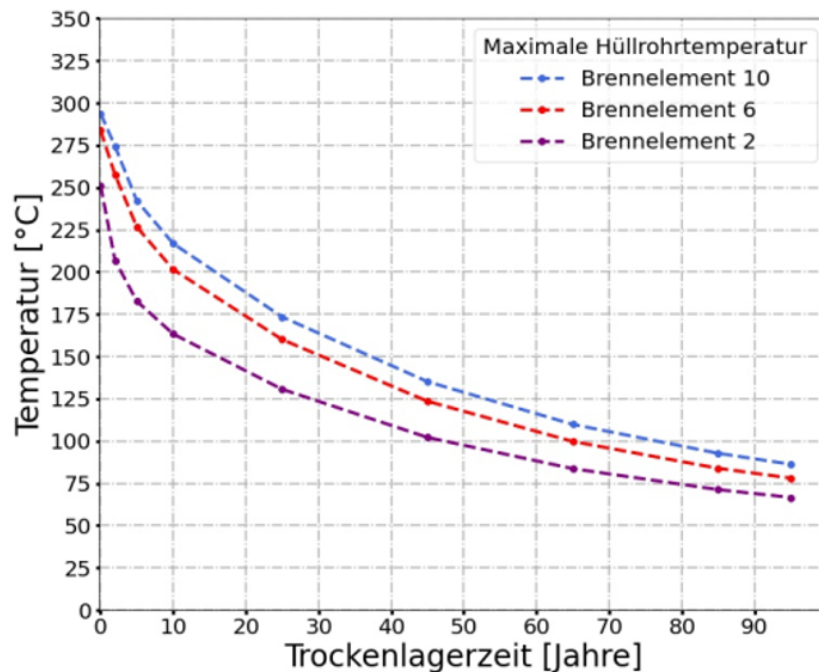


Abb. 3.9 Maximale Hüllrohrtemperaturen der BE 10, 6 und 2 in dem Beladeszenario 3 über einen Zeitraum von 95 Jahren Trockenlagerung berechnet mit COBRA-SFS

In Szenario 3 zeigt sich, dass die Brennelemente mit leicht erhöhter Nachzerfallsleistung in den Positionen 6 und 2 in Abb. 3.9 zu Beginn der Trockenlagerung eine vergleichbare maximale Hüllrohrtemperatur wie die entsprechenden Elemente in Szenario 1 aufweisen. Hier gilt zu berücksichtigen, dass für das MOX-Brennelement in Position 6 eine längere Nasslagerung von zehn Jahren angenommen werden muss. Aufgrund der niedrigen Nachzerfallsleistung des innersten Brennelements 10 in Szenario 3 ist dessen Temperatur über den betrachteten Zeitraum deutlich niedriger als die der innersten Brennelemente in den Szenarien 1 und 2. Zudem weist das MOX-Brennelement auf Position 6 in Szenario 3 aufgrund der enthaltenen langlebigeren Spaltprodukte eine leicht verringerte Abkühlrate als das UO_2 -Brennelement auf Position 6 in Szenario 1 auf.

Zusammenfassend über alle drei Beladeszenarien gilt, dass sich die maximale Hüllrohrtemperatur für das zentrale Brennelement bei der homogenen Beladung in Szenario 1 einstellt.

Nach den thermischen Ausbreitungsrechnungen im Behälter wurden mit dem Programm Tespa-Rod die sich einstellenden Druckniveaus und Umfangsspannungen des heißesten Brennstabs berechnet. An dieser Stelle sei nochmals auf die Verwendung des gegenüber anderen Brennstab-Codes verfügbaren, bisher jedoch nicht validierten, konservativen Pelletschwellmodells hingewiesen.

Im Szenario 1 (siehe Abb. 3.10) steigt die berechnete Umfangsspannung zu Beginn der Trockenlagerung auf ein lokales Maximum von 42 MPa. Allerdings kommt es nach knapp 21 Jahren zum Schluss des Pellet-Hüllrohrspalts. Die Umfangsspannung steigt nun unabhängig vom Gasdruck stark an und erreicht nach 100 Jahren einen Wert von 126 MPa. Dieser Endwert muss aber kritisch betrachtet werden, da er stark vom ursprünglichen Pellet-Hüllrohrabstand abhängt. Ohne das Modell sinkt die Umfangsspannung kontinuierlich ab und stellt sich nach 100 Jahren bei 30 MPa ein (siehe Abb. 3.10)

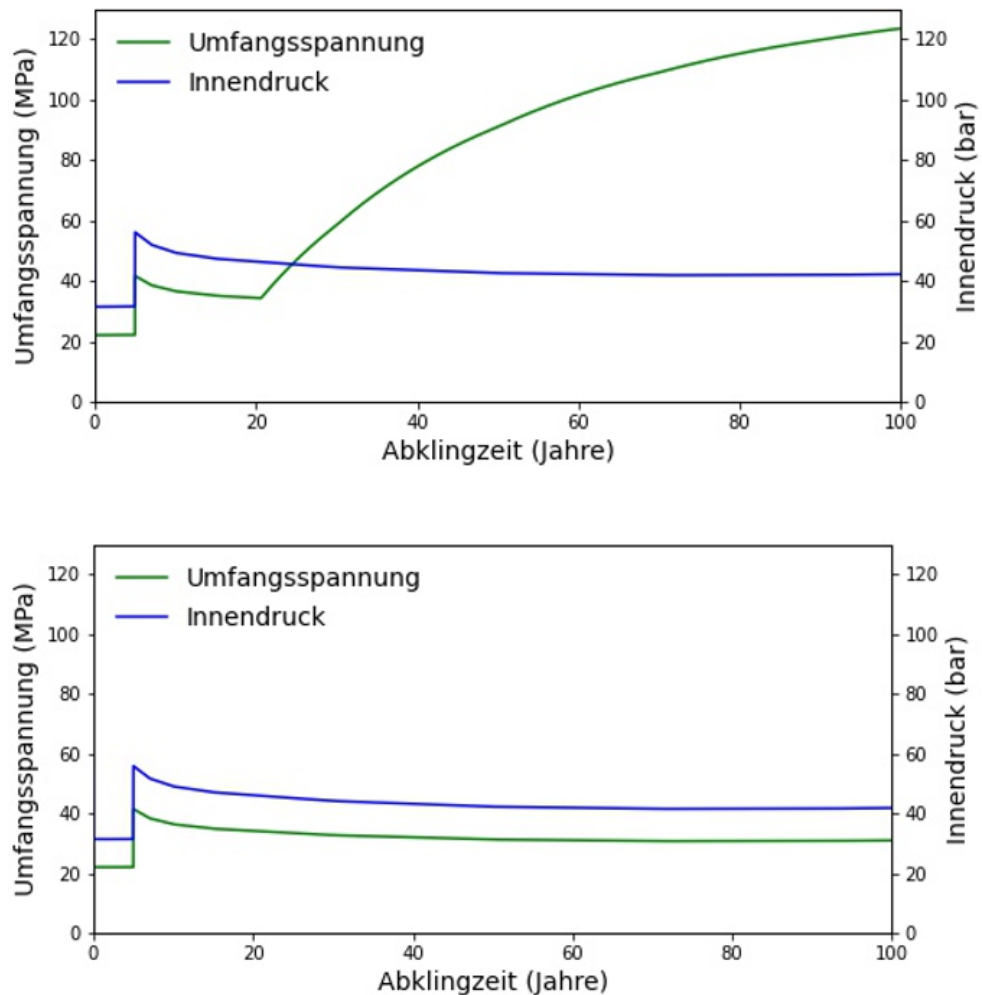


Abb. 3.10 Umfangsspannung mit (oben) und ohne (unten) Pelletschwellmodell für den Zentralstab des zentralen BE in der homogenen Beladevariante Szenario 1

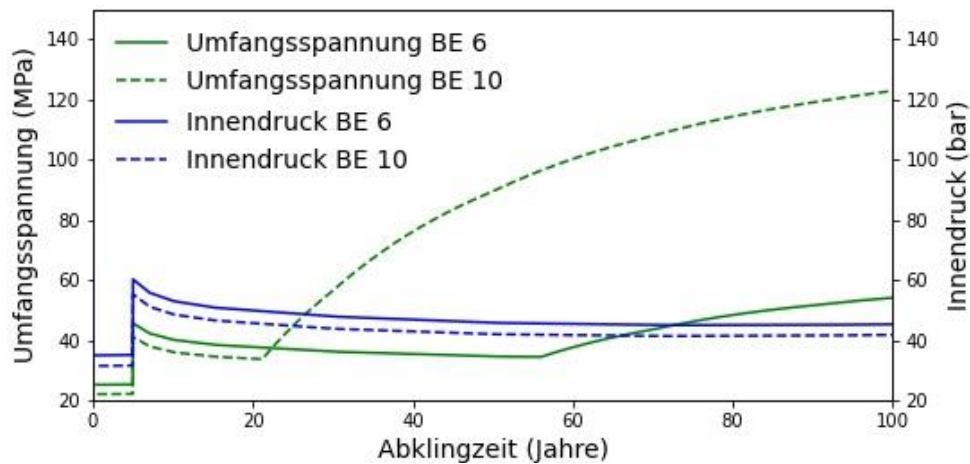


Abb. 3.11 Umfangsspannung und Innendruck mit Pelletschwellmodell berechnet für die heißesten Stäbe der BE 6 und 10 im Beladeszenario 2

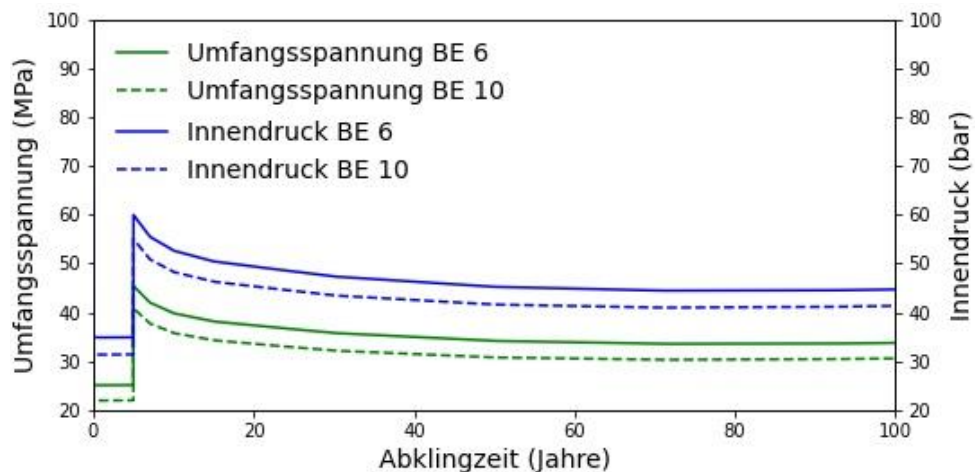


Abb. 3.12 Umfangsspannung und Innendruck ohne Pelletschwellmodell berechnet für die heißesten Stäbe der BE 6 und 10 im Beladeszenario 2

Wird das konservative Pelletschwellmodell in die Berechnungen für Szenario 2 mit einbezogen (siehe Abb. 3.11) kommt es während der Zwischenlagerung in beiden betrachteten Stäben (Brennelement 6 und Brennelement 10) zum Spaltschluss. Durch den Festkörperdruck des Pellets ergeben sich nach 100 Jahren deutlich höhere Umfangsspannungen von 56 MPa für das Brennelement 6 und 125 MPa für das Brennelement 10. Die maximalen gasinduzierten Stabinnendrucke bleiben dabei unverändert bei jeweils 60 bzw. 55 bar. Die hohen Werte für die Umfangsspannung im Element 10 lassen sich durch einen sehr frühen Spaltschluss nach knapp 21 Jahren erklären. Im Vergleich hierzu findet der Spaltschluss im Stab des Brennelement 6 erst nach 56 Jahren statt. Ohne das Pelletschwellmodell ergeben sich für diese Stäbe maximale Umfangsspannungen von 45 MPa für das Brennelement 6 und 41 MPa für das Brennelement 10 bei den maximalen Innendrücken von jeweils 60 bzw. 55 bar.

Die von Tespa-Rod berechneten Umfangsspannungen und Brennstabinnendrucke der Brennelemente 2, 6 und 10 im Szenario 3 sind in Abb. 3.13 dargestellt.

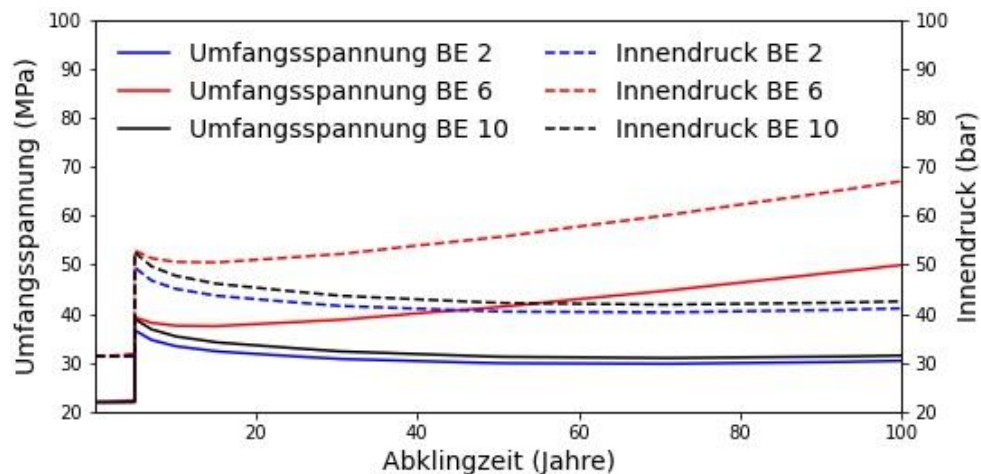


Abb. 3.13 Umfangsspannungen und Innendrucke ohne Pelletschwellmodell für die jeweils heißesten Stäbe der BE 2, 6 und 10 im Beladeszenario 3

Für die UO_2 -Brennstäbe (aus Brennelement 2 und 10) ergeben sich sehr ähnliche Ergebnisse wie in den Berechnungen für Szenario 1. Die Gründe hierfür sind zum einen, dass für beide Rechnungen derselbe mittlere Stababbrand vorliegt und zum anderen, dass COBRA-SFS für beide Szenarien ähnliche Temperaturfelder vorhersagt. Im Gegensatz dazu zeigt sich für die MOX-Brennelemente (Brennelement 6) eine ausgeprägte kontinuierliche Zunahme des Hüllrohrinnendrucks. Dies kann auf die erhöhte Heliumerzeugung und Heliumfreisetzung des MOX-Brennstoffes zurückgeführt werden. Basierend auf den Untersuchungen nimmt Tespa-Rod im Fall von MOX-Brennstoff eine dreifach höhere Heliumfreisetzungsrates gegenüber der von UO_2 -Brennstoff an [RON 12]. Die Umfangsspannung korreliert hierbei direkt mit dem Innendruck.

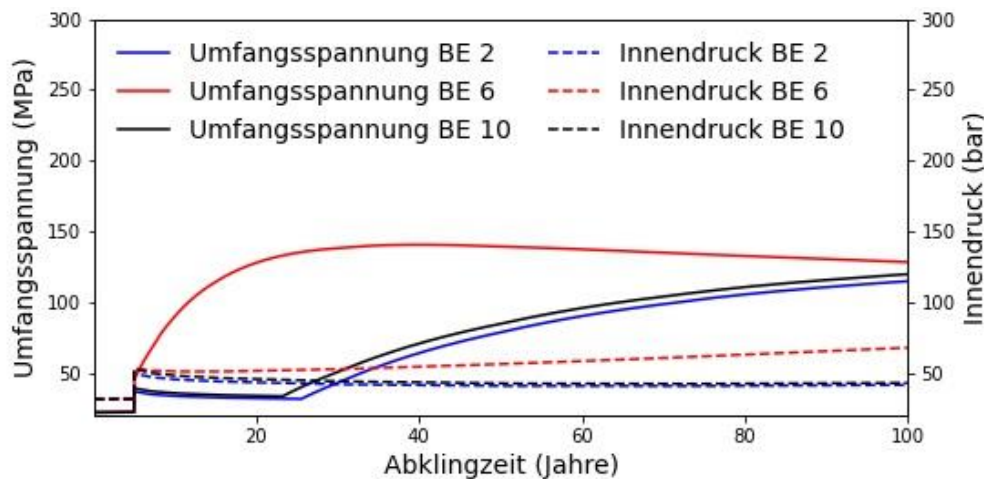


Abb. 3.14 Umfangsspannungen und Innendrucke mit Pelletschwellmodell berechnet im Beladungsszenario 3 für die jeweils heißesten Stäbe der BE 2, 6 und 10

Unter Berücksichtigung des Pelletschwellens (siehe Abb. 3.14) wird deutlich, dass für den MOX-Brennstab die Sättigung des Pelletschwellens – das Erreichen der maximal möglichen, durch die Alpha-Teilchen hervorgerufenen, Anzahl an Gitterversetzungen – schneller erreicht wird und die Schwellrate zu einem früheren Zeitpunkt abnimmt. Für UO_2 -Brennstoffe wird diese Sättigung deutlich später erreicht, was zu einer kontinuierlichen Zunahme der Umfangsspannung im betrachteten Zeitraum führt. Für die Brennstäbe mit UO_2 -Brennstoff (heißeste Stäbe von Brennelement 2 und 10) findet der Spaltschluss nahezu zeitgleich nach 23 bzw. 25 Jahren statt. Aufgrund der Annahme, dass beide Stäbe denselben Abbrand aufweisen, ist dieser Unterschied auf die Temperaturdifferenz der Stäbe zurückzuführen. Die höhere Temperatur im Brennelement 10 hat dabei einen früheren Spaltschluss zur Folge.

Die thermischen Analysen haben gezeigt, dass die homogene Beladung aus Szenario 1 zu den heißesten Brennstabtemperaturen von $330\text{ }^{\circ}\text{C}$ führt. Das lokale Maximum der Umfangsspannung zu Beginn der Zwischenlagerung beträgt in diesem Szenario 42 MPa .

Bei den Analysen wurde bisher nicht berücksichtigt, dass der Behälter und die Brennelemente nach der Beladung einer Trocknungsprozedur unterzogen werden, bis ein gewünschtes Rechtfeuchte Kriterium erreicht ist. Das Verfahren ist meist eine Art zyklische Vakuumtrocknung. Die genauen Bedingungen dieser Prozedur sind aber nicht bekannt und können je nach Betreiber und Menge an eingebrachter Feuchtigkeit variieren. Die maximal zulässige Temperatur der Brennelemente beträgt $370\text{ }^{\circ}\text{C}$. Es wird in den nachfolgenden Analysen unterstellt, dass diese Temperatur im Rahmen der Trocknungsprozedur erreicht wird. Ziel ist es, den Einfluss der höheren Temperatur auf die Umfangsspannungen zu quantifizieren, um hier weitere Rückschlüsse in Bezug auf die Wasserstoffreorientierung (siehe Kapitel 2.2.1 und 2.3) ziehen zu können. Der Trocknungsvorgang wurde näherungsweise als lineare Temperaturerhöhung

von 45 °C auf 370 °C in 100 Stunden, anschließender konstanter Temperatur von 370 °C über 10 Stunden und abschließender Abkühlung über 10 Stunden auf die von COBRA-SFS berechnete Hüllrohrtemperatur zu Beginn der Trockenlagerung angenommen. In Abb. 3.15 ist der Verlauf der Umfangsspannung und des Innendrucks für diesen aufgeprägten Temperaturverlauf dargestellt.

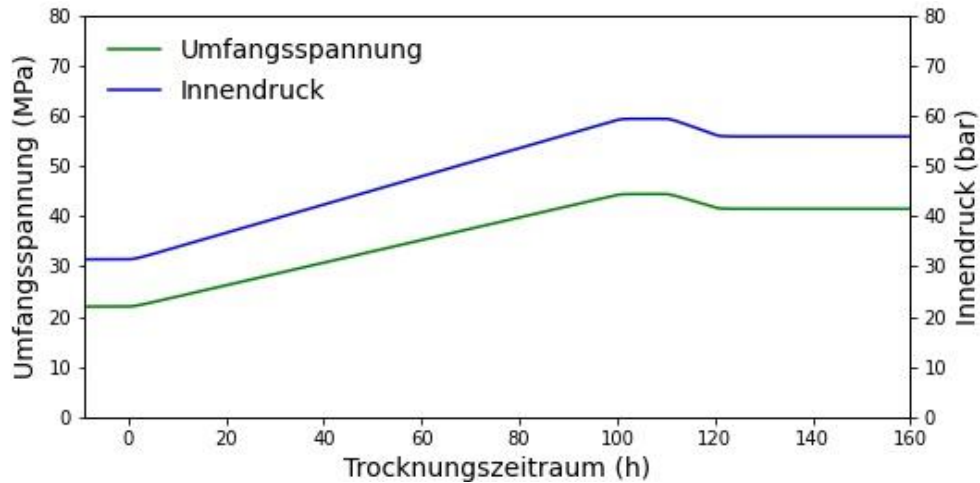


Abb. 3.15 Umfangsspannung und Innendruck im simulierten Trocknungsprozess für das Beladeszenario 1 ohne Pelletschwellmodell

Es zeigt sich, dass der Innendruck während des Trocknungsprozesses bei einer aufgeprägten Temperatur von 370 °C kurzzeitig auf 60 bar ansteigt. Aus diesem Druck ergibt sich eine Umfangsspannung von 45 MPa. Mit der Erhöhung der Maximaltemperatur um 40 °C geht folglich ein Anstieg der maximalen Umfangsspannung von 3 MPa einher.

Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass die durchgeführten Analysen für das Szenario 1 der homogenen Beladung die heißesten Temperaturen im zentralen Brennstab des zentralen Brennelements liefern. Die sich einstellenden Maximaltemperaturen liegen mit 330 °C deutlich unter dem maximal zulässigen Wert von 370 °C. Die sich über diese Temperaturen einstellenden Umfangsspannungen von maximal 42 MPa für den Beginn der Lagerung und maximal 45 MPa für den Trocknungsvorgang liegen deutlich unter den Spannungswerten von > 80 MPa, die für eine signifikante Ausbildung radialer Hydride in der Literatur derzeit überliefert und in Kapitel 2.3 dargestellt sind. Ohne ausreichend lange radiale Hydride erfolgt keine zusätzliche Versprödung des Materials, und es gibt auch keine Verschiebung der Sprödbruchübergangstemperatur hin zu höheren Temperaturen. Unter den bestehenden Modellannahmen und Eingangsgrößen kann auf Basis der durchgeführten Berechnungen derzeit nicht davon ausgegangen werden, dass im Zuge der verlängerten Zwischenlagerung von bis zu 100 Jahren der Effekt der Hüllrohrversprödung durch radiale umgelagerte Hydride zum Tragen kommt.

3.2.2 WWER-Brennelemente

Für die Analyse des Inventarverhaltens der WWER-Brennelemente wird auf eine repräsentative homogene Beladung zurückgegriffen. Der Behälter CASTOR® WWER 440/84 kann ähnliche Abfallmassen wie der CASTOR® V/19 transportieren, ist aber nur für 12,5 kW Nachzerfallswärmeleistung /BUN 10/, /EWN 20/ (84 Brennelemente mit ca. 149 W/Brennelement) zugelassen. Für eine homogene Beladung mit den in Kapitel 3.1.2 dargestellten Brennelementen mit einem mittleren Brennelement-Abbrand von 33 GWd/Mg SM bedeutet dies eine Abklingzeit von acht Jahren, um die 149 W pro Brennelement zu erreichen. Eine schematische Darstellung des für die Temperaturbestimmung verwendeten vereinfachten Behältermodells samt Tragkorb gibt die Abb. 3.16 wieder. Der Behälterinnenraum mit Tragkorb wurde für die Berechnungen in fünf Zonen aufgeteilt. Der Behälterkörper bildet die Zone 0 und geht nicht in die Berechnungen ein. Der Verlauf der Gesamtwärmeleistung des Behälters ist in Abb. 3.17 dargestellt.

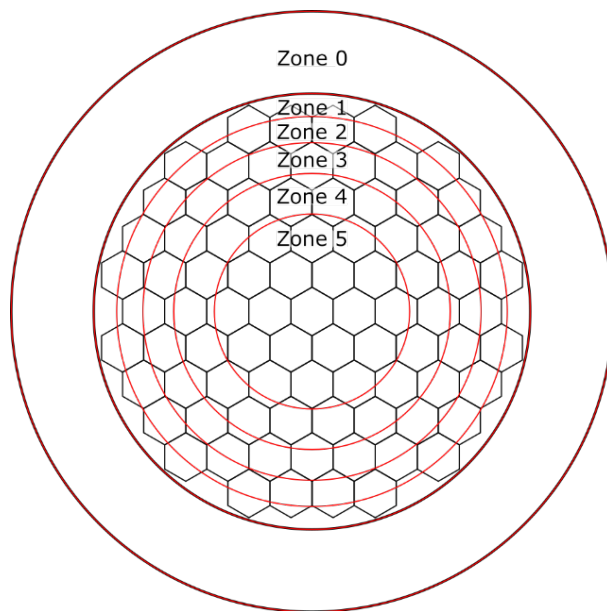


Abb. 3.16 Schematische Darstellung des vereinfachten Behältermodells des CASTOR® WWER 440/84

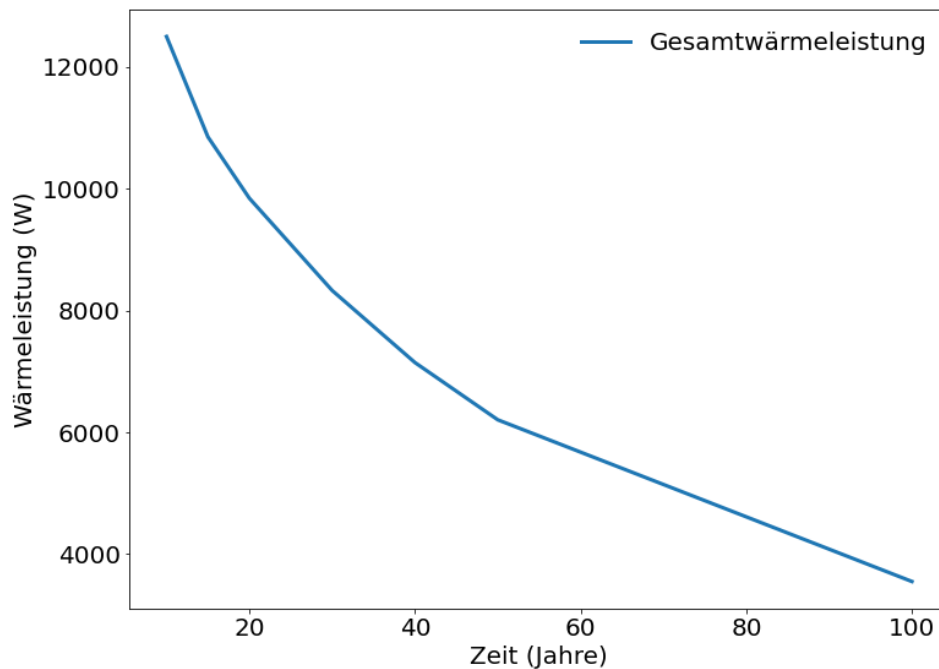


Abb. 3.17 Verlauf der Gesamtwärmeleistung über einen Zeitraum von 100 Jahren

Die Ergebnisse der thermischen Analysen in Abb. 3.18 zeigen, dass sich zu Beginn der Zwischenlagerung bei einer Umgebungstemperatur von 25 °C in der innersten Zone eine Temperatur von 239 °C einstellt. Die Temperatur fällt bis zur äußersten Zone auf 49 °C ab. Die maximale Temperatur in der innersten Zone fällt über den betrachteten Zeitraum aufgrund der rasch abnehmenden Gesamtwärmeleistung auf einen Minimalwert von 117 °C für eine Abklingzeit von 100 Jahren ab.

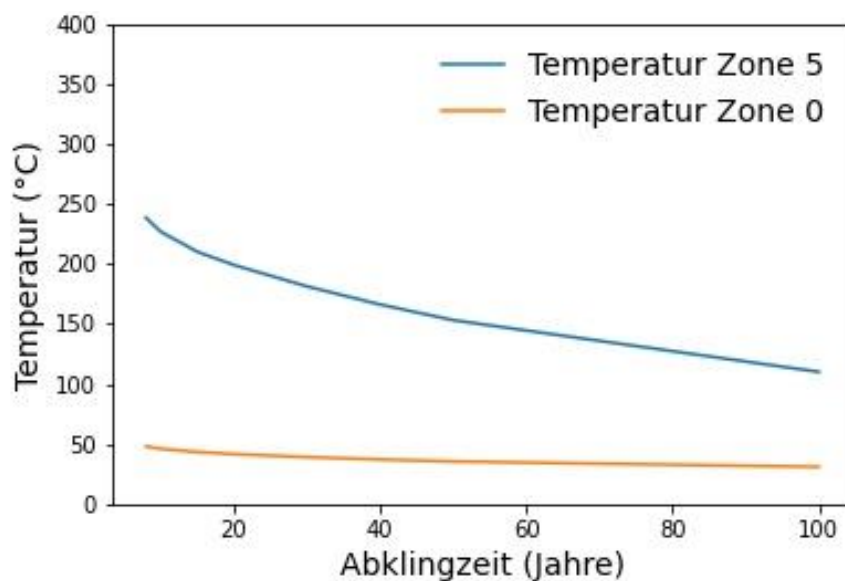


Abb. 3.18 Temperaturverlauf in den Zonen 5 (blaue Kurve) und 0 (gelbe Kurve) über einen Lagerzeitraum von 100 Jahren

Aus den berechneten Temperaturen lässt sich ableiten, dass das thermische Kriechen aufgrund des deutlich unter 300 °C liegenden Temperaturniveaus auch keine weitere Rolle bei einer verlängerten Zwischenlagerung spielt. Des Weiteren kann ebenfalls davon ausgegangen werden, dass keine Hydridreorientierung mit nachgelagerter Versprödung stattfindet. Ein Parametervergleich zeigt einen Heliumfülldruck von 0,5 bis 0,7 MPa für WWER-440-Brennelemente /IAE 04/ gegenüber ca. 2,0 MPa für moderne DWR-Brennelemente. Gegenüber den mit maximal 330° C berechneten Temperaturen bei den DWR-Brennelementen ergeben sich für WWER-440-Brennelemente bei 239 °C und einer deutlich geringeren Druckbeaufschlagung als Resultat Umfangsspannungen, welche für die Ausbildung radialer Hydride nach jetzigem Kenntnisstand nicht ausreichen. In der verfügbaren Literatur werden ähnliche Rückschlüsse gezogen /CHE 18/.

3.2.3 Brennelemente aus Versuchs- und Forschungsreaktoren

THTR/AVR

Für die Brennelementkugeln aus den AVR- und THTR-Reaktoren lassen sich Abschätzungen über die thermomechanischen Einflüsse schwer anstellen, da die Brennelemente anders aufgebaut sind und die Spaltprodukte in den Coated Particles zurückgehalten werden. Insbesondere die Siliciumkarbid-Beschichtung bei den TRISO-Partikeln führt gegenüber den BISO-Partikeln zu geringeren Freisetzungsraten. Dies führt zu günstigeren Endlagereigenschaften. Die Behälter sind für die Obergrenze von 1 kW Nachzerfallswärmeleistung ausgelegt. In einen Behälter sind zwei Kannen zu je 950 AVR-Brennelementen bzw. eine Kanne mit 2100 THTR-Brennelementen eingestellt. Bei THTR-Kannen werden Kupferdichtungen, bei AVR-Kannen Silikondichtungen zum Verschluss eingesetzt. AVR-Brennelementkugeln, die mit Wasser in Kontakt gekommen sind, wurden in den Kannen inertisiert und diese anschließend verschweißt. Gasförmige radioaktive Verbindungen können durch Spaltgase und durch die Aktivierung der Verunreinigungen im Graphit entstehen. Für AVR-Brennelementkugeln wurde bereits frühzeitig ein Messprogramm initiiert, um die Sicherheit der Trockenlagerung von bestrahlten Hochtemperatur-Brennelementen nachzuweisen. Bei der Zwischenlagerung sind nur wenige gasförmige Radionuklide in Betracht zu ziehen. Dies sind H-3, C-14 und Kr-85. Deren Freisetzung erfolgt durch über Diffusion-, Korrosions- und Desorptionsprozesse /NIE 99/. Die Hauptquellen für die Entstehung von H-3 sind (p-n)-Reaktionen mit He-3-Isotopen aus dem Kühlgas und (n- α)-Reaktionen mit Li-6-Verunreinigungen im Graphit, sowie als ternäres Spaltprodukt im Brennstoff.

Jedes sogenannte trockene Brennelementkugel kann bis zu 50 mg Wasser enthalten. In Ausnahmefällen können Brennelementkugeln mehrere Gramm Wasser enthalten (nasse Brennelementkugeln) /KRU 04/. Dieses Wasser kann sein Wasserstoffatom mit Tritium austau-

schen, und es entsteht tritiumhaltiges Wasser. Wenn der Wassergehalt in den Kannen hoch genug ist (flüssiges Wasser anstelle von Feuchtigkeit), besteht die Möglichkeit der Radiolyse-gasbildung. In geschlossenen Kannen wurden Überdrücke von 200 mbar gemessen.

C-14 wird durch die Aktivierung der Verunreinigungen im Graphit gebildet und entsteht aus dem Stickstoff (N-14) über eine (n-p)-Reaktion und Kohlenstoff (C-13) über (n-γ). Daher befindet sich C-14 hauptsächlich gebunden in der Graphitmatrix der Brennelemente /KRU 04/. Kr-85 wird als reines Spaltprodukt erzeugt. Eine kleine Menge stammt aus Schwermetallverunreinigungen im Matrixmaterial /KRU 04/. Der größte Teil des Kr-85 ist in den Coated Particles enthalten und bei intakter Beschichtung nicht freisetzbar.

Nach dem Verschließen der Kannen wird zuerst der auf den Brennelement-Oberflächen adsorptiv gebundene Anteil in die Kannenatmosphäre freigesetzt (u. a. H-3 und Kr-85), wobei das im Graphit gebundene C-14-Inventar erst durch Oxidation des Graphits mit Sauerstoff als CO₂ mobilisierbar wird /NIE 99/. Die Freisetzung durch Diffusion erfolgt aus dem Inneren der Brennelement-Matrix, wobei aus intakten Brennelementen bzw. Partikeln im Temperaturbereich von 30 °C bis 140 °C der Anteil vernachlässigt und das in den Brennstoffpartikeln eingeschlossene Aktivitätsinventar als nicht freisetzbar anzusehen ist. Das geht aus entsprechenden Experimenten hervor /NIE 99/. Unter stabilen Zwischenlagerbedingungen (mit geringen Temperaturschwankungen) bleibt die Freisetzungsrates in den Kannen gering. Eine Schädigung durch mechanische oder thermische Belastungen von Brennelementen bzw. beschichteten Brennstoffpartikeln (Partikeldefektanteil THTR-300: max. 0,2 %) kann unter Zwischenlagerbedingungen praktisch ausgeschlossen werden.

Forschungsreaktorbrennelemente

Die Brennelemente aus Forschungsreaktoren, die aus metallischen Brennstoffen bestehen, besitzen keine freien Gasvolumina, aus denen durch Leckage gasförmige Spaltprodukte in größeren Mengen austreten können. Bei dieser Art von Brennelementen kann es nur zu größeren Freisetzungen gasförmiger Stoffe in die Behälteratmosphäre oder zu einer Verlagerung im Behälter kommen, wenn die Brennelemente stark korrodieren oder durch andere Prozesse ihre strukturelle Integrität verlieren. Dies ist nach dem jetzigen Kenntnisstand für eine trockene Zwischenlagerung in Behältern aufgrund der inerten Atmosphäre nicht zu unterstellen. Auch sind andere Degradationsmechanismen, die zum Verlust der Integrität führen, nicht bekannt /HUM 18/.

Korrosion kann nur dann ablaufen, wenn der Brennstoff nicht ausreichend getrocknet wurde. Für diese Annahme gibt es jedoch keine begründeten Anhaltspunkte. Infolgedessen könnten

Korrosionsprozesse mit Wasserstoffherzeugung und Auswirkungen auf die Druckbeaufschlagung des Behälters stattfinden.

Kriechvorgänge können bei hohen Brennstofftemperaturen (z. B. $> 200\text{ °C}$ über 50 Jahre) die Verformung des Brennstoffs und damit die Handhabbarkeit beeinträchtigen /SIN 10/. Die nachfolgenden Betrachtungen geben einen Überblick zu möglichen Temperaturbereichen bei der Zwischenlagerung von Forschungsbrennelementen.

Abschätzende Temperaturrechnungen zur Lagerung von Forschungsbrennelementen wurden am Beispiel von FRM II-Brennelementen in einem CASTOR® MTR3-Behälter durchgeführt. Für das vereinfachte Behältermodell in Abb. 3.19 wurde eine Beladung mit fünf Forschungsbrennelementen des FRM II betrachtet. Für jedes Brennelement wurde eine konservative Nachzerfallsleistung von 55 W angenommen. Als Randbedingung für die Rechnung wurde eine Umgebungstemperatur von 25 °C verwendet. Aus den Analysen heraus stellt sich eine maximale Temperatur von knapp 60 °C ein (siehe Abb. 3.20). Bei diesem Temperaturniveau kann bisher nicht von temperaturinduzierten Effekten wie dem Kriechen ausgegangen werden, die zu einer Beeinträchtigung der Umschließungen führen können.

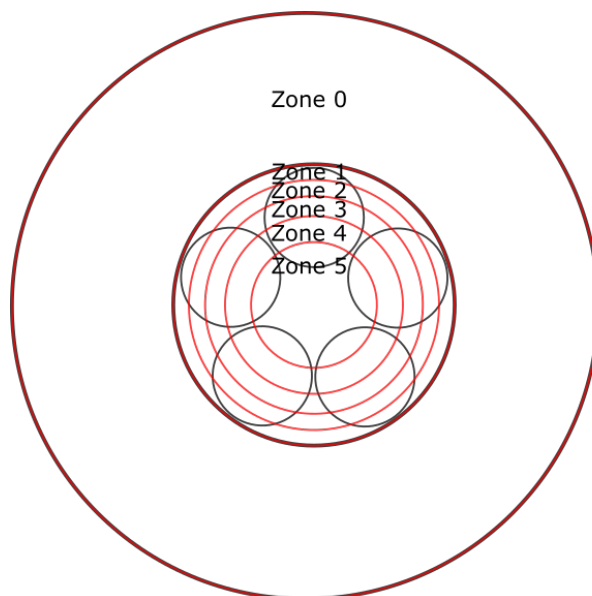


Abb. 3.19 Schematische Darstellung des Behältertyps CASTOR® MTR3

Die im vereinfachten Behältermodell berücksichtigte Zoneneinteilung ist in Rot gekennzeichnet.

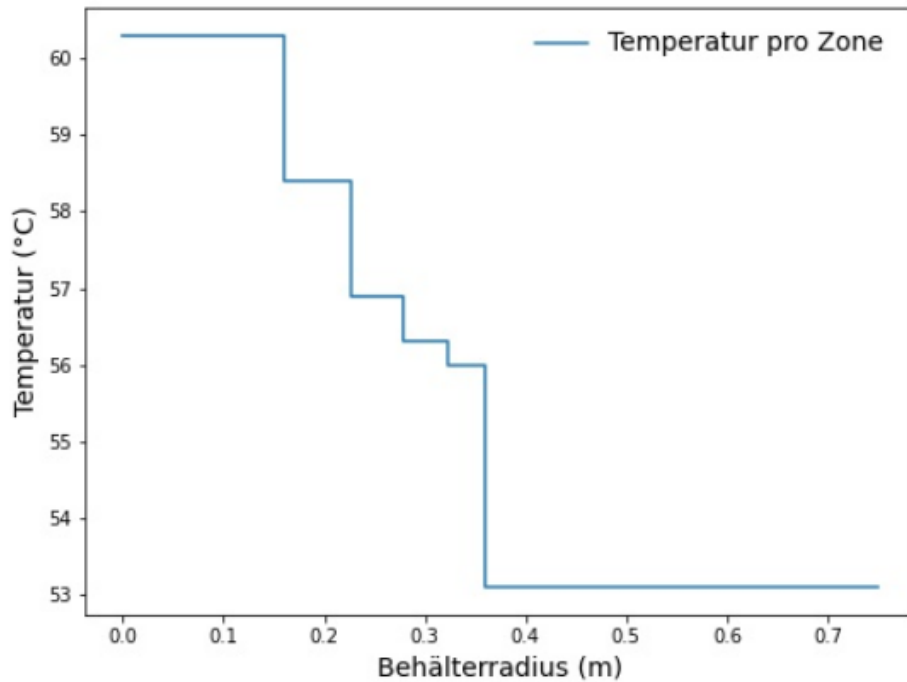


Abb. 3.20 Temperaturfeld im MTR3-Behältertyp bei einer Beladung von 275 W und einer Umgebungstemperatur von 25 °C, berechnet mittels des vereinfachten Behältermodells

3.2.4 Verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung

Den vereinfachten Rechnungen für die Temperaturbestimmung der Kokillen in den HAW-Behältern liegen die in Kapitel 3.1.4 dargelegten Nachzerfallswärmeleistungsverläufe der abgefertigten Kokillen zugrunde. Die Betrachtungen wurden für die beiden Behälterbauarten CASTOR® HAW 28/28 CG und CASTOR® HAW28M durchgeführt. Der CASTOR® HAW 20/28 CG erlaubt, abhängig von der Konfiguration, die Aufnahme von bis zu 28 Kokillen mit verglasten Abfällen. Für die Rechnungen wurde eine maximale Beladung mit einer Gesamtwärmeleistung zu Beginn der Simulation von 45 kW, gleichverteilt über alle Kokillen (1.580 kW pro Kokille, Abklingzeit 4 Jahre), angenommen. Die Entwicklung der Gesamtwärmeleistung des Behälters über einen Zeitraum von 100 Jahren ist in Abb. 3.22 dargestellt. In einer Reihe von „steady-state“ Rechnungen wurde die Änderung der Gleichgewichtstemperatur für die 6 Zonen innerhalb des Behälters (siehe Abb. 3.21) über diesen Zeitraum berechnet. Dabei wurden für die Berechnung der Wärmeleitfähigkeit lediglich die Kokillen und die Heliumkanäle berücksichtigt. Die Wärmeleitfähigkeit pro Zone ergibt sich aus der mittleren Wärmeleitfähigkeit der Kokillen und des Heliumgases, normiert auf die jeweiligen Volumina.

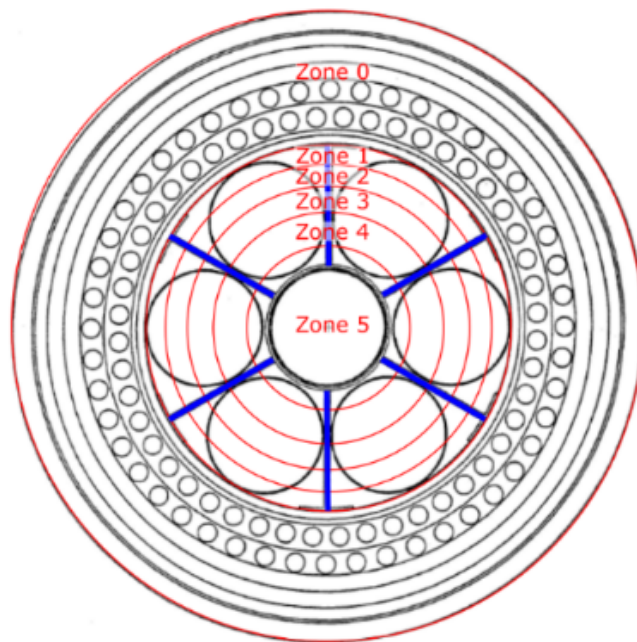


Abb. 3.21 Darstellung des vereinfachten Behältermodells für die thermischen Analysen CASTOR® HAW 20/28 CG

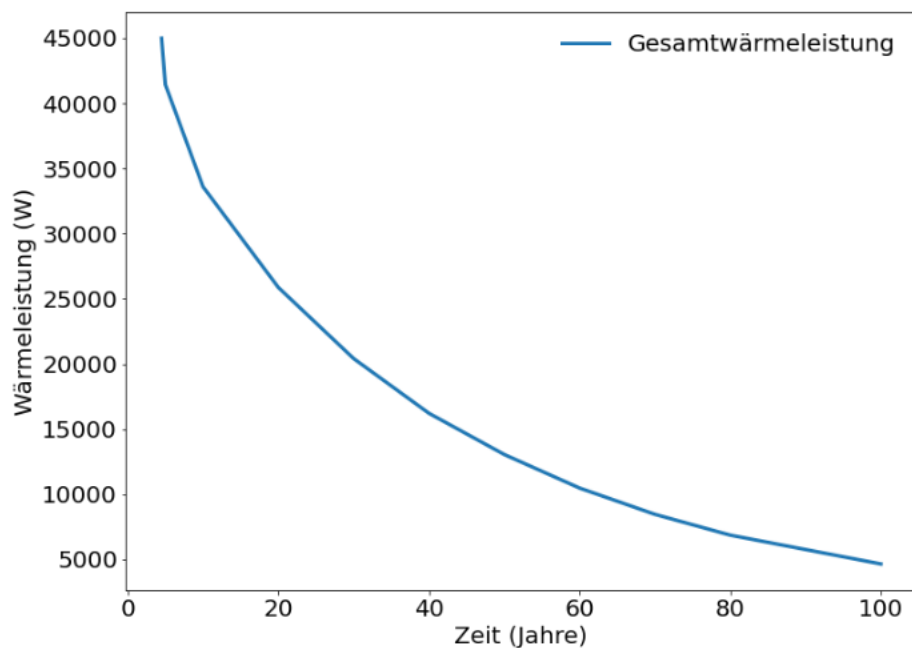


Abb. 3.22 Gesamtwärmeleistung im Behälter CASTOR® HAW 20/28 CG

Die Darstellung der Temperaturverläufe in Abb. 3.23 zeigt, dass sich für eine Gesamtwärmeleistung von 45 kW in der innersten Zone eine mittlere Temperatur von 386 °C einstellt. Diese Temperatur fällt über die restlichen fünf Zonen nach außen hin stetig ab auf 87 °C. Durch die rasche Abnahme der Nachzerfallsleistung ergibt sich bereits mit einer Abklingzeit von 20 Jahren eine deutlich niedrigere Maximaltemperatur von 294 °C. Mit 100 Jahren Abklingzeit ist das

Temperaturprofil über die Behälter stark abgeflacht und die maximale innere Temperatur auf 109 °C abgefallen.

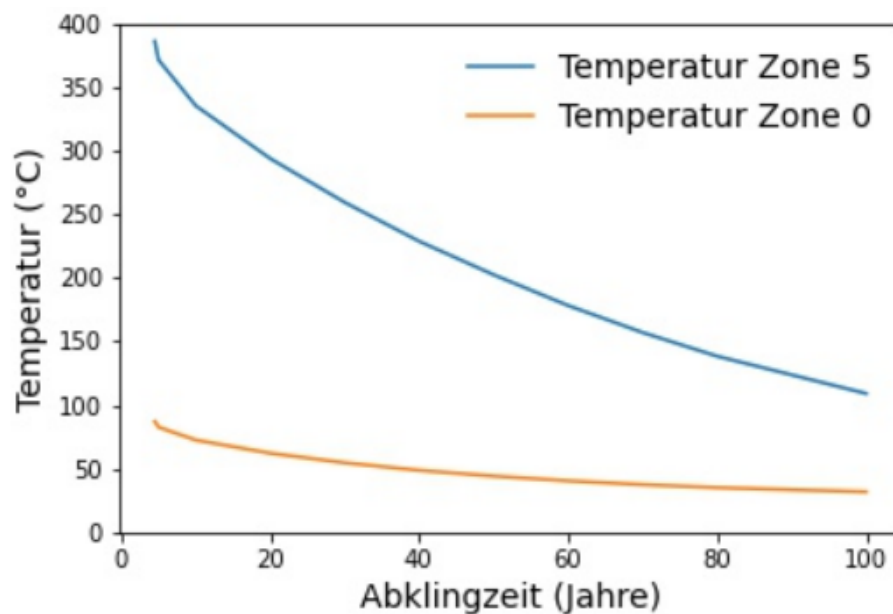


Abb. 3.23 Vergleich der Temperaturabnahme in der inneren Zone der Kokillen zum Mantel des Behälters CASTOR® HAW 20/28 CG

Beim CASTOR® HAW28M sind die Kokillen in ähnlicher Konfiguration im Behälter untergebracht wie beim CASTOR® HAW 20/28 CG, allerdings ist die maximale Wärmeleistung des Behälters auf 56 kW ausgelegt. Für den Korb und die verwendeten Zusatzmaterialien im Behälter liegt eine veränderte Wärmeleitfähigkeit vor, so dass sich wie in Abb. 3.24 zu sehen, für dieses Modell eine maximale Temperatur von nur etwa 355 °C im Inneren einstellt. Aufgrund des ähnlichen Aufbaus des Behältermantels wurde in beiden Modellen dieselbe Wärmeausfuhrkorrelation verwendet. Daher stellt sich durch die größere Wärmeleistung im HAW28M eine höhere Temperatur von 102 °C in der äußeren Zone ein.

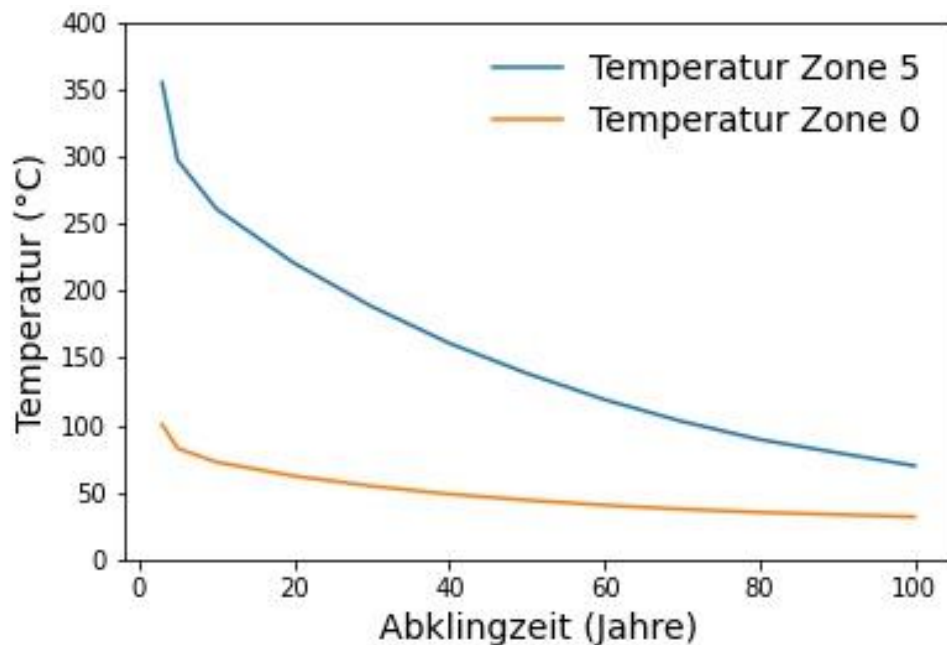


Abb. 3.24 Vergleich der Temperaturabnahme in der inneren Zone der Kokillen zum Mantel des Behälters CASTOR® HAW28M

Die durchgeführten Analysen mit den vereinfachten thermischen Modellen zeigen, dass für die maximal möglichen Beladungen der beiden HAW-Behälter CASTOR® HAW28M und CASTOR® HAW 20/28 CG zu Beginn der Zwischenlagerung und im weiteren Verlauf keine kritischen Temperaturen erreicht werden, welche eine temperaturgetriebene Alteration der Glaseigenschaften hervorrufen. Die Maximaltemperaturen von 386 °C bzw. 355 °C liegen weit entfernt von der ersten relevanten Temperaturschwelle, der Glastransformationstemperatur von 502 °C (siehe Kapitel 2.2.3).

Die durch den Alpha-Zerfall bedingte Heliumakkumulation hat eine Druckzunahme innerhalb der Edelstahlkokille während der Zwischenlagerung zur Folge. Bei dem Nuklidinventar der Glaskokille haben nach 100 Jahren rund $3,2 \times 10^{23}$ Alpha-Zerfälle stattgefunden; dies entspricht rund 0,5 Mol an erzeugtem Helium. Die Hauptalphastrahler sind Cm-244 und Am-241 mit einer Halbwertszeit von ca. 18 bzw. 432 Jahren. Unter der Annahme einer vollständigen Freisetzung des Heliums aus der Glasmatrix in das freie Volumen der Edelstahlkokille mit rund 0,018 m³ und bei einer Temperatur von 100 °C ergibt sich eine Druckzunahme von rund 0,9 bar. Die daraus resultierende Umfangsspannung beträgt rund 38 bar und erreicht damit weniger als 1 % der Zugfestigkeit der Edelstahlkokille.

Bei einem Verlust der Dichtheit der Kokille wäre aufgrund des gebundenen Charakters der Abfälle eine größere Freisetzung von flüchtigen Bestandteilen in den Behälterinnenraum oder eine Verlagerung der Abfälle während der Zwischenlagerung im Normalbetrieb nicht zu

unterstellen. Zudem sind die Kokillen in der Regel drucklos abgefertigt, so dass sich außer durch die Abkühlung, bei der durch die unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Glas und Kokille Spannungen induziert werden können, keine weiteren permanenten Spannungen in den Wandungen ergeben /HUM 18/.

3.3 Optionen unterschiedlicher Maßnahmen der Zwischenlagerung

Die Degradationseffekte, die zu einer Beeinträchtigung der Integrität und Handhabbarkeit der Inventare führen können, lassen sich anhand der Erkenntnisse aus den konkreten Behälterbeladungen (siehe Kapitel 3.1) und den Betrachtungen zum Inventarverhalten (siehe Kapitel 3.2) zeitlich einordnen. Darauf aufbauend kann eine Zeitskala für den eventuellen Handlungsbedarf zur Ergreifung von potenziellen Maßnahmen, während der Zwischenlagerzeit abgeschätzt werden. Soweit heute möglich zielt dies auf die Identifizierung von Zeitpunkten ab, ab denen die Integrität, der bei der Handhabung maßgeblich wirkenden Barrieren, evtl. nicht mehr uneingeschränkt gewährleistet werden kann.

In diesem Kapitel werden daher mögliche Optionen unterschiedlicher Maßnahmen mit Auswirkungen auf die Handhabbarkeit und Konditionierung, die für die Zeit der verlängerten Zwischenlagerung und der Konditionierung der hochradioaktiven Abfälle zur Einlagerung in ein Endlager relevant sein können, beschrieben und diskutiert.

Neben den potenziell positiven oder negativen Folgen für die Sicherheit der Zwischenlagerung werden bereits hier mögliche Auswirkungen auf die Radionuklidmobilität unter Endlagerbedingungen betrachtet. Da jedoch alle Analysen und experimentellen Ergebnisse mit Unsicherheiten behaftet sind, sollen hier verschiedene Ereignispfade einer hypothetischen Betrachtung unterzogen werden. Darüber hinaus werden bestehende Wissenslücken adressiert.

Die Ergebnisse sind zusätzlich in tabellarischer Form zusammengefasst und befinden sich im Anhang A.3.

3.3.1 LWR-Brennelemente

Kriechen

Die während der Behältertrocknung und der Zwischenlagerung auftretenden hohen Temperaturen und der Innendruck des Hüllrohres führen zum Kriechen des Hüllrohrmaterials. Die über die Lagerzeit abnehmende Nachzerfallswärme und die damit sinkenden Hüllrohr- und Gastemperaturen führen dazu, dass der Innendruck abnimmt und der Kriechvorgang verlangsamt

wird und ggf. zum Erliegen kommt. Bezüglich des Kriechens sei hierzu auf die ausführliche Darstellung in Kapitel 2.2.1 verwiesen. Die Analysen zum Innendruck in Kapitel 3.2.1 des vorliegenden Berichts veranschaulichen die zeitliche Entwicklung des Innendrucks während verlängerter Zwischenlagerzeiten.

In Genehmigungsverfahren für bestehende Zwischenlager der trockenen Zwischenlagerung von LWR-Brennelementen wurde nachgewiesen, dass ein systematisches Hüllrohrversagen nicht zu unterstellen ist. Der Nachweis zeigt, dass die durch das Kriechen verursachte Tangentialdehnung des Hüllrohres zum Ende der ursprünglich vorgesehenen 40 Jahre Lagerzeit den Wert von 1 % nicht überschreitet /LEB 09/. Die Temperaturfeldberechnungen in Kapitel 3.2.1 zeigen maximale Brennelementtemperaturen von ca. 150 °C nach 40 Jahren Lagerzeit. In diesen Temperaturbereich ist von keinen thermisch induzierten Kriechvorgängen mehr auszugehen, so dass dieser systematische Versagensmechanismus nicht weiter betrachtet wird.

Wissenslücken

Unter athermischem Kriechen versteht man Kriechvorgänge unter Umfangsspannungszuständen und sehr niedrigen Temperaturen bis hin zur Raumtemperatur. Bisher gibt es jedoch keine Evidenz oder vorliegende Daten für Zirkonlegierungen zu Kriechdehnung und Kriechraten, die bestätigen, dass dieser Vorgang im Zuge der während der verlängerten Zwischenlagerung auftretenden Parameter stattfinden könnte. Vielmehr ist athermisches Kriechen nur für Titan und Titanlegierungen überliefert. Aufgrund der gleichen Kristallstruktur von Titan und Zirkon könnte man Rückschlüsse ziehen, dass vielleicht auch Zirkonlegierungen diesem Effekt unterliegen /DOE 19/. Um ein athermisches Kriechen zu bewerten, sind entsprechende Daten zu generieren, welche die wissenschaftlichen Grundlagen der Annahmen im Nachweis darlegen, dass der Vorgang für Zirkonlegierungen nicht zum Tragen kommen kann.

Oxidation des Hüllrohres

Die Oxidation des Brennstabhüllrohres im Reaktor ist durch den Temperaturbetriebsbereich und die dafür vorgenommene Brennstabauslegung begrenzt auf einen Wert von 100 µm. Alle Brennstäbe, welche diesen Wert überschreiten oder Oxidschichtabplatzungen aufweisen, gelten als Defektstäbe und werden gesondert behandelt. Mit einer Oxidschichtdicke von maximal 100 µm ist der Eingangsparameter für die Zwischenlagerung quasi definiert und garantiert. Mit der Einhaltung des Restfeuchte Kriteriums bei der Abfertigung des Behälters wurde gewährleistet, dass das Hüllrohr in den initial geplanten 40 Jahren Zwischenlagerung nicht in unzulässig hoher Weise oxidieren kann, so dass die Integrität gefährdet wäre. Für die Lagerung über die 40 Jahre hinaus ist unter Berücksichtigung der inerten Behälteratmosphäre und der

Dichtheit des Behälters auch weiterhin keine unzulässige Oxidation zu unterstellen, so dass dieser Versagensmechanismus in den weiterführenden Betrachtungen nicht weiterverfolgt wird.

Strahlungsverhärtung/-versprödung und Ausheilung

Mit zunehmender Lagerdauer bzw. bei einer Verlängerung der Zwischenlagerung wird das Hüllrohr integral einer höheren Strahlung ausgesetzt, als es bei einer 40-jährigen Lagerzeit der Fall ist. Durch die Strahlung können Fehlstellen und Versetzungen im Material zusammenwachsen, und es kommt zu einer Verfestigung des Materials und einer damit einhergehenden Abnahme der Duktilität. Beim Einsatz im Reaktor ist das Hüllrohr einer integralen Neutronenfluenz ausgesetzt, die die Fluenz im Lagerbehälter um mehrere Größenordnungen übersteigt /DOE 19/. Die Alteration der Materialeigenschaften infolge von Strahlung findet folglich vorrangig zu Beginn der Lebensgeschichte des Hüllrohres statt und ist auch Bestandteil der Auslegung bzw. Genehmigung. Der Effekt konkurriert mit dem gegenläufigen Effekt der temperaturbedingten Ausheilung von Strahlenschäden, welcher eine erhöhte Duktilität und gesteigertes Kriechvermögen hervorruft. Auch in diesem Fall treten die in der Literatur angegebenen relevanten Temperaturniveaus von über 330 °C zu Beginn der Zwischenlagerung oder bei der Trocknung auf /DOE 19/. Mit der steten Abnahme der Temperatur und der durch die Aktivität hervorgerufenen Strahlung erscheinen beide Effekte nicht relevant für die verlängerte Zwischenlagerung.

Wissenslücken

Es kann nicht abschließend konstatiert werden, dass sowohl die Strahlungsverhärtung bei langen Lagerzeiten oder das Ausheilen bei langen Standzeiten auf niedrigem Temperaturniveau in so geringem Maße stattfinden, dass sich keine mikroskopischen Effekte ergeben, die Auswirkungen auf die makroskopischen Materialeigenschaften haben. Zeitstandversuche bei sehr langsam ablaufenden Prozessen sind schwierig zu realisieren, und beschleunigte Vorlaufversuche geben in diesem speziellen Fall nicht unbedingt die Realität wieder und können somit zu falschen Rückschlüssen führen. Eine Möglichkeit besteht hier, sich der Thematik über grundlagenwissenschaftliche Ansätze anzunähern und über diesen Weg die fehlenden Erkenntnisse zu generieren.

Versprödung des Hüllrohres durch Wasserstoff

Die mögliche Versprödung des Hüllrohres durch Hydridreorientierung wurde in seiner Komplexität bereits Kapitel 2.2.1 beschrieben. Die wesentlichen Treiber der Wasserstoffreorientierung sind neben dem aus dem Reaktorbetrieb stammenden Wasserstoffgehalt, die Maximaltemperatur bei der Abfertigung/dem Beginn der Zwischenlagerung und die über die im

Brennstab befindliche Gasmenge gekoppelten Innendrucke/Umfangsspannungen. Die daraus resultierende Versprödung tritt auf, wenn die Hüllrohrtemperatur im weiteren Verlauf der Zwischenlagerung die für die jeweilige Parameterkombination (Material, Wasserstoffgehalt, Maximalspannung etc.) spezifische Spröbruchübergangstemperatur unterschreitet. Aus der dargestellten Thematik zur Wasserstoffreorientierung und der Versprödung ergeben sich drei mögliche Konsequenzen oder Ansatzpunkte für Optionen verschiedener Maßnahmen:

1. Verringerte Duktilität bei der Handhabung und dem Transport nach verlängerter Zwischenlagerung aufgrund hoher Anfangstemperaturen und -spannungen während der Abfertigung/Trocknung
2. Verringerte Duktilität bei der Handhabung und dem Transport nach verlängerter Zwischenlagerung durch Unterschreiten der Spröbruchübergangstemperatur mit der Zeit
3. Hypothetischer Integritätsverlust des Hüllrohres und Spaltgasfreisetzung in den Behälter während der Zwischenlagerung

Maßnahmen in der Zwischenlagerung

Dem Umstand der verringerten Duktilität bei Handhabung und Transport aufgrund hoher Anfangstemperaturen und Spannungen während der Abfertigung/Trocknung kann man für bereits abgefertigte und beladene Brennelemente nicht mehr begegnen. Es ist jedoch davon auszugehen, dass gerade Brennelemente mit höheren mittleren Endladeabbränden und erhöhten Spaltgasfreisetzungsraten vermehrt in der jüngeren Vergangenheit angefallen sind und sich ein größerer Teil u. U. noch in der Nasslagerung befindet. Eine mögliche Option wäre, für diese noch abzufertigen Brennelemente und zugehörigen Behälter zu prüfen, ob sich schonendere Prozeduren Anwendung finden lassen, bei denen die Temperaturen und folglich die Innendrucke/Umfangsspannungen die kritischen „Reorientierungsschwellwerte“ nicht überschreiten, aber trotzdem noch das Trocknungskriterium erfüllt werden kann.

Der zweite Ansatzpunkt zielt darauf ab, ein Unterschreiten der Spröbruchübergangstemperatur zu vermeiden. Grundvoraussetzung ist eine möglichst genaue Kenntnis der Spröbruchübergangstemperatur für das eingelagerte Material und des zeitlichen Verlaufs der Temperatur im Behälter. Sind die Voraussetzungen erfüllt, so wäre man in der Lage, rechtzeitig zwei verschiedene Maßnahmen einzuleiten. Die erste mögliche Maßnahme wäre ein Aufheizen des Behälters durch eine Manipulation der Wärmeabfuhr oder durch aktive Maßnahmen, wie das Aufbringen eines Heizmantels. Als zweite Möglichkeit könnte der Behälter vor dem Erreichen der Spröbruchübergangstemperatur, also u. U. deutlich früher als eigentlich vorgesehen, zu einer Konditionierungsanlage abtransportiert werden.

Im dritten Szenario würde es während der Zwischenlagerung oder aber während des Transports zur Konditionierungsanlage zum Integritätsverlust eines oder mehrerer Hüllrohre und zur Freisetzung von Spaltgas in den Behälter kommen. Nach dem aktuellen Stand von Wissenschaft und Technik ist dieser Vorfall ohne eine Gasprobenahme oder eine Öffnung des Behälters nicht nachweisbar und bleibt ohne diese Maßnahmen unerkannt. Das Versagen einzelner Hüllrohre wird in den Genehmigungsverfahren der Zwischenlager bereits betrachtet und stellt dort kein sicherheitstechnisches Problem dar.

Maßnahmen in der Konditionierung

Wenn ein potenzieller Duktilitätsverlust infolge des Unterschreitens der Spröbruchübergangstemperatur derart ausgeprägt ist, dass ein Handhabungsvorgang in der Konditionierungsanlage zu einer Beschädigung der Brennelemente führen kann und wenn dieser Zustand unbedingt vermieden werden soll, so besteht die Option keine weiteren Handhabungsvorgänge in der Konditionierungsanlage mehr vorzunehmen. Die Brennelemente würden folglich im TLB verbleiben, und dieser müsste als Endlagerbehälter fungieren. Für die nachfolgenden Endlagerbetrachtungen müsste der Aspekt der geänderten Materialeigenschaften des Hüllrohres bei der Kreditierung der Umschließungen des Brennstoffes berücksichtigt werden. Als weitere Option besteht die Möglichkeit, technische Vorkehrungen zum Erhitzen der Brennelemente zu treffen oder eine Handhabungstemperatur in der Anlage einzustellen, die über der Spröbruchübergangstemperatur liegt.

Im Falle einer früheren Anlieferung der Behälter und Brennelemente – bevor die Spröbruchübergangstemperatur erreicht wird – ist primär eine frühere Bereitstellung der Konditionierungsanlage notwendig. Es besteht die Möglichkeit, dass die Brennelemente anschließend infolge der sich ändernden Wärmeabfuhrbedingungen ihre Spröbruchübergangstemperatur während des Entladens oder Umverpackens unterschreiten. Auch für diesen Fall kann es wieder eine Option sein, technische Vorkehrungen zum Erhitzen der Brennelemente zu treffen oder eine Handhabungstemperatur in der Anlage einzustellen, die über der Spröbruchübergangstemperatur liegt. Als Konsequenz der Maßnahme der früheren Anlieferung und Umverpackung in der Konditionierungsanlage würde der beladene Endlagerbehälter bei noch nicht bereitstehendem Endlager deutlich länger als vorgesehen im Puffer-/Eingangslager des Endlagers verweilen, was im Prinzip einer weiteren Zwischenlagerung gleichkommt. Ein Teil der Hüllrohre könnte in der Folge im Puffer-/Eingangslager oder im Endlager die Spröbruchübergangstemperatur unterschreiten. Maßgeblich ist dabei die Lagerkonfiguration der Brennstäbe/Brennelemente je nach Endlagerkonzept und die thermischen Randbedingungen im jeweiligen Endlagerbehälter. Eine Schädigung der Hüllrohre in den Folgeschritten nach der

Konditionierung ist für die Fälle zu betrachten, in denen bei der Radionuklid(RN)-Mobilisierung im Endlager Kredit vom Hüllrohr genommen wird.

Für den Fall, dass eines oder mehrere Hüllrohre während der Zwischenlagerung einen Integritätsverlust erleiden, ist eine entsprechende strahlenschutztechnische und konzeptionelle Auslegung der Konditionierungsanlage vorzusehen, vor allem auch mit Blick auf die nachzuführenden Behandlungsschritte. Eine Möglichkeit wäre, die betroffenen Brennstäbe zu ziehen und zu verkapseln, ggf. könnten auch ganze Brennelemente gekapselt werden. Die sich daraus ergebenden Designanpassungen für den Endlagerbehälter sind in den Planungen zu berücksichtigen. Hinsichtlich der RN-Mobilität im Endlager verringert sich für die defekten Hüllrohre die Instant Release Fraction um den entwichenen gasförmigen Anteil im Brennstab und bei der Kreditierung der Umschließungen sind die Verkapselungen neu zu bewerten. Eine weitere nicht näher spezifizierbare Möglichkeit des Umgangs mit defekten Brennstäben und Brennelementen ist der Einsatz chemischer, physikalischer oder mechanischer Anwendungen und Umwandlungsverfahren zur Überführung in einen den Annahmebedingungen entsprechenden spezifizierten Zustand. Da die Annahmebedingungen für ein Endlager für hochradioaktive Abfälle derzeit nicht existieren, kann auch nicht weiter auf die möglichen Behandlungsmethoden eingegangen werden. Für den Fall, dass aber z. B. die Struktur der Brennstäbe und des Brennstoffes wesentlich verändert werden, ergeben sich signifikante Änderungen hinsichtlich der RN-Mobilität im Endlager.

Wissenslücken

Wie aus den Ausführungen ersichtlich wird, basieren die Maßnahmen zur Adressierung der Hüllrohrversprödung durch Wasserstoff auf einer umfassenden Kenntnis der auslösenden und ablaufenden Prozesse. Um auf diesem Gebiet valide Aussagen auf Basis der Simulation und Bewertung einzelner Brennelemente zu ermöglichen, ist es unerlässlich, Wissenslücken auf mehreren Ebenen zu schließen. Es ist erforderlich, die Herstellungsdaten der Brennelemente zu kennen, insbesondere hinsichtlich ihrer Geometrie und des Füllgasdrucks. Von besonderer Wichtigkeit sind zudem die Daten zur Betriebshistorie der Brennelemente. Dazu zählt neben dem mittleren Endladeabbrand auch die Kenntnis der während des Einsatzes besetzten Positionen sowie die Information über die Fahrweise der einzelnen Zyklen. Nur so lassen sich genaue Abbrandrechnungen durchführen, Nachzerfallsleistungen bestimmen und Spaltgasfreisetzungsraten berechnen. Weiterhin müssen die Beladepläne der Behälter bekannt sein. Die Kenntnis des Wasserstoffgehalts der Brennstäbe bzw. Brennelemente ist wesentlich und falls dieser nicht gemessen wird, sollte er über bestmögliche Analysen bestimmt werden. Ebenso sollten die thermischen Analysen beladener Behälter nach best-estimate Verfahren ausgeführt werden, da Konservativitäten bei der Bestimmung der Maximaltemperatur und der Bestim-

mung des Zeitpunktes des Unterschreitens der Spröbruchübergangstemperatur Unsicherheiten mitbringen.

Bestehende Brennstabcodes müssen hinsichtlich der verlängerten Zwischenlagerung ertüchtigt werden, insbesondere müssen spezifische mechanische Materialkennwerte und Wasserstoffmodelle hinterlegt werden, die das Verhalten und die Auswirkungen des Wasserstoffs im Hüllrohr abbilden. Möglich ist das nur, wenn eben diese bestehenden Datenlücken identifiziert und durch Experimentalprogramme an bestrahlten Proben der richtigen Materialien adressiert werden.

Abfallmatrixdegradation

Die Brennstoffmatrix von Leichtwasserreaktorbrennstäben kann durch zwei Effekte alterieren. Der radioaktive Zerfall und die dabei emittierte Strahlung, insbesondere Alphazerfälle und -strahlung, führen zu Versetzungsschäden im Metallgitter, die sich in einer Expansion der Gitterparameter niederschlagen. Auf makroskopischer Ebene schwillt das Pellet an. Das Anschwellen der Pellets kann, wie in Kapitel 3.2.1 dargestellt, zum Spaltschluss und zu einer mechanischen Interaktion zwischen Pellet und Hüllrohr führen, wodurch ein Festkörperdruck auf das Hüllrohr ausgeübt wird, der zu erhöhten Spannungen führen kann.

Das durch die Alpha-Zerfälle gebildete Helium sammelt sich in den Körnern, an Korngrenzen und an Fehlstellen und ändert somit die Struktur des Brennstoffs. Das Helium kann zu einem gewissen Anteil auch in das freie Volumen des Brennstabs freigesetzt werden, wo es die gesamte Gasmenge vergrößert und sich somit erhöhend auf den Gasinnendruck und die Umfangsspannung auswirkt. Die dabei verbliebenen Poren, Mikroblasen und Freisetzungspfade erhöhen die Oberfläche innerhalb der Brennstoffmatrix.

Maßnahmen in der Zwischenlagerung

Der radioaktive Zerfall kann grundsätzlich nicht durch menschliche Handlungen unterbunden werden. In einem ersten hypothetischen Szenario würde es ohne Gegenmaßnahmen entweder infolge eines zu hohen Festkörperdrucks, hervorgerufen durch das Pelletschwellen, oder infolge eines zu hohen Gasinnendrucks, hervorgerufen durch die Heliumfreisetzung, während der Zwischenlagerung oder aber während des Transports zur Konditionierungsanlage zum Integritätsverlust eines oder mehrerer Hüllrohre und zur Freisetzung von Spaltgas und evtl. auch von Brennstoff in den Behälter kommen. Nach dem aktuellen Stand von Wissenschaft und Technik ist dieser Vorfall ohne eine Gasprobenahme oder eine Öffnung des Behälters nicht nachweisbar und bleibt ohne diese Maßnahmen unerkannt. Ferner besteht die Möglichkeit, dass es zu einer Gasfreisetzung in das Hüllrohr und zu einer Vergrößerung der Oberfläche innerhalb der Abfallmatrix kommt, ohne dass das Hüllrohr versagt. Dieser Zustand ist auch

bei einer Behälteröffnung nicht identifizierbar, hat in den weiteren Betrachtungen aber nur Auswirkungen auf die RN-Mobilität im Endlager.

Im zweiten Ansatz kann darauf abgezielt werden, den Behälter und die Brennelemente vor dem Erreichen kritischer Spannungsparameter, also u. U. deutlich früher als eigentlich vorgesehen, zur Konditionierungsanlage abzutransportieren. Grundvoraussetzung wären möglichst genaue Kenntnisse über die zeitlichen Verläufe des Schwellvorgangs und der Heliumfreisetzung. Dabei sind Abhängigkeiten von Brennstoff und Abbrand sowie geometrische und mechanische Reserven des Hüllrohres zu berücksichtigen.

Maßnahmen in der Konditionierung

Für den Fall, dass eines oder mehrere Hüllrohre während der Zwischenlagerung einen Integritätsverlust erleiden, ist eine entsprechende strahlenschutztechnische und konzeptionelle Auslegung der Konditionierungsanlage vorzusehen, vor allem auch mit Blick auf die nachzuführenden Behandlungsschritte. Eine Möglichkeit wäre, die betroffenen Hüllrohre zu ziehen und zu verkapseln, ggf. könnten auch ganze Brennelemente gekapselt werden. Die sich daraus ergebenden Designanpassungen für den Endlagerbehälter sind in den Planungen zu berücksichtigen. Hinsichtlich der RN-Mobilität im Endlager verringert sich für die defekten Hüllrohre die Instant Release Fraction um den entwichenen gasförmigen Anteil im Brennstab und bei der Kreditierung der Umschließungen sind die Verkapselungen neu zu bewerten. Auch hier besteht wieder die nicht näher spezifizierbare Möglichkeit des Umgangs mit defekten Brennstäben und Brennelementen mit dem Einsatz chemischer, physikalischer oder mechanischer Anwendungen und Umwandlungsverfahren zur Überführung in einen den Annahmebedingungen entsprechenden spezifizierten Zustand. Da die Annahmebedingungen derzeit nicht existieren, kann auch nicht weiter auf die möglichen Behandlungsmethoden eingegangen werden. Für den Fall, dass aber z. B. die Struktur der Brennstäbe und des Brennstoffes wesentlich verändert werden, ergeben sich signifikante Änderungen hinsichtlich der RN-Mobilität im Endlager.

Im Falle einer früheren Anlieferung der Behälter und Brennelemente – bevor ein Pelletschwellen oder eine Heliumfreisetzung die Integrität des Hüllrohres gefährden würde – ist eine frühere Bereitstellung der Konditionierungsanlage notwendig. Als Konsequenz der Maßnahme der früheren Anlieferung und Umverpackung in der Konditionierungsanlage würde der beladene Endlagerbehälter bei noch nicht bereitstehendem Endlager deutlich länger als vorgesehen im Puffer-/Eingangslager des Endlagers verweilen, was im Prinzip einer weiteren Zwischenlagerung gleichkommt. Ein Teil der Hüllrohre könnte in der Folge im Puffer-/Eingangslager oder im Endlager durch das Pelletschwellen oder den Heliumdruckaufbau versagen. Der

eventuelle Eintrittszeitpunkt sollte bei Kenntnis aller Randbedingungen und Eingangsparameter und unter Zuhilfenahme noch zu validierender Modelle – Ausführungen hierzu finden sich im folgenden Abschnitt Wissenslücken – aber bestimmbar sein und sich in die weiteren Konzeptionen einbinden lassen. Eine Schädigung der Hüllrohre in den Folgeschritten nach der Konditionierung ist für die Fälle zu betrachten, in denen bzgl. der RN-Mobilisierung im Endlager Kredit von Hüllrohr genommen wird.

Wissenslücken

Bezüglich des strahlungsinduzierten Pelletschwellens bestehen noch auf verschiedenen Ebenen Wissenslücken, welche eine voll umfängliche Bewertung der Thematik und belastbare Aussagen derzeit nicht erlauben. Bezüglich der Mechanismen, wie das Pellet mit dem Hüllrohr interagiert, ist nicht vollständig geklärt, ob es bei Spaltschluss zu einer starren Verbindung und folglich zu einem aufgeprägten Festkörperdruck kommt oder ob zum Beispiel ein das Pellets über einen visko-elastischen Ansatz berücksichtigt werden muss. Bisher geht z. B. Tespa-Rod beim Pellet von einem starren unverformbaren Körper aus. Das ist für kurze Transienten (Störfälle) ausreichend. In der Zwischenlagerung ist dies aufgrund der langen Zeiträume ein konservativer Ansatz. Hier könnte es aufgrund von dauerhaft auf das Pellet einwirkenden Kräften (bei Spaltschluss) zu einer Verschiebung von Pelletbruchstücken (relocation) oder zu einer Verformung des Pellets kommen. In beiden Fällen könnten sich so niedrigere Hüllrohrumfangsspannungen ergeben. Die Wissenslücken sollte durch geeignete Experimente geschlossen werden und die Ergebnisse müssten in die bestehenden Programme zur Simulation des Brennstabverhaltens in der verlängerten Zwischenlagerung Eingang finden.

Da das eigentliche Schwellen von der Aktivität des Brennstoffes abhängt, ist wie bereits erwähnt, eine genaue Kenntnis der Brennstoffzusammensetzung – hier ist insbesondere MOX zu beachten – und der Leistungsgeschichte mit dem erreichten Zielabbrand, insbesondere auch dem maximalen lokalen Abbrand, notwendig. Diese Parameter, sowie die zugrundeliegenden Brennstababmessungen sind ebenfalls notwendig, um mit Brennstabprogrammen etwaige geometrische Reserven zu bestimmen, welche im Zuge des Schwellvorganges aufgebraucht werden und somit den Zeitpunkt der ersten Interaktion zwischen Pellet und Hüllrohr mitbestimmen. Der Schwellvorgang im Pellet muss innerhalb des Brennstabprogrammes mit entsprechend validierten Modellen abgebildet werden. Hierin besteht eine weitere Unsicherheit, da die wesentlichen bisher generierten experimentellen Erkenntnisse zu strahlungsinduzierten Schwellraten nicht auf bestrahlten Proben beruhen, sondern auf unbestrahltem Urandioxid als Basismaterial, welches mit dem kurzlebigen Alphastrahler Pu-238 vermischt wurde /RON 12/, /RON 13/, /HUM 15/, /RAY 15/. Die Vermischung mit einem kurzlebigen Alphastrahler wie Pu-238 stellt einen vorseilenden Versuch dar, da man binnen kurzer Zeit eine Anzahl

von Strahlenschäden akkumulieren kann, wie sie sonst erst nach mehreren Jahrzehnten auftreten. Eine Übertragbarkeitsbetrachtung der Ergebnisse auf die Aspekte der verlängerten Zwischenlagerung wurde seitens der GRS mit folgendem Ergebnis durchgeführt. Die Übertragbarkeit der gewonnenen Ergebnisse und Erkenntnisse auf Brennstoffe aus Kernreaktoren ist nicht ohne weiteres gegeben. Verbrauchte Kernbrennstoffe weisen Verunreinigungen, gesonderte Oxidphasen, Spaltgasblasen, Brüche und Risse auf, welche als Senken oder Freisetzungspfade für das Helium agieren. Weiterhin finden sich gerade bei hoch abgebrannten Brennstoffen Bereiche mit unterschiedlicher Härte, Porosität und Korngröße, wie es z. B. zwischen der Hochabbrandstruktur am Pelletrand und dem Zentralbereich der Fall ist. MOX-Brennstoffe verfügen als Besonderheit zum Teil über Pu-reiche Zonen, welche schneller ausbrennen und eine höhere Spaltgasbildung erfahren, wodurch die Heterogenität der Matrix zusätzlich erhöht wird. Durch die beschriebenen Eigenheiten kommt es zur Veränderung der makroskopischen Eigenschaften des Brennstoffes, wie z. B. Wärmeleitfähigkeit, Härte, thermisch- oder strahlungsinduzierte Ausdehnung. Rückschlüsse auf die Auswirkungen der Pellet-Hüllrohr-Wechselwirkung, welche durch das Anschwellen des Brennstoffes über längere Zwischenlagerzeiten hervorgerufen werden kann, lassen sich deshalb nur unzureichend über Untersuchungen an analogen oder unbestrahlten Brennstoffen ziehen /HUM 15/. Von anderer Seite wird die Auffassung vertreten, dass ein weiteres Schwellen nach dem Einsatz im Reaktor unwahrscheinlich ist, da die strahlungsinduzierten Gitterschäden schon im Reaktor ihren Sättigungszustand erreichen. Somit seien aus unbestrahlten Materialien gewonnene Korrelationen nicht anwendbar bzw. nicht gerechtfertigt /SED 21/. Die Frage zur Übertragbarkeit muss folglich abschließend wissenschaftlich adressiert werden. Mithilfe einer Erweiterung der Datenlage durch die Entwicklung von Verfahren und Experimenten, die beschleunigte Versuche mit bestrahlten Proben zulassen, kann dies gelingen.

Defekte Brennstäbe

Defekte oder als defekt deklarierte Brennstäbe aus Leistungsreaktoren (z. B. infolge zu hoher Oxidschichtdicken oder Verformungen) werden in Köcher verpackt, welche getrocknet, inertisiert und verschweißt werden. Die Köcher haben die Abmessungen eines Brennelementes und passen in die Tragkörbe des CASTOR® V/19 und des CASTOR® V/52. Die ersten Köcher sind in der jüngsten Vergangenheit verpackt worden. Für die Zwischenlagerung ergeben sich durch die Auslegung und gasdichte Ausführung keine nachteiligen Effekte. Hinsichtlich der Konditionierung und Endlagerung werden die Behandlungsoptionen durch das Endlagerkonzept und die respektiven Annahmebedingungen bestimmt.

3.3.2 WWER-Brennelemente

WWER-Brennelemente gleichen hinsichtlich der Materialien und den vorherrschenden Effekten in vielen Aspekten den LWR-Brennelementen. Die Ausführungen zum Kriechen, zur Oxidation, zur Strahlungsverhärtung/-versprödung und Ausheilung sowie zur Abfallmatrixdegradation bei LWR-Brennelementen sind deshalb auch für WWER-Brennelemente gültig und sollen hier der Übersichtlichkeit halber nicht nochmal aufgeführt werden. Vielmehr soll eine Betrachtung der Unterschiede die noch offenen Punkte herausstellen. Die Versprödung der Hüllrohre durch die Hydridreorientierung wurde bereits in Kapitel 3.2.2 durch die thermischen Analysen und einen Parametervergleich ausgeschlossen.

Mögliche negative Einflüsse in der verlängerten Zwischenlagerung sind durch den Sonderfall des Vorhandenseins von Defektstäben, deren Brennstoff im Betrieb mit Wasser in Kontakt gekommen ist, und den Einsatz der wasserabsorbierenden Zeolithe möglich. Der Einsatz von Zeolithen ist in der Industrie wie in der Kerntechnik bekannt und erprobt. Zeolithe sind strahlenbeständig und absorbieren auch Spaltprodukte. Die Regenerationstemperatur liegt bei 350 bis 400 °C. Auch im Bereich langer Lagerzeiten mit sinkenden Temperaturen ist ein Freisetzen des gebundenen Wassers eher unwahrscheinlich, aber nicht endgültig ausgeschlossen.

Folgende potenzielle Aspekte hypothetischer Art sind demnach bei den WWER-Brennelementen hervorzuheben:

- Durch das Restwasser in den Defektstäben und potenziell freiwerdendes Wasser aus den Zeolithen ist die Reaktion von Wasser mit dem Kernbrennstoff möglich. Der Kernbrennstoff mit den Spalt- und Actinoidprodukten ist dann einem Oxidationsprozess unterworfen. Je nach Wassermenge kann der Brennstoff schwellen und aus der Hülle in den Schachtraum austreten. Der Brennstab kann sich dabei erheblich verformen, was für eine spätere Handhabung zu Problemen führen kann.
- Bei der Einlagerung bereits defekte Brennstäbe setzen nur noch wenige Spaltprodukte frei, da diese bereits vor der Einlagerung entwichen sind. Der potenzielle Einfluss der möglicherweise freigesetzten Spaltprodukte auf Dichtungssysteme bzw. Materialien und Komponenten innerhalb des Behälters ist gering, aber nicht auszuschließen.
- Das Restwasser zersetzt sich durch den Radiolyseprozess. Dabei wird unter Einfluss von ionisierender Strahlung die chemische Verbindung des Wassers aufgebrochen und es entstehen Wasserstoff und OH-Radikale. Dabei kann es zu Reaktionen mit dem Brennelementmaterial wie auch den Behälterkomponenten kommen.

Durch Radiolyse von Restwasser und die Voroxidation der Brennstoffmatrix könnten sich im Hinblick auf die RN-Mobilität im Endlager erhöhte Korrosionsraten ergeben.

Maßnahmen in der Zwischenlagerung

Zum Erhalt der Handhabbarkeit wäre der vorzeitige Abtransport in die Konditionierungsanlage, vor Eintritt von

- a) unzulässigen oder problematischen Dimensionsänderungen,
- b) unzulässigen chemischen Reaktionen der entstehenden oder freiwerdenden Gase mit Behälter- und Brennelementkomponenten.

Die Grundvoraussetzung hierfür ist eine Verifikation des Vorhandenseins der jeweiligen Effekte und die möglichst genaue Kenntnis über die zeitlichen Abläufe.

Ferner besteht eventuell die Möglichkeit, im Sinne des Alterungsmanagements ein Monitoring in Form einer Gasbeprobung an ausgewählten Behälter vorzunehmen, um weitere Erkenntnisse über die Zustände im Behälter zu generieren und Maßnahmen abzuleiten.

Maßnahmen in der Konditionierung

Die WWER-Brennelemente stellen per se dahingehend einen Sonderfall dar, dass bereits defekte Brennelemente vorliegen. Wenn also WWER-Brennelemente für eine Umverpackung in der Konditionierungsanlage vorgesehen sind, so ist dies von Beginn an in die Auslegung einzubeziehen. Eine Möglichkeit wäre, die betroffenen Brennelemente zu kapseln. Die sich daraus ergebenden Designanpassungen für den Endlagerbehälter sind in den Planungen zu berücksichtigen. Hinsichtlich der RN-Mobilität im Endlager verringert sich für die defekten Hüllrohre die Instant Release Fraction um den entwichenen gasförmigen Anteil im Brennstab, und bei der Kreditierung der Umschließungen sind die Verkapselungen neu zu bewerten.

Eine weitere nicht näher spezifizierbare Möglichkeit des Umgangs mit defekten Brennstäben und Brennelementen ist der Einsatz chemischer, physikalischer oder mechanischer Anwendungen und Umwandlungsverfahren zur Überführung in einen den Annahmebedingungen entsprechenden spezifizierten Zustand. Da die Annahmebedingungen derzeit nicht existieren, kann auch nicht weiter auf die möglichen Behandlungsmethoden eingegangen werden. Für den Fall, dass aber z. B. die Struktur der Brennstäbe und des Brennstoffes wesentlich verändert werden, ergeben sich signifikante Änderungen hinsichtlich der RN-Mobilität im Endlager.

Wissenslücken

Um die Thematik der defekten WWER-Brennelemente und die daraus möglicherweise resultierenden Effekte hinsichtlich einer verlängerten Zwischenlagerung umfassend adressieren zu können, ist es wichtig, genauere Informationen über das Verhalten der exponierten Brennstoffmatrix hinsichtlich des Schwellverhaltens und der Freisetzung von Gasen zu generieren. Hierzu sind sicherlich experimentelle Untersuchungen ein geeignetes Mittel.

Die Menge des verfügbaren Wassers im Behälter sollte mit Blick auf die Oxidation ebenfalls bestimmt werden. Dazu gehört die Bestimmung des initial im Behälter verbliebenen Wassers, bestenfalls herzuleiten über die Dokumentation, ebenso wie eine Erhebung über das von den Filterkerzen zurückgehaltene Wasser.

Das Langzeitrückhaltevermögen der Filterkerzen ist daher zu verifizieren oder der potenzielle Grad an Wiederfreisetzung von Wasser über einen längeren Zeitraum zu bestimmen. Die Kenntnis der Menge an verfügbarem Wasser und der Menge und Zusammensetzung freigesetzter Gase erlaubt im letzten Schritt die Ableitung von Korrosionsraten und Schädigungswahrscheinlichkeiten für verschiedene Behälterkomponenten.

3.3.3 THTR/AVR

THTR- bzw. AVR-Brennelementkugeln sind im Aufbau und im Verhalten wenig vergleichbar mit anderen Brennelementen. Der Brennstoff ist mit verschiedenen Schichten aus Pyrokohlenstoff oder Siliziumcarbid umgeben, die wiederum in Graphit gebettet und eingeschlossen sind. Damit wird für die Rückhaltung der Spaltprodukte gesorgt. Für die Lagerung wurden keine abschätzenden Berechnungen der Temperaturentwicklung über die Zeit angestellt, da die geringen Nachzerfallswärmeleistungen (< 100 Watt nach zehn Jahren pro Kanne) keine Indizien für temperaturgetriebene Effekte vermuten lassen. Zudem sind Effekte, die zu einer systematischen Schädigung der Abfallmatrix und der Edelstahlkanne führen, bisher nicht festgestellt worden. Ebenso sind die mechanischen Belastungen der Brennelemente in der Lagerung gering. Da jedoch alle Analysen mit Unsicherheiten behaftet sind, soll im Folgenden eine Betrachtung verschiedener Ereignispfade erfolgen, die jedoch lediglich hypothetischen Charakter besitzen.

Gasansammlung im Graphit

Für die Brennelementkugeln sind aufgrund der bisherigen Erkenntnisse folgende Effekte zu betrachten:

- Mobilisierbares Aktivitätsinventar liegt als an der Oberfläche gebundene und in der Matrix verteilte Aktivität vor.
- C-14 wird durch den eingeschlossenen Sauerstoff der Kanne durch Oxidation und durch Diffusion frei.
- Ein Druckaufbau ist durch die vorliegenden Spalt- und Aktivierungsgase nicht gegeben.
- Der eingeschlossene Sauerstoff in der Kanne wird bei der Oxidation verbraucht.
- Kr-85 ist als Spaltprodukt aus dem Brennstoff, aber auch in geringem Anteil durch Brennstoffkontamination des Graphits bei der Herstellung, als Freisetzungsgas zu erwarten. Ein Krypton-Anteil stammt von der Diffusion des Spaltprodukts Kr-85 aus Defektpartikeln.
- Als weiteres tritt Tritium (H-3) in Form von HTO auf, das sich in der Kannenatmosphäre ausbreitet. Die Feuchte allein der eingeschlossenen Luft bzw. der im Graphit vorhandenen Feuchte bewirkt in der Zwischenlagerung die Tritium-Reaktion.

Die Kannen sind normalerweise mit einer Elastomer-Dichtung verschlossen. Die Freisetzung in die Kannenatmosphäre betrifft auch die Behälteratmosphäre, da die Kanne mit den Elastomer-Dichtungen nur bedingt eine Rückhaltefunktion hat. Es ist eine latente Freisetzung der Spaltgase durch die Barrieren unter den Bedingungen der Zwischenlagerung innerhalb der Kanne möglich. Damit wird eine frühe Freisetzung bestimmter gasförmiger Radionuklide realisiert. Dies gilt auch für die Kannen, die zwar vordergründig einen dichten Einschluss darstellen, aber bezogen auf die Dauer der Zwischenlagerung keine dichte Umschließung garantieren kann. Der Behälter mit dem Doppeldeckeldichtungssystem garantiert die Dichtheit. In der Zwischenlagerung ist kein Effekt bekannt, der zu einem Versagen von Brennstoffpartikeln und deren Umschließungen führen kann.

Es existieren Kugeln, die eine erhöhte Feuchte aufweisen. Diese sind in Kannen untergebracht, die gasdicht verschweißt sind. Damit wird der Übergang von Radiolysegas und korrosiven Produkten aus der Kanne in die Behälteratmosphäre verhindert.

Maßnahmen in der Zwischenlagerung

Mögliche Optionen für die Zwischenlagerung zeichnen sich für die Brennelementkugeln nicht ab bzw. wurden zum Teil bereits im Vorfeld getroffen. Die Freisetzung durch Diffusion aus

intakten Brennelementen bzw. Partikeln während der Zwischenlagerung ist vernachlässigbar gering und das in den Brennstoffpartikeln eingeschlossene Aktivitätsinventar ist als nicht freisetzbar anzusehen. Die Freisetzung geringer Anteile von H-3, C-14 und Kr-85 aus der Graphitmatrix in das Kannenvolumen ist nicht zu verhindern. Die Spalt- und Zerfallsgase gehen mit der Zeit unter bestimmten Bedingungen in die Kannenatmosphäre über. C-14 oxidiert mit dem Luftsauerstoff in der Kanne, die H-3 Freisetzung ist vom Feuchtegehalt abhängig und die Kr-85-Freisetzung erfolgt abhängig von bestimmten Temperaturbereichen. Die AVR-Kannen sind normalerweise mit einer Elastomer-Dichtung verschlossen. Damit ist von einem langsamen Übergang der Aktivität in den Behälter für längere Aufbewahrungszeiten auszugehen. Durch die geringen Halbwertszeiten der gasförmigen Hauptnuklide H-3 und Kr-85 mit 12,3 und 10,7 Jahren ist der Übergang an Aktivität limitiert. Im Hinblick auf den Druck haben Leckagetests nach Jahren keine Hinweise auf einen Dichtungsverlust geliefert /NIE 99/. Brennelementkugeln, die mit Wasser in Kontakt getreten sind, wurden separiert, die Kannen mit Helium inertisiert, der Deckel mit Elastomerdichtungen verschlossen und zusätzlich dicht verschweißt. THTR-Kannen sind im Vergleich dazu mit Quetschkupferdichtung verschlossen. Hier ist nicht davon auszugehen, dass die gleichen auftretenden Spalt- und Zerfallsgase aus der Kanne in den Behälter übergehen.

Die Freisetzung von Anteilen an Spalt- und Aktivierungsprodukten in die Kanne und damit in den Behälter während der Zwischenlagerung ist somit möglich, ohne dass die sichere Zwischenlagerung in Frage steht. Der Behälter gewährleistet weiterhin den sicheren Einschluss. Ein signifikanter Druckaufbau ist unter den bisherigen Umständen nicht zu erwarten. Dies hat indirekt auch die Überprüfung der Behälter nach mittlerweile 20 Jahren Lagerzeit ergeben, da keine Ereignisse bezüglich der Drucküberwachung erfolgt sind. Aus Sicht der Zwischenlagerung ergibt sich nach derzeitigem Stand kein Bedarf für Maßnahmen.

Maßnahmen bei der Konditionierung

Für die Konditionierung besteht die Option, die bereits freigesetzten Spalt- und Aktivierungsgase durch das Einbringen in neue Kannen abzutrennen.

Weitere Optionen sind die Verschweißung der Kannen, um eine zusätzliche Barriere von der Kanne zum Behälterinnenraum zu schaffen oder die Kannen in ein Overpack zu stellen, das dann dicht verschweißbar ist.

Wissenslücken

Das reale Freisetzungsverhalten der radioaktiven Nuklide aus den THTR/AVR-Brennelementkugeln ist unbekannt.

3.3.4 Forschungsreaktorbrennelemente

Auf Basis der bisherigen Erkenntnisse zu den sehr geringen Nachzerfallsleistungen, sowie der exemplarischen thermischen Analyse eines CASTOR® MTR3, welche sehr geringe Temperaturen hervorbrachten, kommen temperaturgetriebene Effekte für die Forschungsreaktorbrennstoffe nicht zum Tragen. Vielmehr zeigten die Recherchen, dass oftmals Aspekte aus dem Betrieb und/oder der Nasslagerung einen Einfluss auf die Eigenschaften der Brennelemente hatten, welche nun im Zuge einer verlängerten Zwischenlagerung betrachtet werden müssen. Da dennoch keine zwingenden Indizien für integritätsgefährdende Effekte vorliegen, sind die nachfolgenden Ausführungen nur Betrachtungen hypothetischer Ereignispfade.

Oxidation/Defektfreiheit

Der Oxidationszustand der Brennelemente wird primär durch den Reaktorbetrieb bestimmt und ist nur bis zu einem genehmigten Grenzwert zulässig. Mit der Trocknung und Einhaltung des Restfeuchte Kriteriums bei der Abfertigung des CASTOR® MTR3 wird gewährleistet, dass die Brennelemente in den initial geplanten 40 Jahren Zwischenlagerung nicht in unzulässig hoher Weise oxidieren können, so dass die Integrität gefährdet wäre. Unter Berücksichtigung der inerten Behälteratmosphäre sowie der Dichtheit des Behälters, welche den Zutritt weiteren Wassers quasi ausschließt, kann auch für einen Zeitraum von über 40 Jahren keine unzulässige Oxidation unterstellt werden. Wie bereits im Kapitel 2 ausgeführt, werden korrosive Schädigungen von Forschungsreaktor-Brennelementen mit Aluminiumumschließung vielmehr durch die Bedingungen im Nasslager bestimmt.

Der Nachweis der Defektfreiheit der Brennelemente bei der Einlagerung wird über Sippingtests geführt. Für die Zeit der Zwischenlagerung erfolgt der Nachweis über den Ausschluss eines systematischen Hüllrohrversagens rechnerisch.

Im Hinblick auf die Zeit nach der verlängerten Zwischenlagerung können sich zu einem späteren Zeitpunkt neue Erkenntnisse zur Integrität der Brennelemente ergeben, welche dann neu bewertet werden müssen.

Für solche Betrachtungen wäre es sinnvoll, wenn eine langfristige Dokumentation der Parameter der Nasslagerwasserchemie der jeweiligen Brennelemente aufbewahrt wird.

Versprödung des Brennelements/der Brennelementplatte

Eine mögliche Versprödung des Brennelements oder der Brennelementplatten kann durch Wasserstoff im Hüllrohr oder durch Strahlenschäden verursacht werden. Als Folge kann sich

eine verringerte Duktilität einstellen, die eine Handhabung erschwert oder einen Integritätsverlust bei der Zwischenlagerung oder dem Transport nach sich zieht.

Maßnahmen in der Zwischenlagerung

Während der Zwischenlagerung kann ein Integritätsverlust des Brennelements nur mit einer Behälteröffnung oder einer Beprobung nachgewiesen werden. Wenn eine verringerte Duktilität befürchtet wird, könnten Behälterhandhabungsvorgänge im Zwischenlager, soweit möglich, vermieden werden. Dennoch ist zum Ende der Zwischenlagerung ein Transport durchzuführen, dem Behälterhandhabungsvorgänge vorgelagert sind.

Maßnahmen in der Konditionierung

Ähnlich wie bei den anderen potenziell versprödeten Brennelementen könnte auch für die Forschungsreaktor-Brennelemente auf die Konditionierung bzw. das Umverpacken ausgesetzt werden, wenn die Alteration des Materials bekannt ist. Der TLB müsste dann als Endlagerbehälter fungieren, und bzgl. der RN-Mobilität im Endlager ist eventuell eine veränderte Barrierewirkung zu berücksichtigen.

Im Falle einer Beschädigung der Brennelemente besteht die Möglichkeit, diese zu verkapseln, wodurch eine erneute Bildung einer dichten Umschließung des Brennstoffs gewährleistet werden kann. Im Kontext der RN-Mobilität im Endlager ist bei der Kreditierung der Umschließungen eine Neubewertung der Verkapselungen erforderlich.

Des Weiteren können chemische, physikalische oder mechanische Anwendungen und Umwandlungsverfahren eingesetzt werden, um das Inventar in einen den Annahmebedingungen entsprechenden spezifizierten Zustand zu überführen. Da die Annahmebedingungen derzeit nicht existieren, kann nicht weiter auf die möglichen Behandlungsmethoden eingegangen werden. Für den Fall, dass aber z. B. die Struktur der Brennelemente und Brennstoffe wesentlich verändert wird, ergeben sich signifikante Änderungen hinsichtlich der RN-Mobilität im Endlager.

Wissenslücken

Es kann nicht abschließend dargestellt und bewertet werden, ob und in welchem Ausmaß Versprödungsvorgänge durch Wasserstoff oder Strahlung vorliegen und inwieweit sich hieraus Konsequenzen während der regulären oder verlängerten Zwischenlagerung ergeben. Zur Klärung des Sachverhaltes bedarf es wissenschaftlicher Untersuchungen oder dem Ausschluss per Nachweis durch den Betreiber.

Brennstoffschwellen (und Abfallmatrixdegradation)

Infolge der Ansammlung von Spalt- und Zerfallsgasen in der Brennstoffmatrix kann es zu sog. „Pillowing“ kommen, einem Aufblähen der Brennstoffmatrix, welches u. U. die Integrität der Umschließung gefährden kann. Gleichzeitig vergrößert sich die innere Oberfläche der Abfallmatrix, was primär für die Betrachtungen zur Endlagerung relevant ist.

Maßnahmen in der Zwischenlagerung

Die Bildung von Gasen infolge des radioaktiven Zerfalls kann durch externe Maßnahmen nicht beeinflusst werden. Das Aufblähen der Brennstoffmatrix und eine mögliche Beschädigung der Umschließung können ohne eine Gasprobenahme oder Öffnung des Behälters nicht erkannt werden.

Maßnahmen in der Konditionierung

Die vom Aufblähen u. U. beeinträchtigten Brennelemente können bei der Konditionierung verkapselt werden, so dass eine neue Umschließung den Einschluss des Brennstoffes gewährleistet. Entsprechende Dimensionsänderungen sind in den nachfolgenden Schritten zu berücksichtigen, ebenso wie die neue Barriere bei den Betrachtungen zur RN-Mobilität im Endlager. Wie auch bei der Beschädigung durch Versprödung kann man chemische, physikalische oder mechanische Anwendungen und Umwandlungsverfahren einsetzen, um das Inventar in einen den Annahmebedingungen entsprechenden spezifizierten Zustand zu überführen.

Wissenslücken

Das Aufblähen von Brennstoffplatten ist im Betrieb bekannt und bereits gutachterlich betrachtet. Im Hinblick auf die Zwischenlagerung ist zu klären, ob dieser Effekt im Rahmen der Genehmigung betrachtet wurde und ob der Betrachtungszeitraum auch verlängerte Zwischenlagerzeiträume abdeckt. Falls der Effekt nicht ausreichend adressiert wurde, sollten entsprechende Untersuchungsprogramme aufgesetzt oder Nachweise erbracht werden.

3.3.5 Verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung

Aus den abschätzenden Berechnungen der Temperaturentwicklung über die Zeit in Kapitel 3.2.4 haben sich keine Indizien für temperaturgetriebene Effekte ergeben, die zu einer systematischen Schädigung der Abfallmatrix und der Edelstahlkanne führen. Da jedoch alle Analysen und experimentellen Ergebnisse mit Unsicherheiten behaftet sind, sollen hier verschiedene hypothetische Ereignispfade einer Betrachtung unterzogen werden.

Degradation der Glasmatrix

Die Degradation der Glasmatrix kann durch die Wirkung von Alphastrahlern und sich bildenden Zerfallsgasen hervorgerufen werden. In der Folge sammeln sich die Gase in Mikroblasen, welche bei der Überschreitung einer kritischen Menge aufbrechen können. Dies kann zur Folge haben, dass sich die Rissbildung und der verbleibende Hohlraum vergrößern, was wiederum zu einer Vergrößerung der Glasoberfläche führt.

Maßnahme in der Zwischenlagerung

Dem radioaktiven Zerfall kann in der Zwischenlagerung und generell naturbedingt nicht entgegengewirkt werden. Eine mögliche Option einer Maßnahme wäre das Ausheilen der Glasschädigung aufgrund der Rissbildung. Dazu müsste das Glas in den Kokillen mindestens die Glas-Transformationstemperatur von 502 °C erreichen. Dies könnte durch eine Behinderung der Wärmeabfuhr, eine Isolation, herbeigeführt werden oder durch das Aufbringen eines Heizmantels um die Behälteroberfläche. Es stellt sich jedoch die Frage, ob der notwendige Aufheizvorgang des Behälters technisch durchführbar ist bzw. im Gesamtkontext zulässig ist, da z. B. für die Polyethylen-Moderatorstäbe Temperaturbegrenzungen vorliegen.

Maßnahmen bei der Konditionierung

Bei der Konditionierung bestehen die Optionen darin, entweder die Vergrößerung der Glasoberfläche in Kauf zu nehmen, wenn sich daraus keine gravierenden Auswirkungen für die RN-Mobilität im Endlager ergeben. Alternativ wird versucht die Strahlenschäden auszuheilen bzw. zu entfernen. Eine Ausheilung könnte durch Aufheizen der Kokillen nach dem Entladen aus dem Behälter erreicht werden. Da das Ausheilen die innere Glasoberfläche verringern würde, ist im Endlager eine verminderte Radionuklidmobilisierung bzw. Mobilität zu erwarten. Hierbei ist es jedoch wichtig, die im Falle einer Aufheizung möglicherweise entstehenden Sekundärphasen und deren Auswirkung auf die Radionuklidmobilität zu betrachten /LER 92/.

Wissenslücken

Es besteht die Frage, inwiefern die interne Glasoberfläche nicht schon durch den Abkühlprozess bei der Fertigung definiert ist. Durch die schnelle Abkühlung nach dem Vergießen des Glases in die Kokille kommt es aufgrund der thermischen Spannungen unmittelbar zur Rissbildung im Glaskörper.

Gasansammlung in der Edelstahlkokille

Das durch die Alphazerfälle gebildete Helium kann aus der Glasmatrix entweichen, sich im freien Volumen der Kokille ansammeln und dort zu einem Druckaufbau führen. Bei einer

ausreichend großen Heliummenge könnte der Druckaufbau die Integrität der Kokille gefährden. Auf Basis der Überschlagsrechnungen für die Heliumfreisetzung (vgl. Kapitel 3.2.4), ist kein signifikanter Druckanstieg während der Zwischenlagerung, welcher die Zugfestigkeit der Edelstahlkokille übersteigt, zu erwarten.

Maßnahmen in der Zwischenlagerung

Ein heliumgetriebener Druckaufbau in der Kokille ist während der Zwischenlagerung generell nicht zu detektieren. Bei entsprechender theoretischer Kenntnis der zeitlichen und physikalischen Abläufe eines solchen Vorgangs können verschiedene Optionen verfolgt werden. Zum einen kann der mögliche Integritätsverlust während der Zwischenlagerung in Kauf genommen und die Zwischenlagerung fortgeführt werden, wenn der Behälter weiterhin den sicheren Einschluss gewährleistet. Der weitere Betrieb ist über ein entsprechendes Monitoring und Alterungsmanagement zu gewährleisten. Als alternative Maßnahme kann der Versuch unternommen werden, den beschriebenen Zustand zu vermeiden, indem der Behälter mit Kokillen rechtzeitig in die Konditionierungsanlage abtransportiert und dort umverpackt wird. Dadurch kann eine Gefährdung der Integrität der Kokille verhindert werden. Eine weitere Maßnahme wäre die rechtzeitige Druckentlastung der Kokillen mit anschließender Instandsetzung des Gebindes.

Maßnahmen bei der Konditionierung

Im Falle des Integritätsverlustes der Kokille besteht in der Konditionierungsanlage die Möglichkeit, den Zustand der dichten Umschließung mithilfe eines verschweißten Overpacks wiederherzustellen. Dabei gilt es zu betrachten, dass sich mit einer neuen Umschließung auch neue geometrische Abmessungen ergeben. Diese können sich u. U. negativ auf die Beladbarkeit eines für HAW-Kokillen vorgesehenen Endlagerbehälters auswirken. bzw. diese Option sollte entsprechend in den Planungen berücksichtigt werden.

Ein Overpack ist ebenfalls eine Option, wenn der Integritätsverlust der Kokille erst für den Zeitraum nach der Einlagerung erwartet wird und eine zusätzliche Barriere den Einschluss der Radionuklide gewährleisten soll. Für die weiteren Endlagerbetrachtungen ist bei der Option Overpack von einer neuen Barriere noch zu spezifizierenden Materials auszugehen. Des Weiteren ändert sich für alle Fälle, in denen ein Integritätsverlust auftritt, das Radionuklidinventar, da der freigesetzte Teil bei der Öffnung des Behälters in der Konditionierungsanlage abgesaugt wird.

Wissenslücken

Die real vorliegende temperaturabhängige Freisetzung von Helium aus der Glasmatrix in die Kokille sind nicht bekannt. Ein Erkenntnisgewinn könnte hier durch Experimente mit entsprechenden Surrogaten erfolgen oder durch Probenahmen an realen Kokillen.

Versprödung der Edelstahlkokille

Durch die Einwirkung von Alpha- und Gammastrahlung könnte die Edelstahlkokille verspröden, und es kann die Integrität der Kokille in Mitleidenschaft gezogen werden. Als Folge würden Gase, die sich im freien Kokillenvolumen angesammelt haben, in den Behälter freigesetzt.

Maßnahmen in der Zwischenlagerung und bei der Konditionierung

Die Optionen unterschiedlicher Maßnahmen in der Zwischenlagerung und bei der Konditionierung beim möglichen Integritätsverlust infolge einer Versprödung der Kokille gleichen sich mit dem Szenario Integritätsverlust durch Gasansammlung in der Kokille.

3.3.6 Betrachtungen möglicher Effekte sowie Optionen unterschiedlicher Maßnahmen zum Behälter

Im Folgenden wird noch einmal eine kurze Übersicht hypothetischer Schädigungseffekte am Behälter gegeben und betrachtet, wie diese in der Zwischenlagerung oder bei der Konditionierung adressiert werden oder werden könnten.

Die Degradation der Behälteraußenwand durch Korrosion infolge des Versagens oder des Fehlens der Korrosionsschutzbeschichtung kann durch periodische visuelle Prüfungen erkannt und durch eine Erneuerung der Beschichtung begegnet werden.

Die Beeinträchtigung der Funktionalität der Deckeldichtungen infolge von Relaxationsvorgängen und verminderten Rückstellkräften kann zu erhöhten Leckageraten führen. In der Zwischenlagerung erfolgt die Kontrolle der Funktionalität der Deckeldichtungen durch die Überwachung des Sperrraumdrucks durch Druckschalter. Ferner ist bei Bedarf eine Erneuerung der (Sekundär-) Deckdichtungen möglich bzw. das Reparaturkonzept sieht das Aufbringen eines Fügedeckels zur erneuten Herstellung einer zweiten Barriere vor. Das Thema der Langzeitfunktionalität der Deckeldichtungen wird durch Vorlaufuntersuchungen der BAM adressiert. Die BGZ plant hierzu ebenfalls weitere eigene Untersuchungsprogramme /SCH 21/.

Die Druckschalter des Doppeldeckeldichtheitsüberwachungssystems können durch mechanische, chemische oder elektrische Einwirkungen und Wechsellasten ausfallen. Ein Ausfall ist

durch die Selbstüberwachung detektierbar und die Druckschalter können ausgetauscht werden.

Bolzen und Verschraubungselemente können durch Kriechen und Relaxation an Anzugsmoment verlieren. Prinzipiell sind während der Zwischenlagerung wiederkehrende Prüfungen und ein Austausch möglich. Es gilt aber zu bedenken, dass wiederkehrende Prüfungen in hoher Frequenz aus strahlenschutztechnischen Gesichtspunkten problematisch erscheinen. Manche Schrauben, wie die des Primärdeckels, sind schwer zugänglich und nur mit erheblichem Aufwand zu prüfen. Tragzapfenschrauben sind z. B. mit Silikon versiegelt. Hier bedarf es weiterhin der Abwägung des Sicherheitsgewinns durch die wiederkehrende Prüfung gegenüber den verursachten Schäden an der Versiegelung durch die Prüfung selbst und den Aufwand der Behebung, vor allem auch im radiologischen Sinne.

Die Moderatorstäbe und -platten können durch Strahlungs- und Wärmeeinfluss degradieren, so dass die Moderations- und Abschirmwirkung vermindert wird. Diese Effekte werden zum einen in der Auslegung berücksichtigt, zu anderen werden sie auch durch die stete Abnahme des Quellterms kompensiert. Dies ist wichtig, da die Komponenten nicht oder nur schwierig getauscht werden können, ihre strahlenschutztechnische Funktion aber äußerst relevant ist.

Der Tragkorb gewährleistet Stabilität und eine geordnete Geometrie der Brennelemente im Behälter. Auch er unterliegt während der Lagerung dem Einfluss von Temperatur, Strahlung und während der Handhabung und des Transports auch vermehrt mechanischen Lasten. Der Tragkorb gehört zu den nicht direkt zu inspizierenden Komponenten. Eine Überprüfung des Zustandes erfordert nach aktuellem Stand von Wissenschaft und Technik immer auch die Öffnung des Behälters, was derzeit im Rahmen der Zwischenlagerung nicht möglich ist. Durch die genannten Einwirkungen könnte es zu einer Störung der Geometrie des Tragkorbs kommen. Wenn dieser Fall eintritt, könnten sich ggf. die Brennelemente beim Versuch des Entladens in der Konditionierungsanlage nicht aus dem Tragkorb ziehen lassen. Entsprechende technische Vorkehrungen und Vorrichtungen wären in der Konditionierungsanlage vorzuhalten. Ein Stabilitätsverlust des Tragkorbs bei Transport- und Handhabungsvorgängen kann in der Folge dazu führen, dass auch die Brennelemente beschädigt werden und u. U. festes und gasförmiges radioaktives Material austritt. Dies wäre in der Auslegung der Konditionierungsanlage zu berücksichtigen. Bezüglich des Langzeitverhaltens des Tragkorbs und seiner Materialien, also der Eignung für eine verlängerte Zwischenlagerung, liegen nur in geringem Umfang Informationen vor. Hier erscheint eine Datenerhebung zielführend, und wenn in diesem Bereich Wissenslücken bestehen, könnten experimentelle Programme und Materialuntersuchungen Abhilfe schaffen und die Wissensbasis erweitern.

Isoliert betrachtet, hat der Behälter keine Auswirkungen auf die RN-Mobilität im Endlager, außer er fungiert selbst als Endlagerbehälter.

3.4 Zusammenfassung Zwischenlageranalyse

Bestrahlte Brennelemente aus Leistungs-, Forschungs- und Prototypreaktoren sowie hochradioaktive verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung werden als Konsequenz des Neubeginns der Suche nach einem Endlagerstandort voraussichtlich zumindest in Teilen länger als die eigentlich geplanten 40 Jahre zwischengelagert werden müssen. Im Rahmen dieses Arbeitspakets wurden die möglichen Auswirkungen einer Verlängerung der Zwischenlagerzeit sowohl aus Perspektive der Zwischenlagerung selbst als auch aus Sicht der Endlagerung adressiert, hier speziell in Bezug auf eine mögliche Auswirkung auf die Radionuklidmobilität. Im Hinblick auf mögliche Einflüsse auf die Radionuklidmobilität während bzw. durch eine verlängerte Zwischenlagerung sowie den nachfolgenden Transport- und Handhabungsvorgängen in Vorbereitung auf die Endlagerung ist maßgeblich die Integrität derjenigen Barrieren zu betrachten, die eine Freisetzung von Kernbrennstoffen und Spaltprodukten in den Innenraum des Behälters verhindern.

In diesem Berichtsteil zur Zwischenlageranalyse (siehe Kapitel 3) wurden die möglichen Entwicklungen der verschiedenen Inventare bzw. Inventarkategorien und deren Einflüsse auf die Handhabbarkeit und Konditionierung sowie im Hinblick auf die Radionuklidmobilität benannt und analysiert. Das zu erwartende Verhalten der unterschiedlichen Inventare bzw. Inventarkategorien wurde dargestellt und zusammen mit den zugehörigen Unsicherheiten diskutiert. Dabei wurden insbesondere die untereinander vorherrschenden Abhängigkeiten und Wechselwirkungen aufgezeigt (Ursachen und Wirkungen). Die Grundlage bildeten detaillierte und vereinfachte thermische Analysen für verschiedene Szenarien beladener Behälter sowie Recherchen zur zeitlichen Entwicklung der Aktivität der Brennstoffe.

Darüber hinaus wurden Optionen unterschiedlicher Maßnahmen abgeleitet und deren Auswirkungen auf die Radionuklidmobilität, Handhabbarkeit und Konditionierung, die für die Zeit der verlängerten Zwischenlagerung und der Konditionierung der hochradioaktiven Abfälle zur Einlagerung in ein Endlager relevant sein können, beschrieben. Bestehenden Unsicherheiten wurde durch die Betrachtung hypothetischer Ereignispfade Rechnung getragen und die Wissenslücken benannt.

Als Ergebnis der Zwischenlageranalyse lässt sich zusammenfassend feststellen, dass derzeit keine Hinweise für ein systematisches Versagen von Hüllrohren, Umschließungen oder Barrieren der betrachteten Brennstoffe gefunden wurden. Die thermischen Analysen zeigten über

alle Inventargruppen hinweg Temperaturniveaus, die keine unzulässigen temperaturgetriebenen Effekte und somit keine markanten negativen Einflüsse auf das Materialverhalten während einer verlängerten Zwischenlagerung erwarten lassen. Für die Brennstoffe aus Leistungs- und Forschungsreaktoren wirkt die ionisierende Strahlung, während der (verlängerten) Zwischenlagerung weiter auf Umschließungen ein, jedoch ist das Niveau um Größenordnungen geringer als während der Einsatzzeit im Reaktor. Die zusätzlichen strahlungsinduzierten Auswirkungen auf das Material werden folglich als gering eingeschätzt.

Dennoch wurde eine Reihe hypothetischer Szenarien unter den o. g. Gesichtspunkten für alle Inventargruppen betrachtet, in denen Temperatur und Strahlung, sowie die Auswirkungen des radioaktiven Zerfalls zu einer Beeinträchtigung der Integrität der Umschließungen führen können. Grundsätzlich ist festzuhalten, dass die Auswirkung solcher hypothetischer Szenarien während der Zwischenlagerung derzeit nicht ohne eine Öffnung des Behälters oder eine Beprobung des Behälterinnenraums detektiert werden können. Die wesentlichen Ergebnisse der Betrachtungen sind, dass temperaturinduzierte Effekte, die zeitlich eingeordnet oder abgeschätzt werden können, durch Maßnahmen adressierbar sind. Dabei lassen sich begrenzt Maßnahmen im Zwischenlager vornehmen, oder es besteht die Option, die Inventare vor dem Auftreten des Effekts abzutransportieren und zu konditionieren.

Die infolge des radioaktiven Zerfalls hervorgerufenen Auswirkungen auf die Integrität der Umschließung können zeitlich abgeschätzt, aber naturbedingt nicht aufgehalten werden. Sofern die Auswirkungen nicht hingenommen werden können, besteht nur die Option, die Inventare vor dem Auftreten des Effekts abzutransportieren und zu konditionieren. Für die hypothetischen Fälle eines Integritätsverlusts der Umschließungen ergeben sich in der Konditionierung im Wesentlichen die Optionen einer Umverpackung in eine neue dichte Umschließung. Durch das Entweichen der gasförmigen radioaktiven Stoffe und die neue Umschließung ergeben sich für diese Fälle Auswirkungen auf die Instant Release Fraction und gleichzeitig auf die Radionuklidmobilität im Endlager.

Die identifizierten Wissenslücken sind für alle Inventargruppen spezifisch und vielfältig. Das Spektrum umfasst materialwissenschaftlichen Aspekte, sowie konzeptionelle und technische Aspekte. Hervorzuheben bei den Betrachtungen ist die Randbedingung der bisher nicht festgelegten Annahmebedingungen und die damit einhergehenden Unsicherheiten bezüglich der vorgelagerten notwendigen oder möglichen Behandlungsschritte.

4 Endlageranalyse (Radionuklidmobilisierung im Endlager)

HINWEIS: Die in Kapitel 4 dargestellten Korrosionsraten der Inventare sowie die Freisetzung der Radionuklide spiegeln nicht die tatsächlichen oder prognostizierbaren Größen wider. Das Ziel der vorliegenden Untersuchung ist die Analyse und Darstellung der Auswirkungen, welche durch die Zwischenlagerung beeinflusst werden können, auf die Korrosion der Inventare und eine damit verbundene Mobilisierung der Radionuklide im Endlager. Dazu werden vereinfachte Modelle erstellt und angewendet. Die für die Korrosion von Inventaren relevanten, jedoch nicht durch die Zwischenlagerung beeinflussbaren Größen und Prozesse werden in den vereinfachten Modellen nicht in einer Weise wiedergegeben, die der Realität entspricht. Des Weiteren wird davon ausgegangen, dass beispielsweise die Verfügbarkeit von Wasser unbeschränkt ist und dass die Einstellung eines chemischen Gleichgewichts in Reaktionen unmittelbar erfolgt. Zudem werden Prozesse und Wechselwirkungen, die eine Retardation des Transports bzw. die Immobilisierung von Radionukliden zur Folge haben, nicht berücksichtigt.

4.1 Auswahl und Beschreibung relevanter Einflussfaktoren der Radionuklidmobilisierung aus der Zwischen- und Endlagerung

Relevante Einflussfaktoren aus der Zwischen- und Endlagerung sollen betrachtet werden, die die Radionuklidmobilisierung beeinflussen können. Dazu werden die in Kapitel 2 ausgewählten Endlagerkonzepte sowie die derzeit und zukünftig zwischengelagerten radioaktiven Abfälle berücksichtigt. Die Zwischenlageranalyse (siehe Kapitel 3) beschreibt mögliche Auswirkungen der Zwischenlagerung auf das Inventar. Darauf aufbauend werden im Kapitel 4 mögliche Einflüsse auf die Endlagersicherheit mit dem Schwerpunkt der Radionuklidmobilisierung identifiziert und bewertet.

Die Auswahl der Endlagerkonzepte orientierte sich an den in Deutschland potenziell möglichen Wirtsgesteinen Tongestein, Kristallingestein und Salzgestein. Da Endlagergebäude für radioaktive Abfälle im Schweizer Konzept den in Deutschland zu erwartenden Endlagergebäuden ähnlich ist, wurde für die Darstellung eines Endlagers im Tongestein das Schweizer Konzept ausgewählt. Als Referenzkonzept für ein Endlager in kristallinem Wirtsgestein wurde das skandinavische KBS-3 Konzept Schwedens gewählt. Für ein Referenzkonzept in Salzgestein wurde auf das Konzept der Vorläufigen Sicherheitsanalyse Gorleben (VSG) mit POLLUX-Behältern zurückgegriffen (Referenzen zu den Konzepten siehe /SVE 11d/, /SVE 11e/, /SVE 11c/, /WEY 17/, /Xie et al. 2012/).

Bezüglich der radioaktiven Abfälle wurde von einer direkten Endlagerung³ von bestrahlten Brennelementen in Endlagerbehältern bzw. die Endlagerung von verglasten Abfällen aus der Wiederaufbereitung ausgegangen. Der radioaktive Zerfall ist eine zeitabhängige Größe und

³ D.h. bestrahlte Brennelemente werden nicht aufgearbeitet, sondern nach der Bestrahlung zwischengelagert und anschließend endgelagert.

die Aktivität nimmt mit der Zeit ab. Aus dem StandAG wird ein sicherer Einschluss der Abfälle bis zu 1 Mio. Jahre vorgegeben und bildet den hier adressierten Zeithorizont (siehe u. a. Kapitel 4.1.4).

Die folgenden Faktoren definieren den Rahmen für ein Szenario: Für eine mögliche Mobilisierung von Radionukliden müssen Korrosionsprozesse der jeweiligen Matrix, d. h. des Brennstoffs und Glases, in der die Nuklide gebunden sind, erfolgen. Dies impliziert, dass das Fluid und die darin gelösten Reaktionspartner in Kontakt mit der Matrix treten, wodurch Mobilisierungsprozesse ermöglicht werden. Dazu ist es erforderlich, dass die Behälter und gegebenenfalls auch das Hüllrohr als Barriere ausfallen. Letzteres wird in Kapitel 4.2.1 beschrieben und bewertet.

Relevante Einflussfaktoren, auch bzgl. verwendeter Korrosionsmodelle (Kapitel 4.2.2 und 4.2.3), zur Radionuklidmobilisierung sind der Temperaturverlauf⁴ im jeweiligen Endlager, die Verfügbarkeit eines Lösungsmediums (Fluids) und die Aktivität (ggf. Alpha-Leistung) des Inventars (Abb. 4.1). Es wird die Korrosion der Behältermaterialien, Glasmatrix und Brennstoffmatrix isoliert betrachtet, weitere mögliche Wechselwirkungen und Sekundärprodukte werden nicht berücksichtigt.

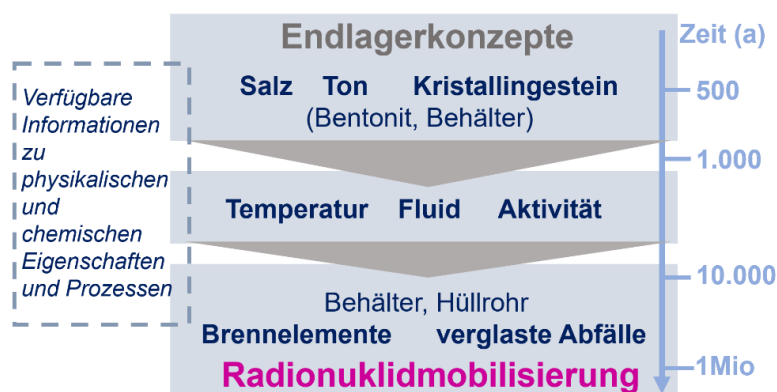


Abb. 4.1 Schematische Darstellung der relevanten Einflussfaktoren zur Radionuklidmobilisierung

⁴ Die Wärmeleistung der Abfälle wird bei den jeweiligen Endlagerkonzepten bei Temperaturfeldberechnungen berücksichtigt und ein zeitlicher Temperaturverlauf bestimmt (siehe Kapitel 4.1.2).

4.1.1 Prinzipien zur Modellierung der Radionuklidmobilität

Die Betrachtung der Radionuklidmobilität im Endlager unterscheidet zwischen Prozessen, die die Radionuklide aus ihrer Matrix (im Nahfeld) freisetzen können und Prozessen, die Radionuklide im und aus dem einschlusswirksamen Gebirgsbereich (im Fernfeld) in die Biosphäre transportieren können (/TIL 08/ und die darin enthaltenen Referenzen). Die Unterscheidung ist bedingt dadurch, dass physikalische und chemische Wirkungen von Wärme und Strahlung des Abfalls bzw. des Inventars auf das Nahfeld beschränkt sind /KLI 80/.

Für dieses Vorhaben sind mögliche Auswirkungen der vor der Endlagerung vorangestellten (längerfristigen) Zwischenlagerung auf die Radionuklidmobilität von Interesse. Hierfür sind vor allem die Prozesse und Parameter – insbesondere die von der Zwischenlagerung beeinflussbaren – im unmittelbaren Nahfeld für die Freisetzung der Radionuklide aus den Inventaren (Quellterm) von Bedeutung. Dies geschieht durch eine Betrachtung der Radionuklidfreisetzung durch Korrosionsprozesse (siehe Kapitel 4.2.2 und 4.2.3). Eine Betrachtung des Transportes der Radionuklide im Fernfeld ist nicht Bestandteil dieses Vorhabens.

Im Folgenden werden die Prinzipien einer vollständigen Modellierung der Radionuklidmobilität in einem Endlager skizziert, um deren Verständnis zu fördern. Für eine vollständige Analyse der Radionuklidmobilität werden in der Regel drei gekoppelte Arten von Modellen genutzt:

- Modelle, die den Quellterm und damit das Nahfeld bestimmen
- Migrationsmodelle basierend auf hydrogeologischen Parametern, die den Weg der Radionuklide im Fernfeld beschreiben
- Modelle zur Strahlendosisbestimmung

Die Bestimmung des Quellterms hängt stark von der Art (chemische Zusammensetzung/Temperatur und Aktivität) des eingelagerten Abfalls ab und wird für verschiedene Arten von Abfällen im Detail in Kapitel 4.1.4 behandelt. Die Migration von Radionukliden durch die Geosphäre wird dominiert durch Parameter, die hauptsächlich vom Wirtsgestein, den geochemischen Bedingungen sowie den hydrogeologischen Eigenschaften des Endlagerstandortes abhängen.

Die im Weiteren beschriebenen Transportvorgänge werden mittels numerischer Techniken zu den direkten Lösungen der Differentialgleichungen oder analytischer Modelle, welche Lösungen für vereinfachte Formen der Vorgänge darstellen, gelöst. Die Aussagekraft der Ergebnisse numerischer Modelle ist maßgeblich von der Qualität der Eingangsparameter abhängig, so

dass eine Übertragung der Ergebnisse auf verschiedene Wirtsgesteine nicht ohne Weiteres möglich ist. Analytische Modelle sind auf vereinfachte Darstellungen beschränkt, in denen Randbedingungen wie Homogenität oder nur ein geringer Grad an Heterogenität des Wirtsgesteins angenommen werden können /TIL 08/. Auf einige vereinfachte Modelle, welche für die Verfügbarkeit von Fluid im Nahfeld herangezogen werden, wird in Kapitel 4.1.3 für die ausgewählten Wirtsgesteine eingegangen. Es folgt eine nicht erschöpfende Zusammenfassung der allgemeinen Konzepte für Transportvorgänge.

Der Transport von Radionukliden durch die Geosphäre wird bestimmt, indem der Grundwasserfluss in und aus einem Endlagerbergwerk modelliert wird, der bei der Modellierung des Nahfeldes das Lösungsmedium zur Verfügung steht und unter dessen Einfluss die Korrosionsprozesse stattfinden. Dabei muss für den Massentransport die Sorption am Gestein und damit eine effektive Retardation des Transportes im Vergleich zum Grundwasserfluss beachtet werden. In beiden Transportprozessen gibt es erhebliche Unterschiede zwischen zerklüfteten und porösen Medien /DUG 77/, /TIL 08/.

Die Bewegung von Radionukliden im Grundwasser wird durch zwei Konzepte beschrieben, deren Parameter hauptsächlich vom konkreten Endlagerstandort und dem Wirtsgestein abhängen – Grundwasserfluss und Radionuklidtransport – wobei der Grundwasserfluss in jedem Fall genau bekannt und modelliert sein muss, bevor die Transportgleichung gelöst werden kann. Im Folgenden werden diese zwei Konzepte skizziert:

- *Grundwasserfluss*: Darcys Law beschreibt den Fluss in Abhängigkeit der hydraulischen Konduktivität und dem Druckgradienten, beides Terme, die standortspezifisch getestet und bestimmt werden /TIL 08/. Weitere Details zu den Parametern der Flussberechnung und der Verfügbarkeit von Fluid sind in den Rahmenbedingungen (siehe Kapitel 4.1.3) beschrieben.
- *Radionuklidtransport*: Wenn ein lokales Gleichgewicht der gelösten Spezies zwischen Wasser und Wirtsgestein angenommen wird, ergibt sich für die allgemeine Massentransportgleichung der Spezies eine Differentialgleichung, welche von der Retardierung, dem radioaktiven Zerfall und dem Fluss (Senken) sowie dem Dispersionstensor (Quelle) abhängig ist. Die wichtigsten Parameter dazu sind Diffusion, Dispersion und der Verteilungskoeffizient (Sorptionskoeffizient), deren Abhängigkeiten im Weiteren zusammenfassend beschrieben werden. Wie bei der Berechnung der Flussparameter sind diese Terme abhängig vom Wirtsgestein, aber auch von der Dichte des Mediums und dem standortspezifischen Druck /TIL 08/.

Diffusion und Dispersion: Der Dispersionstensor ist eine Kombination aus molekularer Diffusion und mechanischer Dispersion. Molekulare Diffusion hängt vom Temperatur- und Konzentrationsgradienten ab und wird durch das Fick'sche Gesetz beschrieben. Dispersion beschreibt die mechanische Vermischung gelöster Bestandteile in porösem Medium. In einheitlich porösen Medien dominieren in der Regel die Dispersionsprozesse über die Diffusionsprozesse. Da die Dispersion jedoch vom Durchfluss abhängt, kann – bei sehr geringen Strömungsgeschwindigkeiten – die molekulare Diffusion dominieren. Experimentell im Labor gemessene Dispersivitäten, in der Größenordnung von Millimeter bis Zentimeter, können in einem Transportmodell die Ausbreitung stark unterschätzen. Auf der Größenskala eines Aquifers⁵ scheint es, dass die Heterogenitäten in Permeabilität, Bruch, Schichtung und anderen Eigenschaften des Mediums für die Erzeugung von dispersivem Verhalten wichtiger sind als das Mischen um einzelne Körner und Poren /EVE 80/, /AND 79/. Diese können mit Tracern und anderen standort-spezifischen Studien bestimmt werden. Beispielsweise liegen gemessene Werte für die laterale Dispersivität in den Größenordnungen von $1\text{E}-2$ m in alluvialen Grundwasserleitern und bis $1\text{E}+2$ m in Schiefergneis /EVE 80/.

Sorption und Verteilungskoeffizient: Die Beschreibung der Sorptionsvorgänge umfasst die Interaktion des Fluids mit dem Wirtsgestein und den geochemischen Barrieren, die dazu führen, dass die Radionuklide langsamer wandern als das Grundwasser selbst und hängt sowohl von der chemischen Zusammensetzung des Wassers und der Gesteine als auch von der Zeit ab. Die am weitesten verbreitete Verwendung der Sorption in der Grundwassermodellierung erfordert die Annahme, dass alle chemischen Spezies, im Wasser und im Gestein, im Gleichgewicht sind. Die Retardierung hängt in dem Fall von der Porosität und der relativen Radionuklidkonzentration auf dem Gestein zur Wasserkonzentration ab – dem Verteilungskoeffizienten K_d . Dazu ist ein detailliertes Verständnis der geochemischen Mechanismen der Wasser-Gestein-Wasser-Wechselwirkungen für jedes Radionuklid entscheidend. Distributionskoeffizienten können sich für verschiedene Radionuklide und Gesteinsarten über mehrere Größenordnungen erstrecken /TIL 08/.

4.1.2 Temperatur

Im Endlager spielt die Temperaturentwicklung über die Zeit für einige Prozesse, insbesondere die der Korrosion der Inventare und Behältermaterialien und den dabei ablaufenden chemi-

⁵ Grundwasserleitende Schicht

schen Reaktionen, eine maßgebliche Rolle (siehe Kapitel 4.2). Ein Endlagerkonzept berücksichtigt u. a.

- die Art des eingelagerten Abfalls (Inventar),
- die konkrete Beladung der Endlagerbehälter,
- den Abstand zwischen den Endlagerbehältern sowie
- die thermischen Eigenschaften des Wirtsgesteins und der (geo-)technischen Barrieren,

um die Anfangstemperatur und den Temperaturverlauf günstig zu beeinflussen. Durch eine Begrenzung der Temperatur der Endlagerbehälteroberfläche werden sowohl negative als auch positive Effekte im Wirtsgestein und den (geo-)technischen Barrieren im möglichst optimalen Bereich gelegt (mehr Details zu Temperatureffekten im Endlager in /GRS 19/).

Im Nachfolgenden werden die Temperaturfeldberechnungen, deren zeitlicher Verlauf und einige relevante Parameter der jeweiligen drei Referenzkonzepte für Salz-, Ton- und Kristalline Gestein wiedergegeben.

4.1.2.1 Salz

Im Rahmen der VSG wurden Temperaturfeldberechnungen für das Referenzkonzept in Steinsalz durchgeführt. In Abb. 4.3 sind die Ergebnisse der Berechnungen für die Zeit nach dem Einlagerungsbeginn im Feld Ost für die Inventare der LWR, DWR_{mix}- und WWER-Brennelemente sowie der verglasten hochaktiven Abfälle (CSD-V) dargestellt /BOL 12/. Die Behälterbeladung für DWR_{mix} besteht aus 89 % UO₂ und 11 % Mischoxid-Brennstäben.

Der Temperaturanstieg ist erst nach Verfüllung der Schächte dargestellt. Die mit DWR_{mix} beladenen Behälter weisen mit ca. 200 °C (P3) nach etwa 60 Jahren die höchste Temperatur auf. Die Behälter mit WWER-Brennelementen erreichen nach ca. 100 Jahren eine Höchsttemperatur von 80 °C (P2) und die CSD-V-Behälter nach ca. 30 Jahren eine Höchsttemperatur von 150 °C (P1).

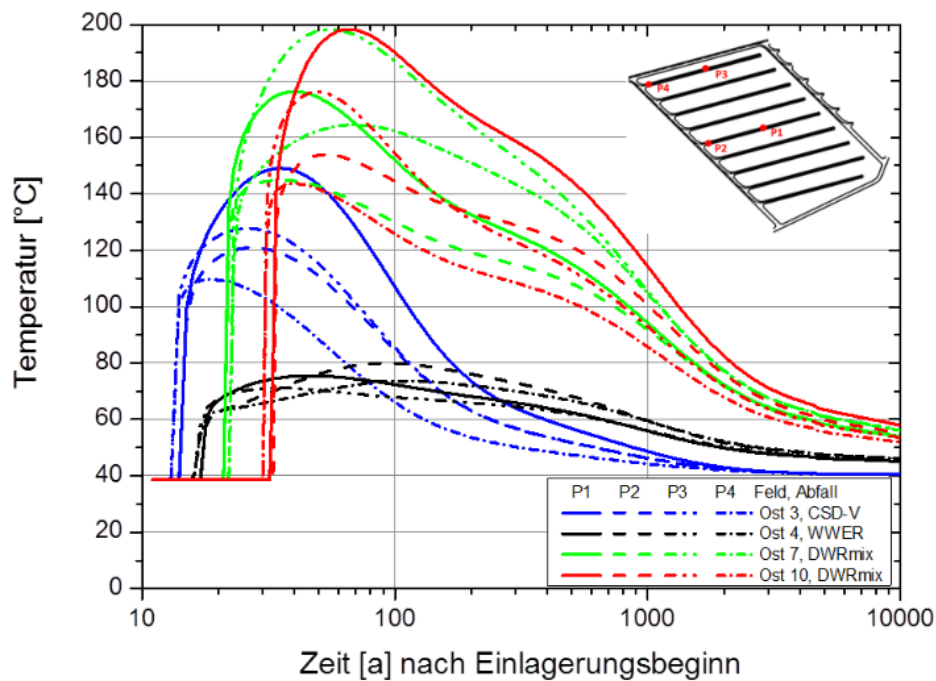


Abb. 4.2 Temperaturentwicklung ausgewählter Behälter in Abhängigkeit der Zeit nach Einlagerungsbeginn /BOL 12/

Die Gebirgstemperatur beträgt bei 840 m Tiefe ca. 38 °C bei einer Wärmeleitfähigkeit des Wirtsgesteins von ca. 5 W/m K. Die Wärmeleistung eines Behälters beträgt dabei bei Einlagerung maximal 20 kW. Je nach Einlagerungskonzept werden Abstände von ein bis fünf Metern für direkt benachbarte Behälter und 15 bis 36 m zu Behältern in Nachbarstrecken angegeben. Etwa 10.000 Jahre nach Beginn der Einlagerungszeit sind die Temperaturen auf 40 °C und 60 °C gesunken.

4.1.2.2 Ton

/JOH 02/ berechnete den Temperaturverlauf an der Grenzfläche zwischen Behälteroberfläche, beladen mit bestrahlten Brennelementen und verglasten hochaktiven Abfällen (CSD-V), und dem unmittelbar angrenzenden Bentonit unter Berücksichtigung der thermischen Eigenschaften von Opalinuston in einer Teufe von 650 m. Es wird von einer initialen Gebirgstemperatur von 38 °C, Tunnelabständen von 40 m und Behälterabständen von 3 m ausgegangen. Die Wärmeleitfähigkeit von trockenem Bentonit beträgt ca. 0,4 W/m K, während die Wärmeleitfähigkeit von vollständig gesättigtem Bentonit ca. 1,35 W/m K beträgt. Jedoch ist eine vollständige Sättigung des direkt an den Behälter angrenzenden Bentonits aufgrund seiner geringen hydraulischen Leitfähigkeit und den hohen Temperaturgradienten nicht zu erwarten.

Sowohl die Endlagerbehälter mit bestrahlten Brennelementen als auch mit CSD-V erreichen ca. zehn Jahre nach Verschluss des Endlagers ihre maximale Temperatur. Die Temperatur des Bentonits an der Behälteroberfläche hängt stark von dessen Wärmeleitfähigkeit ab, welche wiederum von der Dichte und dem Wassergehalt des Bentonits abhängt. Bei einem initialen Wassergehalt von ca. 2 % des Bentonits, liegt bei beiden Inventartypen die maximale Behältertemperatur zwischen 140 und 160 °C. Während die Temperatur der CSD-V-Endlagerbehälter innerhalb von 100 Jahren auf 80 °C absinkt, behalten Behälter mit bestrahlten Brennelementen Temperaturen von über 100 °C für fast 1.000 Jahre. Um die geochemischen Eigenschaften des Bentonits nicht negativ zu beeinflussen und die Barrierefunktion des Bentonits zu gewährleisten, soll in diesem Endlagerkonzept die äußere Hälfte der Bentonitummantelung unter 125 °C bleiben.

Die Abb. 4.3 zeigt die Temperaturentwicklung im Nahfeld der Behälteroberfläche nach 10, 100 und 1.000 Jahren für Behälter mit einer Wärmeleistung zum Zeitpunkt der Einlagerung von 1.490 W (bei Beladung mit 3 UO₂-Brennelementen und 1 MOX-Brennelement aus DWR) und 688 W (bei Beladung mit CSD-V). Diese Wärmeleistung entspricht einer Zwischenlagerdauer von ca. 40 Jahren. Für beide Inventartypen liegt die Temperatur in einem Abstand von ca. 0,75 m von der Behälteroberfläche jederzeit unter 100 °C.

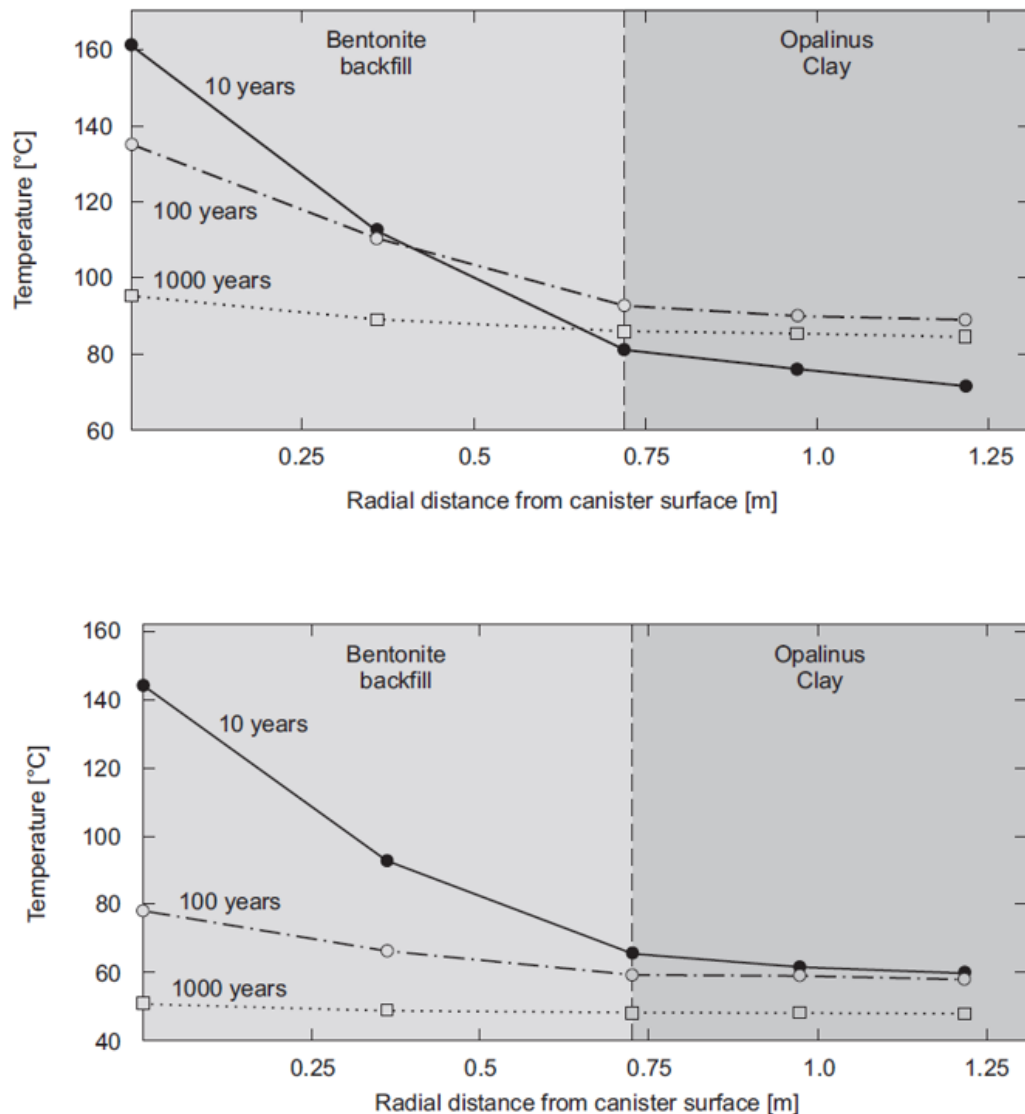


Abb. 4.3 Temperaturverlauf im Ton in direkter Umgebung des Endlagerbehälters. Die Wärmeleistung beträgt 1.490 W (bestrahlte Brennelemente, oben) und von 688 W (CSD-V, unten) nach 10, 100 und 1.000 Jahren /JOH 02/

4.1.2.3 Kristallin

/SKB 04/ fasst die Ergebnisse der Temperaturfeldberechnungen für das schwedische Endlagerkonzept in Kristallingestein zusammen. Abb. 4.4 zeigt die Temperaturverläufe für die einzelnen Materialien bzw. Komponenten des Endlagerkonzepts bis zu 10.000 Jahre nach dem Verschluss des Endlagers. Für die Berechnungen wurde eine Wärmeleitfähigkeit des Wirtsgesteins von 3,4 W/m K, eine Gebirgstemperatur von 12 °C bei 400 m Tiefe und eine initiale Wärmeleistung eines Behälters von 1.700 W (beladen mit vier Brennelementen) angenommen. Die Abstände zwischen den Behältern betragen 6 m und die der Tunnel 40 m. Eine

maximale Temperatur der Behälteroberfläche von ca. 110 °C wird nach ca. 10 Jahren erreicht. Die Temperatur fällt nach 10.000 Jahren auf ca. 20 °C ab.

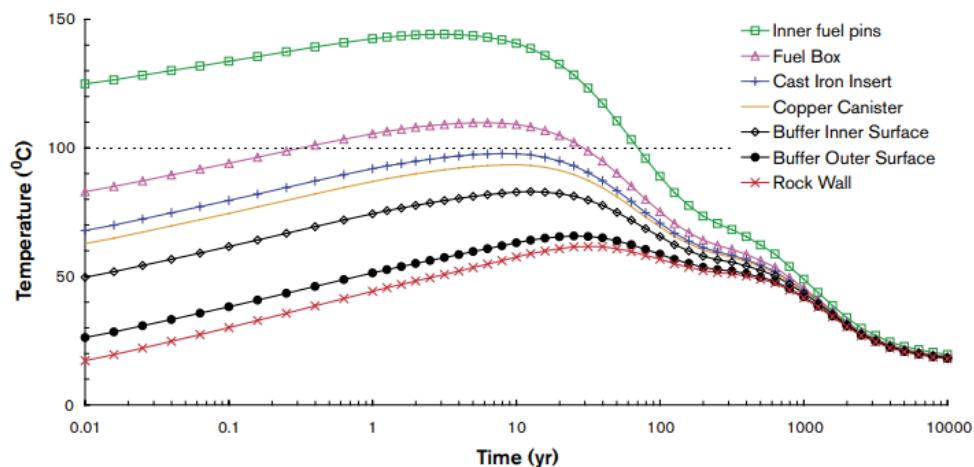


Abb. 4.4 Temperaturverlauf über die Zeit nach der Einlagerung der Behälter mit bestrahlten Brennelementen für die einzelnen Komponenten /SKB 04/

4.1.3 Verfügbarkeit und Zusammensetzung des Lösungsmediums

Die Verfügbarkeit eines Lösungsmediums (auch Fluid) im Endlager ist der wichtigste Faktor für das Ablaufen korrosiver Prozesse an den metallischen Barrieren sowie für den Transport der Radionuklide aus den Inventaren (Korrosion der Inventare und Barrieren, siehe Kapitel 4.2).

Im Folgenden erfolgt eine kurze Erläuterung der potenziellen Senken, in denen ein migrierendes oder perkolierendes Fluid im Endlager gebunden werden kann. Des Weiteren wird ein Überblick über die chemischen Eigenschaften der im jeweiligen Wirtsgestein vorhandenen Fluide gegeben. Basierend auf den in der Literatur verfügbaren und hier dargestellten hydrogeologischen Parametern der Wirtsgesteine erfolgt in Kapitel 4.2 (Korrosion in Abhängigkeit von der Verfügbarkeit von Wasser) eine vereinfachte Abschätzung der im Endlager verfügbaren Fluidmengen, welche für Korrosionsprozesse relevant sind.

Für die Betrachtung der für die Korrosion verfügbaren Fluidmengen sind zwei Aspekte von entscheidender Bedeutung: Erstens die von Natur aus im Wirtsgestein oder in der geotechnischen Barriere vorhandenen Flüssigkeitsmengen. Die im Wirtsgestein Ton bzw. Salz vorliegenden Restfeuchtigkeiten sind für die Betrachtung der Korrosionsprozesse von untergeordneter Bedeutung, da sie in der Regel nur eine geringe Menge an Flüssigkeit enthalten, welche

nicht ausreicht, um Korrosionsprozesse zu initiieren, welche die Integrität der Behälter gefährden könnten.

Des Weiteren ist ein Transport von Flüssigkeiten in die unmittelbare Nähe des Behälters im Laufe der Zeit möglich. Die Menge der transportierten Flüssigkeiten ist maßgeblich von der Wirtsgesteinsformation sowie der Auslegung des Endlagers abhängig. In der Planungsphase eines Endlagers wird darauf geachtet, die Flüssigkeitsmengen in Behälternähe möglichst gering zu halten. Ein vollständiger Ausschluss eines Flüssigkeitskontakts ist jedoch nicht möglich. Da in Deutschland bislang weder der Standort noch die genaue Auslegung eines Endlagers festgelegt wurden, können aktuell lediglich Annahmen über die Flüssigkeitsmengen in Behälternähe getroffen werden. Für die in Kapitel 4.2 beschriebenen Prozesse wird konservativ angenommen, dass stets ausreichend Flüssigkeit vorhanden ist, um potenzielle Korrosionsprozesse zu ermöglichen.

Die verfügbare Fluidmenge wird primär durch die initial im Nahfeld eingeschlossenen Flüssigkeiten determiniert, wobei hier insbesondere das Versatzmaterial sowie das unmittelbare Wirtsgestein bei Salz und Ton zu nennen sind. Sekundär hängt sie von der Perkolation von Flüssigkeiten aus dem Fernfeld in Richtung des Behälters ab.

Senken, in denen ein migrierendes bzw. perkolierendes Fluid im Endlagersystem gebunden werden kann, sind

- Wiederaufsättigung des Wirtsgesteins (v. a. entlang der Auflockerungszone),
- Aufsättigung von Versatzmaterial,
- Korrosion von Barrieren (siehe Kapitel 4.2.1) und
- Korrosion der Inventare (siehe Kapitel 4.2.2 und 4.2.3).

Ungestörtes Steinsalz ist im Gegensatz zu Ton- und Kristallingestein für Fluide undurchlässig. Die Perkolation in Tonstein und Kristallin hängt u. a. von Art und Anzahl von Klüften (v. a. bei Kristallin), der (effektiven) Porosität des Wirtsgesteins, der Eigenschaften des Buffers/Versatzmaterials sowie von der Dichte, der Viskosität und chemischen Zusammensetzung des Fluids ab. Die Zusammensetzung der initialen Porenwasser bzw. Fluideinschlüsse ist u. a. von der Genese der Wirtsgesteine und deren geologischen Geschichte, sowie der Zusammensetzung der Wirts- und Nebengesteine selbst abhängig. Die initiale Gesteinszusammensetzung kann insbesondere bei Sediment- und Evaporitgestein (Ton und Salz) lokal, im Bereich weniger Meter bis Zentimeter, stark variieren. Im Weiteren werden die Eigenschaften des Fluids

insbesondere im Nahfeld auch von externen Faktoren, die vom Endlagerkonzept vorgegeben werden, bestimmt (z. B.: der verwendeten Materialien und dem Auffahren des Endlager-Bergwerks). In Tab. 4.1 ist für beispielhafte Standorte die chemische Zusammensetzung der Porenwasser für die jeweiligen Wirtsgesteine gelistet⁶. Die Daten aus der Literatur sind Orientierungswerte, um die in Kapitel 4.2 dargestellten Experimente und beschriebenen Prozesse besser einschätzen zu können.

Die Verfügbarkeit von Lösungsmedium im Endlager kann stark vereinfacht über den Volumenstrom $\dot{V}$ abgeschätzt werden. Dieser ist mittels der Abstandsgeschwindigkeit v_a , der Porosität n_e sowie der durchströmten Fläche wie folgt definiert (siehe Gl. (4.1)).

$$\dot{V} = v_a \cdot n_e \cdot A \quad (4.1)$$

Tab. 4.1 Eigenschaften von Porenwassern und Fluideinschlüssen in Salz, Ton /MÄD 09/, /PEA 02/, /CUR 02/ und Kristallin /ARC 06/ /SKB 15/ sowie Bentonit (Versatzstoff, /PEA 02/, /ARC 06/)

Konzentration der Ionen in mol/L

Element	Salz ⁷	Ton	Bentonit	Kristallin
pH	5,5-6,9	7,20 bis 7,24	7,08 bis 7,25	7,1 bis 7,8
Eh [V]	-	-0,167	-	-280 bis -190
CO ₂	-	-2,20	-2,2	-2,42
Na(I)	4,80E-01 bis 4,32E04	(1,622 bis 1,69)E-1	1,69E-1	(4 bis 163)E-3
K(I)	(5,68 bis 9,19)E-01	(2,604 bis 5,65)E-3	1,14E-3	(0,3 bis 35)E-4
Mg(II)	1.04 bis 4.21	(7,48 bis 9,625)E-3	4,97E-3	(0,1 bis 19)E-3
S(VI)	-	2,40E-2	2,94E-2	(0,2 bis 9,4)E-3
S(-II)	-	1,41E-11 bis 1,24E-8	-	(0 bis 1)E-5
Fe(II)	-	(4,33 bis 5,24)E-5	-	-
Cl(-I)	6,39 bis 8,84	1,60E-1	1,53E-1	2,7E-3 bis 1,53E-1

Die Abstandsgeschwindigkeit v_a des Fluids im Gestein ist von der hydraulischen Leitfähigkeit des porösen Mediums k_f , dem hydraulischen Gradienten i und der (effektiven) Porosität n_e abhängig (siehe Gl. (4.2)):

⁶ Die Eigenschaften und Zusammensetzung der Fluide lassen sich nicht auf Wirtsgesteine gleichen Typs in anderen Lokalisationen übertragen.

⁷ Basierend auf Salzlösungen, die zur Modellierung eines Endlagers in Salzgestein verwendet werden /Xie et al. 2012/.

$$v_a = \frac{k_f \cdot i}{n_e} \quad (4.2)$$

Die Porosität ist das Verhältnis von Hohlraumvolumen zum Gesamtvolumen. Die effektive Porosität bezeichnet den Anteil der miteinander verbundenen, und damit einen hydraulischen Transport von Fluiden zulassenden, Poren. Sie stellt für den Strömungs- und Transportprozess eine relevante Größe dar. Der hydraulische Gradient i beschreibt das Grundwassergefälle aus dem Druckhöhenunterschied auf einer betrachteten Fließlänge. Die hydraulische Leitfähigkeit bzw. der Durchlässigkeitsbeiwert (auch Gebirgsdurchlässigkeit) k_f ist abhängig von dem Permeabilitätskoeffizient k , der Fluidichte ρ , der Erdbeschleunigung g und der dynamischen Viskosität μ (siehe Gl. (4.3)).

$$k_f = \frac{k \cdot \rho \cdot g}{\mu} \quad (4.3)$$

In Tab. 4.2 sind die hydrogeologischen Parameter der jeweiligen Wirtsgesteine für die Referenzkonzepte gelistet. Die hydraulische Leitfähigkeit von Bentonit ist um einige Größenordnungen geringer als die des Kristallingesteins, während die von Ton in vergleichbaren Größenordnungen liegt. Ungestörtes Salz ist für Fluide impermeabel. Die in Tab. 4.2 für die hydraulische Leitfähigkeit gegebenen Werte basieren auf Untersuchungen in Bohrlöchern, welche Störungen und Fluidwegsamkeiten im Steinsalz verursachen. Durch die duktilen Eigenschaften von Steinsalz verheilen Klüfte, in Abhängigkeit des Gebirgsdrucks, der Temperatur, initialen Feuchte und Ausmaße der Störung innerhalb von rund 10 bis 1.000 Jahren /GRS 13/, /BGE 22b/. Die Bandbreite der Abstandsgeschwindigkeit für Bentonit ist auf Basis des wirtsgesteinspezifischen, hydraulischen Gradienten, der Porosität und der hydraulischen Leitfähigkeit mithilfe Gl. (4.2) berechnet worden. Anzumerken ist, dass die hier teilweise aus der Literatur verwendete Porosität des Bentonits für den ungesättigten Zustand gültig ist. Die Porosität für mit Wasser gesättigten Bentonit ist aufgrund seiner Eigenschaften geringer und damit auch die zu erwartende Abstandsgeschwindigkeit.

Tab. 4.2 Mögliche Bandbreite relevanter hydrogeologischer Parameter der Wirtsgesteine und der geotechnischen Barriere /BGE 20/

	Salz	#	Ton	#	Kristallin	#	Bentonit (MX-80)	#
Porosität Vol.% (n_e)	< 2	6), 11)	5,3 bis 17,7	9), 11)	0,19 bis 2,9	3), 11)	10 bis 47	1),2)
Hydraulische Leitfähigkeit k_f [m/s]	9,81E-17 bis 2,94E-10	7), 11)	7E-14 bis 1,0E-12	9), 11)	5E-15 bis 1E-1	4), 11)	6,64E-19 bis 2E-14	1),2)
Hydraulischer Gradient i [m/m]	ca. 1E-2	8), 11)	3,6E-4 bis 5E-3	9), 11)	ca. 5E-2	3), 11)	Abh. v. Wirtsgestein	
Abstandsge- schwindigkeit v_a [m/a]	4,6E-3 bis 1,5E-9	8), 10), 11)	3,0E-6 bis 4,5E-9	9), 10), 11)	8,3E7 bis 2,7E-7	3), 4), 11)	Kristallin: 3,2E-7 bis 2,2E-12 Ton: 3,2E-8 bis 1,6E-14	10)

¹⁾ Werte für destilliertes Wasser bis 4 M NaCl; k abhängig von der Zusammensetzung des Fluids /MAN 16/

²⁾ Werte für ungesättigten Bentonit, abhängig von der Trockendichte (Verdichtung) des Bentonits /PUS 01/, /MAN 16/

³⁾ Für ungestörtes Wirtsgestein /AUT 03/

⁴⁾ Abhängig von der Teufe und Störungsgrad des Wirtsgesteins; für ungestörten Metagranit $1,5E^{-10}$ m/s

⁵⁾ Aus /PEA 91/ für ungestörtes Steinsalz in Asse bei 800 m Teufe

⁶⁾ Referenz aus /WIE 14/ für ungestörtes Steinsalz i.d.R. $>0,4-1,2E^{-2}$ /GIE 94/

⁷⁾ Bohrlochtests in Morsleben, bei 387 m Teufe /BGE 20/

⁸⁾ Aus /AKE 02/

⁹⁾ Abhängig vom Tonanteil und dem Verfestigungsgrad aus /MAR 04/, /NAG 01/, /NAG 02a/, /BOS 17/, /THU 99/, /JAH 16/

¹⁰⁾ Werte mit Gl. (4.2) berechnet

¹¹⁾ Referenzdatensätze in /BGE 20/

4.1.4 Inventar

Die Radionuklidzusammensetzung und die damit verbundenen Eigenschaften wie die Nachzerfallswärmeleistung und Aktivität der Brennstoffe ist primär abhängig von der Brennstoffart, der Anreicherung und der Bestrahlungshistorie. Bei den verglasten radioaktiven Abfällen werden diese Eigenschaften hauptsächlich durch das Radionuklidinventar bestimmt und sind durch maximale Werte (Garantiewerte des Herstellers) abgedeckt /COG 03/. Sekundär ist für beide Inventargruppen die Zwischenlagerdauer für deren Eigenschaften im Endlager ebenfalls bedeutend.

Für die Korrosionsmodelle werden für die o. g. Eigenschaften die Ergebnisse der Zwischenlageranalyse (siehe Kapitel 3) herangezogen und für die relevanten Zeiträume, nuklidspezifisch und zerfallskorrigiert, unter Beachtung der Zerfallsreihen betrachtet. In Tab. 4.3 ist eine Zusammenstellung von endlagerrelevanten Radionukliden und Spalt- und Aktivierungsprodukten mit Halbwertszeiten größer als 20 Jahre gelistet /BAU 00/, /RÜB 10/.

Tab. 4.3 Für die Endlagerung relevante Actinoide (links) und Spalt- und Aktivierungsprodukte (rechts) mit jeweils $T_{1/2} > 20$ a

Actinoide	Halbwertszeit [a]	Spalt- und Aktivierungsprodukte	Halbwertszeit [a]
Ac-227	2,18E+01	Sr-90	2,86E+01
U-232	6,89E+01	Cs-137	3,02E+01
Pu-238	8,77E+01	Sm-151	9,30E+01
Am-242m	1,41E+02	Ni-63	1,00E+02
Am-241	4,32E+02	Ag-108m	4,18E+02
Ra-226	1,60E+03	Ho-166m	1,20E+03
Cm-246	4,73E+03	Mo-93	3,50E+03
Pu-240	6,56E+03	C-14	5,73E+03
Am-243	7,37E+03	Nb-94	2,00E+04
Th-229	7,88E+03	Ni-59	7,50E+04
Cm-245	8,50E+03	Ca-41	1,03E+05
Pu-239	2,41E+04	Tc-99	2,10E+05
Pa-231	3,28E+04	Sn-126	2,35E+05
Th-230	7,54E+04	Cl-36	3,00E+05
U-233	1,59E+05	Se-79	4,80E+05
U-234	2,46E+05	Zr-93	1,50E+06
Cm-248	3,40E+05	Be-10	1,60E+06
Pu-242	3,75E+05	Cs-135	2,00E+06
Np-237	2,14E+06	Pd-107	6,50E+06
Cm-247	1,56E+07	I-129	1,57E+07
U-236	2,34E+07	Rb-87	4,80E+10
Pu-244	8,00E+07	Sm-147	1,06E+11
U-235	7,04E+08		
U-238	4,47E+09		
Th-232	1,41E+10		

Methode zur Berechnung des Nuklidinventars

Das Radionuklidinventar der endlagerrelevanten Zeitspannen wurden für die jeweiligen Inventare Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor/Thorium-Hoch-Temperatur-Reaktor (AVR/THTR), Forschungsreaktor-Brennelemente und CSD-V, LWR-Brennelemente aus /LAR 13/ übernommen. Die Daten zu den endlagerrelevanten Radionuklidinventaren aus der VSG beruhen auf

Prognosen aus dem Jahr 2010 und decken, durch den vorzeitigen Ausstieg aus der Kernenergienutzung, die tatsächlich anfallenden Mengen nicht vollständig ab. Als Zeitpunkt des Endlagerverschlusses (t_0) für die in diesem Vorhaben durchgeführten Betrachtungen und Berechnungen wurde die Radionuklidzusammensetzung der Inventare der VSG aus dem Jahr 2075 als Eingangsdaten für neue Zerfallsrechnungen herangezogen.

Im Rahmen dieses Vorhabens wurde für die Rechnungen zum Radionuklidzerfall das Software-Package SCALE mit dem Modul ORIGEN verwendet. SCALE stellt eine umfassende Modellierungs- und Simulationssuite dar, welche durch das Oak Ridge National Laboratory (ORNL) im Auftrag der U.S. Nuclear Regulatory Commission (NRC), des U.S. Department of Energy (DOE) sowie der National Nuclear Security Administration entwickelt und gepflegt wird. Auf Basis der initialen Aktivitäten zum Zeitpunkt 2075 (VSG-Daten /LAR 13/) wurde der Zerfall sowie die relevanten Zerfallsprodukte über einen Zeitraum von einer Million Jahren berechnet. Das Resultat der Berechnungen ist in Abb. 4.5 im zeitlichen Verlauf der Gesamtaktivität des Inventars von Brennelementen, CSD V, AVR/THTR- und Forschungsreaktor-Brennelementen dargestellt. Die jeweiligen Anteile der Aktivität sind in Tab. 4.4 aufgeführt und nuklidspezifisch im Anhang A.1 gelistet.

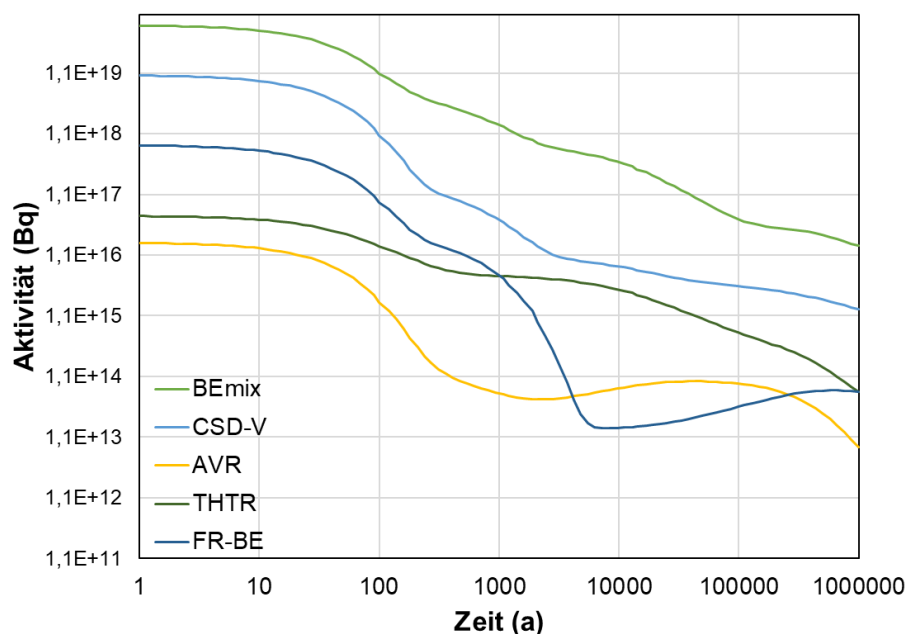


Abb. 4.5 Verlauf der Gesamtaktivität des (gesamten) Inventars von DWR-, SWR-, WWER-BE (BEmix), verglasten radioaktiven Abfällen (CSD-V), AVR- und THTR-Brennelementkugeln sowie FR-BE in einem Endlager über 1 Mio. Jahre

Tab. 4.4 Anteil der Aktivität der jeweiligen Brennstoffe bzw. des HAW-Glases in %
(ggf. weichen die Summen aufgrund von Rundungen ab)

Jahre nach Einlagerung	0	500	1.000	10.000	100.000	1.000.000
Aktivität CSD-V [%]	12	9	3	2	8	8
Aktivität Mix-BS [%]	87	91	97	97	91	91
Aktivität AVR-/THTR-BS [%]	< 0,1	0,1	0,3	0,8	1	0,4
Aktivität FR-BS [%]	0,9	0,7	0,3	< 0,1	< 0,1	0,4

Eine Unterteilung der Aktivität in relevante Radionuklidgruppen ist für alle betrachteten Inventare in den nachfolgenden Abschnitten jeweils für die gewählten Zeitpunkte 500, 1.000, 10.000, 100.000 und 1.000.000 Jahre nach Verschluss des Endlagers (Jahr 2075) dargestellt. Eine vollständige Liste der beim Zerfall produzierten Radionuklide und deren Aktivität zu den o. g. Zeitpunkten befindet sich in Anhang A.1.

4.1.4.1 Verglaste radioaktive Abfälle

4.1.4.1.1 Zusammensetzung

Hochradioaktive flüssige Abfälle werden durch Verglasung als Borosilikatglas in feste Abfallprodukte überführt. Borosilikatgläser sind sehr wasser- und chemikalienbeständig und zählen aufgrund ihrer geringen thermischen Ausdehnung zu den temperaturbeständigen Spezialgläsern⁸. Die verwendeten Glas-Ausgangsstoffe sind anlagen- und kampagnenspezifisch. Sie sind erprobt, um eine einfache Handhabung beim Schmelzen zu garantieren, eine Phasentrennung zu vermeiden und die chemische Beständigkeit zu gewährleisten. Zur Herstellung der Glaskokillen wird die Glasschmelze in die Edelstahlkokille gegossen. Es bilden sich Risse beim Abkühlen des Glases (siehe Abb. 4.6). Während der Zwischen- und Endlagerzeiträume akkumulieren sich Defekte in der Glasstruktur. Der Beitrag, der durch Alpha-Strahlung oder den Transport der Kokillen initiiert wird, wird als vernachlässigbar eingestuft (siehe Kapitel 2)^{9,10}.

⁸ Gläser entstehen durch Abkühlung der Schmelze, wenn die Geschwindigkeit der Abkühlung deutlich größer als die Kristallisationsrate ist.

⁹ Alpha-Teilchen geben ihre Energie vorwiegend durch elastische Stöße auf einer Strecke von etwa 16 bis 22 µm am Ort des Zerfalls ab.

¹⁰ Mechanische Belastungen der Glaskokille beim Transport tragen vermutlich nicht nennenswert zur Oberflächenvergrößerung bei. Unter der Annahme, dass für Glaskokillen äquivalente Belastungen beim Transport angenommen werden.



Abb. 4.6 Querschnitt einer Surrogat-Glaskokille mit Rissen in der Matrix /REP 19/

In Tab. 4.5 ist eine Übersicht zur Zusammensetzung von Abfallgläsern verschiedener Länder (und Anlagen) gezeigt. SiO_2 und B_2O_3 fungieren als strukturgebende Netzbildner. Al_2O_3 kann entweder als Netzbildner oder -wandler fungieren. Die Abfallbeladung der Borosilikatgläser mit Spaltprodukten beträgt in den meisten Fällen 25 % /HUM 20/, kann aber auch auf Werte bis 32 % gesteigert werden /HAR 14/.

Tab. 4.5 Zusammensetzung verschiedener Abfallgläser (Angaben in Massen-%, ohne Abfallnuklide, normiert), Werte entnommen aus /ROT 01/, /SOM 93/, /OJO 07/

Anlage	SiO_2	B_2O_3	Al_2O_3	Na_2O	LiO_2	TiO_2	CaO	MgO
R7/T7 (FR)	58,1	18,3	5,4	13,1	0,0	0,0	5,0	0,0
VEK (DE)	60,0	17,6	3,1	7,1	3,5	1,2	5,3	2,2
Magnox Waste (UK)	57,1	20,5	5,8	10,2	0,0	0,0	0,0	6,4

In den Abfallgläsern sind die meisten Elemente (inaktiv und radioaktiv) bzw. deren radioaktive Isotope in der Regel in oxidischer Form enthalten (siehe Abb. 4.7). Die Funktionen, die die Element-Ionen in der Glasmatrix einnehmen, variieren. Teilweise haben Elemente in gleichen Gruppen im Periodensystem der Elemente (PSE) ähnliche Funktionen in der Glasmatrix. Neutronenstreuungs-Experimente an Borosilikatgläsern haben gezeigt, dass es keinen signifikanten Einfluss auf die Glasstruktur hat, ob radioaktive Abfalloxide eingebunden sind oder nicht /SIN 83/. Nach /GRA 97/ wird die Stabilität der Gläser durch die Zugabe der Abfalloxide erhöht.

	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18
	H																	He
	Li	Be											B	C	N	O	F	Ne
	Na	Mg											Al	Si	P	S	Cl	Ar
	K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr
	Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	J	Xe
	Cs	Ba	La-Lu	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn
	Fr	Ra	Ac-Lr	104	105	106	107	108	109	110	111	112	113	114	115	116	117	118
Lanthanoide	La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu			
Actinoide	Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr			

	nach 500 a wichtiges Radioelement im Abfall		wenig od. inaktives Element im Abfall		Zusatzstoffe zur Verglasung
	Glasbildner		Glaswandler		nicht verglasbar

Abb. 4.7 Elemente (inaktiv und radioaktiv) im Abfallglas mit Kennzeichnung als Glasbestandteile und der Radioelemente /GRA 97/

Gläser besitzen keine Fernordnung, die Struktur wird als Glasnetzwerk beschrieben (siehe Abb. 4.8 **Fehler! Verweisquelle konnte nicht gefunden werden.** (i)). Das Netzwerk wird aus SiO_4^- , AlO_4^- -Tetraedern und BO_3 -Dreiecken (ggf. auch BO_4^-) gebildet. Zusätzlich sind Na-Ionen (siehe Abb. 4.8 (ii)) und im Falle der Abfallgläser Radionuklide eingebaut. Die Art der Bindung der Radionuklide im Glasnetzwerk hängt stark von der Elektronegativität der Ionen und ihrer Größe ab. Folgende Nuklide, sortiert nach der Gruppe im PSE, werden bezüglich ihrer Funktion im Glasnetzwerk diskutiert /GRA 97/:

- 1. Gruppe: Cs-135: Netzwerkwandler
 - Cs-Ionen haben von allen radioaktiven Ionen die höchste Beweglichkeit im Glas. Die Beweglichkeit sollte jedoch aufgrund ihrer Größe geringer als die der kleineren Alkalimetalle (Na, Li, K) sein.
- 2. Gruppe: Sr-90, Ra-226: Netzwerkwandler

- 3. Gruppe: Lanthanoide und Actinoide: Zwischenoxide¹¹
 - Actinoide können in der Glasmatrix in verschiedenen Oxidationsstufen mit stark variierenden Eigenschaften vorkommen (detaillierte Informationen siehe /GRA 97/). In gewissem Maße kann die Oxidationsstufe durch eine reduzierende bzw. oxidierende Atmosphäre während des Schmelzprozesses gesteuert werden¹².
- Übergangsmetalle: Ni-59: Netzworkebildner, Tc-99: Zwischenoxid
 - Unter oxidierenden Bedingungen entsteht beim Schmelzprozess Tc_2O_7 (mit Tc^{7+}). Dieses hat einen hohen Dampfdruck und sublimiert als CsTc_2O_7 aus der Schmelze an kühleren Anlagenteilen. Untersuchungen in Borosilikatgläsern zeigen, dass unabhängig von oxidierenden oder reduzierenden Bedingungen kein Hinweis auf Tc^{7+} im Glas zu finden ist /ANT 85/.
- Zur Ausscheidung im Glas neigende Elemente: Pd-107
- Verschiedene strukturelle Funktionen: C-14, Rn, Pb, Sn, At

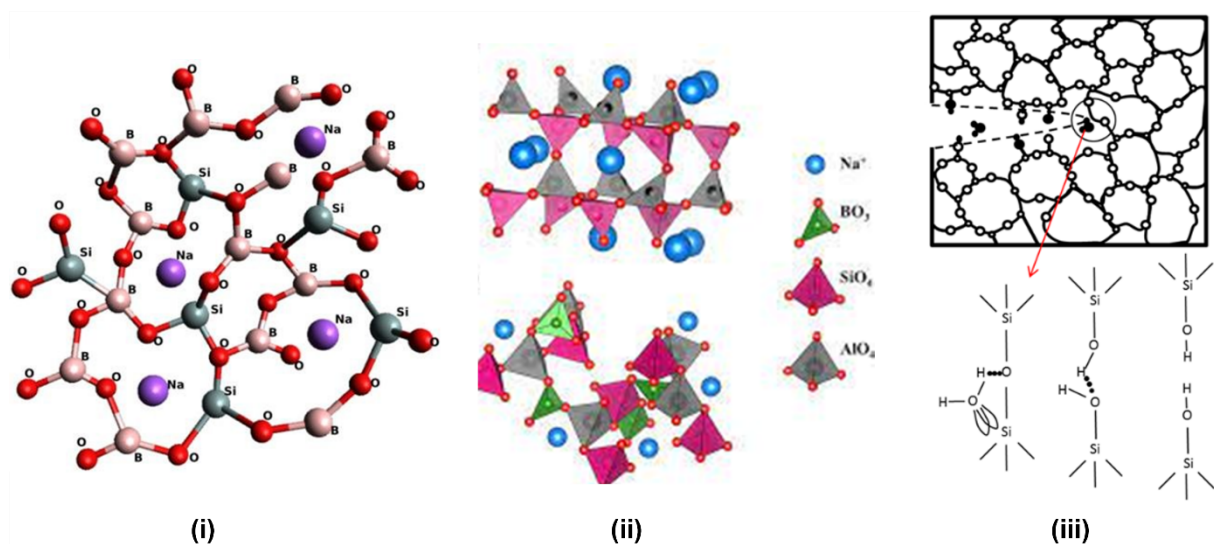


Abb. 4.8 Beispiele vernetzter Glasstrukturen aus Si-, B- und Al-Tetraeder und Na-Ionen (i) aus /DOR 19/ und (ii) aus /KRI 21/; möglicher Si-O-Si-Bindungsbruch durch Reaktion mit Wasser (Hydrolyse) aus /MIC 83/

¹¹ Sog. Zwischenoxide nehmen eine Mittelstellung zwischen Netzworkebildner und -wandler ein.

¹² Die maximale Actinoidmenge, die in die Glasmatrix (Natriumsilikatglas: $\text{Na}_2\text{O} : \text{SiO}_2 = 1:4$) eingebunden werden kann, hängt von der Oxidationsstufe ab: die Löslichkeit vierwertiger Actinoide liegt bei 2 bis 5 Mol%, die des fünfwertigen Neptunylions bei 9 Mol% und die des sechswertigen Uranylions bei 20 Mol%.

4.1.4.1.2 Zeitabhängiges Radionuklidinventar

In Abb. 4.9 ist die Gesamtaktivität und der relative Beitrag der Radionuklidgruppen zur Gesamtaktivität von verglasten radioaktiven Abfällen¹³ für die Zeitpunkte 500, 1.000, 10.000, 100.000 und 1.000.000 Jahre nach dem Verschluss des Endlagers (Jahr 2075) dargestellt.

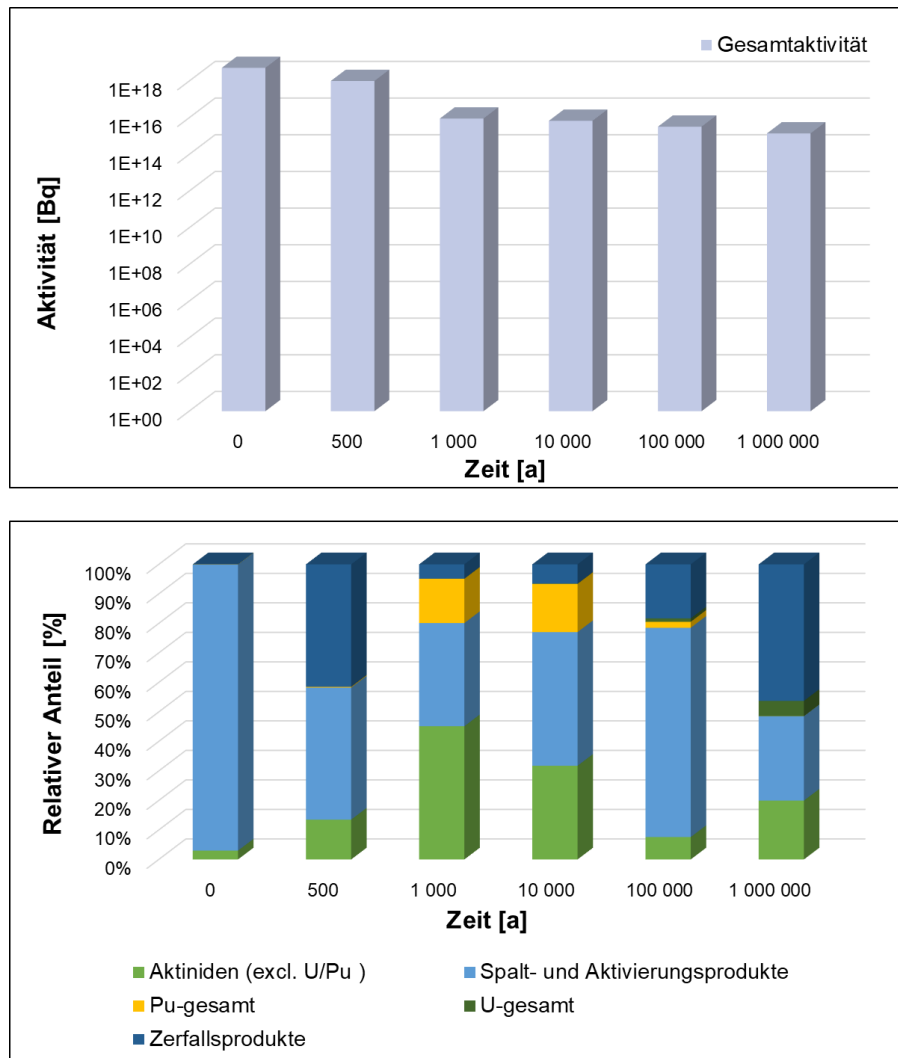


Abb. 4.9 Gesamtaktivität von verglasten radioaktiven Abfällen und relativer Beitrag von Actinoiden (exklusive Uran und Plutonium), Plutonium, Uran, Spalt- und Aktivierungsprodukten sowie Zerfallsprodukten zur Gesamtaktivität

Die vollständige Liste der beim Zerfall produzierten Radionuklide und deren Aktivität befindet sich in Anhang A.1. Die Anfangsaktivität beträgt 5,30E18 Bq. Nach 500 Jahren beträgt die Aktivität 20 % und nach 1.000 Jahren nur noch unter 1 % der Anfangsaktivität. Spalt- und

¹³ Auf Grundlage der endzulagernden Inventarmengen in den Betrachtungen der VSG (siehe Kapitel 4.1.4)

Aktivierungsprodukte (siehe Tab. 4.3) leisten anfangs den größten Beitrag zur Gesamtaktivität. Nach 1.000 Jahren liefern die Actinoiden den größten Beitrag zur Gesamtaktivität und nach 1 Mio. Jahren sind es die Zerfallsprodukte.

Über die Lagerzeit von 1 Mio. Jahre verringert sich die Gesamtaktivität der verglasten Abfälle um drei Größenordnungen. Der Anteil der Aktivität der verglasten Abfälle an der Aktivität des gesamten Inventars (HAW-Glas, UO₂/MOX-, HTR-, U₂Si₃ und UZrHx-Brennstoff zusammen) ist ebenfalls abhängig von der Zusammensetzung an dem jeweils betrachteten Zeitpunkt. Über den betrachteten Zeitraum von 1 Mio. Jahre beträgt der Anteil zwischen 1 % und 12 % an der Aktivität des gesamten Inventars (siehe Tab. 4.6).

Tab. 4.6 Aktivität der verglasten Abfälle und relativer Anteil an der Aktivität des gesamten Inventars bis 1 Mio. Jahre nach Verschluss des Endlagers

Jahre nach Einlagerung	0	500	1.000	10.000	100.000	1.000.000
Aktivität HAW-Glas gesamt [Bq]	5,30E+18	1,02E+18	9,14E+16	6,87E+15	3,29E+15	1,42E+15
Anteil am Gesamtinventar [%]	12	9	1	2	7	8

4.1.4.2 Bestrahlte Brennelemente

4.1.4.2.1 UO₂/MOX-Brennstoff

Zusammensetzung

Bestrahlter UO₂- und MOX-Brennstoff mit einem Abbrand von 40 GWd/ MgSM hat folgende Zusammensetzung (siehe Abb. 4.10, weitere Details für repräsentative Abbrandrechnungen siehe Kapitel 3):

- UO₂-Brennstoff: 93,51 % U-238, 0,76 % U-235, 1,03 % Pu, 4,13 % Spaltprodukte und 0,09 % Actinoide
- MOX-Brennstoff: 90,60 % U-238, 0,35 % U-235, 4,63 % Pu, 4,06 % Spaltprodukte und 0,33 % Actinoide

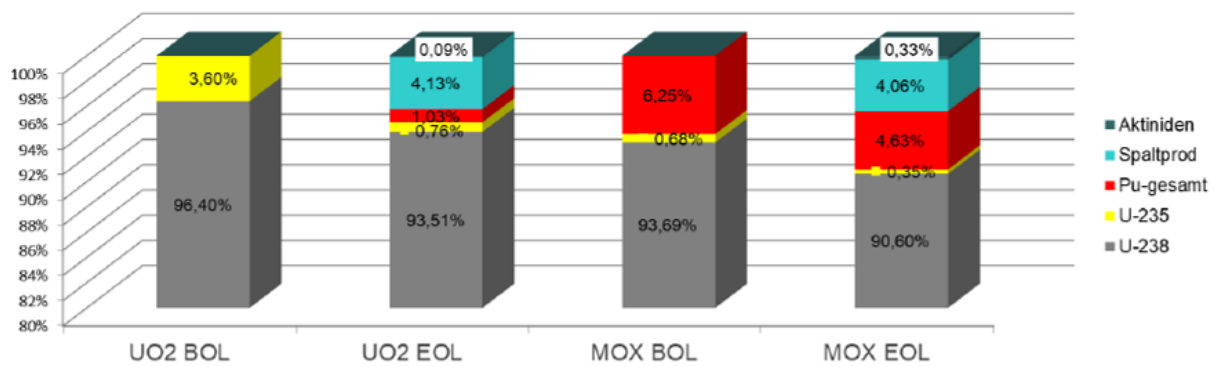


Abb. 4.10 Zusammensetzung zum beginning- und end-of-life (BOL, EOL) beim Abbrand von 40 GWd/MgSM für UO₂- und MOX-Brennstoff /HUM 20/

Unbestrahlter Brennstoff besteht aus Urandioxid oder einer Mischung aus Uran- (UO₂) und Plutoniumdioxid (PuO₂). Auch der bestrahlte Brennstoff besteht überwiegend aus UO₂, bzw. einer Mischung aus UO₂ und PuO₂, die Korrosion in Kapitel 4.2.3.1 für UO₂ beschrieben. Die ursprünglich zylindrischen Brennstoffpellets mit intakter Oberfläche weisen nach dem Einsatz im Reaktor Risse auf (schematisch in Abb. 4.11 angedeutet). Die Oberfläche des Brennstoffs ist somit signifikant größer als vor der Bestrahlung. Konkrete Angaben liegen nicht vor.

Während der Bestrahlung des Brennstoffs im Reaktor entstehen zum geringen Teil flüchtige, bei Betriebstemperatur gasförmige, Radionuklide, die sich beim Abkühlen im freien Volumen des Brennstabes und an den Korngrenzen innerhalb der Brennstoffmatrix abscheiden (siehe Abb. 4.11 und Tab. 4.7).

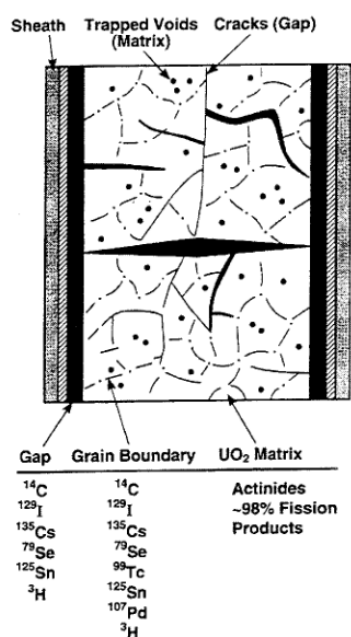


Abb. 4.11 Schematische Darstellung der Verteilung der Radionuklide in einem Brennstab /JOH 97/

Zu den Nukliden der Instant Release Fraction (IRF) zählen C-14, Cl-36, Se-79, Sr-90, Tc-99, Pd-107, Sn-126, I-129, Cs-137 und Cs-135 /JOH 97/. Eine aktuelle Übersicht zu dem Thema ist in /SPA 21/ behandelt. C-14 und Cl-36 entstehen durch Aktivierung der Brennstoff-Verunreinigungen Stickstoff und Chlor. Die restlichen Nuklide sind Spaltprodukte.

Tab. 4.7 Schätzwerte für verschiedene Nuklide der IRF für UO₂-Brennstoff (DWR, konservativ geschätzt in Klammern, Angaben in % des Gesamtinventars) /KIE 12/

Abbrand (GWd/Mg HM)	41	48	60	75
Fission gas	1 (2)	2 (4)	4 (8)	8 (16)
C-14	10	10	10	10
Cl-36	5	10	16	28
Sr-90	1 (2)	1 (3)	1 (5)	1 (9)
Tc-99, Pd-107	0,1 (1)	0,1 (3)	0,1 (5)	0,1 (9)
I-129, Cs-135, Cs-137	1 (3)	2 (4)	4 (8)	8 (16)

Zeitabhängiges Radionuklidinventar

In Abb. 4.12 ist die Gesamtaktivität und der relative Beitrag der Radionuklidgruppen zur Gesamtaktivität von bestrahlten Brennelementen¹⁴ für die Zeitpunkte 500, 1.000, 10.000, 100.000 und 1.000.000 Jahre nach dem Verschluss des Endlagers (Jahr 2075) dargestellt. Die vollständige Liste der beim Zerfall produzierten Radionuklide und deren Aktivität befindet sich in Anhang A.1. Die Anfangsaktivität beträgt 3,9E19 Bq. Nach 500 Jahren beträgt die Aktivität 28 % und nach 1.000 Jahren nur noch 4 % der Anfangsaktivität. Zum Zeitpunkt des Verschlusses des Endlagers liefern Spalt- und Aktivierungsprodukte (siehe Tab. 4.3) den größten Beitrag zur Gesamtaktivität. Nach 10.000 und 1 Mio. Jahren sind respektive Plutoniumisotope und Zerfallsprodukte für den Hauptanteil der Aktivität verantwortlich (siehe Abb. 4.12).

¹⁴ Eigene Berechnungen auf Grundlage der endzulagernden Inventarmengen in den Betrachtungen der VSG (siehe Kap 4.1.4).

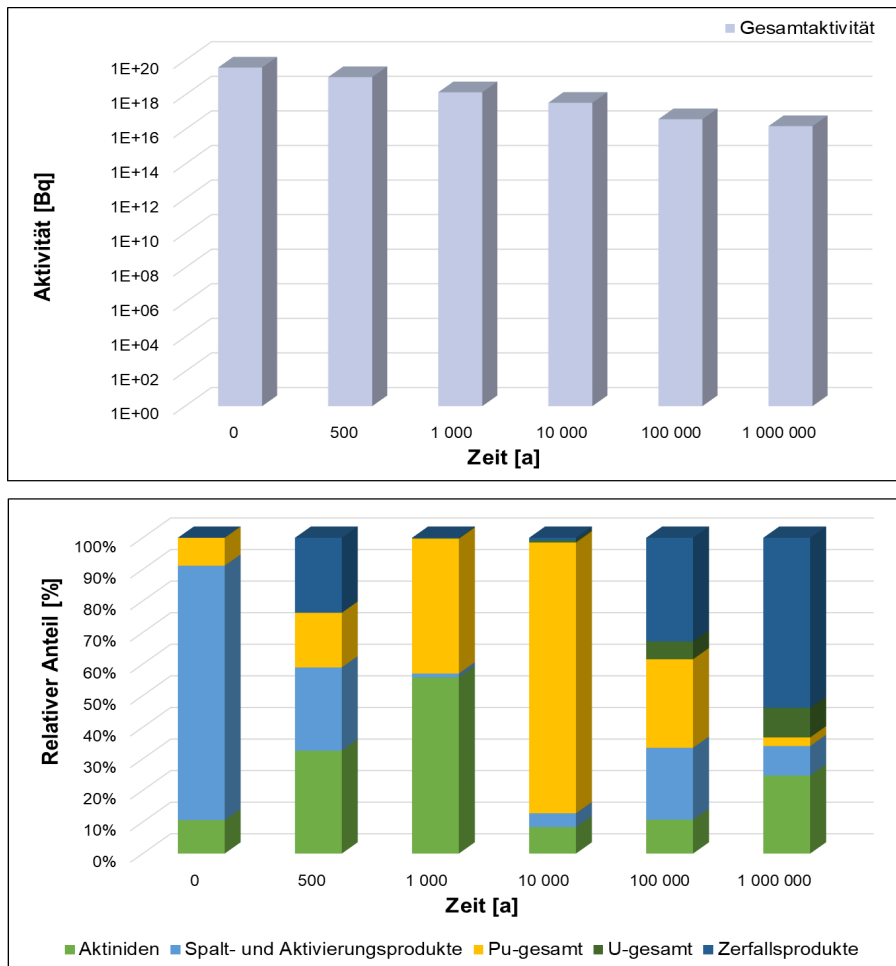


Abb. 4.12 Gesamtaktivität aller einzulagernden bestrahlten BE und relativer Beitrag von Actinoiden (exklusive Uran und Plutonium), Plutonium, Uran, Spalt- und Aktivierungsprodukten (aus Tab. 4.3) sowie Zerfallsprodukten zur Gesamtaktivität

Bestrahlte Brennelemente von Leistungsreaktoren machen den größten Anteil der Aktivität des Inventars aus. Die Gesamtaktivität von UO₂/MOX-Brennelementen verringert sich um drei Größenordnungen über die Lagerzeit von 1 Mio. Jahre. Dabei verändert sich auch die Zusammensetzung der Abfälle. Der Anteil der Brennelemente an der Gesamtaktivität ist ebenfalls abhängig von der Zusammensetzung zu dem jeweils betrachteten Zeitpunkt. Über den betrachteten Zeitraum von 1 Mio. Jahre bewegt sich der Anteil zwischen 87 und 97 % der Aktivität des gesamten Inventars (siehe Abb. 4.12). Eine Liste der Einzelnuklide ist im Anhang A.1 für einige Zeitpunkte gegeben.

Tab. 4.8 Gesamtaktivität und relativer Anteil von Brennelementen an der Gesamtaktivität über einen Zeitraum von 1 Mio. Jahren nach Einlagerung

Jahre nach Einlagerung	0	500	1.000	10.000	100.000	1.000.000
Gesamtaktivität UO ₂ /MOX-Brennstoff [Bq]	3,85E+19	1,07E+19	1,43E+18	3,53E+17	3,96E+16	1,58E+16
UO ₂ /MOX-Aktivitätsanteil an Gesamtaktivität des endzulagernden Inven- tars [%]	87	91	99	97	85	85

4.1.4.2.2 HTR-Brennstoff

Zusammensetzung

Die Brennelementkugeln, welche in den beiden Hochtemperaturreaktoren Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor (AVR) und im Thorium-Hochtemperaturreaktor (THTR-300) eingesetzt wurden, weisen einen Durchmesser von ca. 6 cm auf. Im Zentrum der Brennelementkugeln befindet sich eine Graphitmatrix, welche ungefähr 20.000 beschichtete Brennstoffpartikel enthält. Als Brennstoff wurden entweder oxidische oder karbidische Uran- bzw. Thoriumverbindungen eingesetzt. Hauptsächlich wurden BISO- bzw. TRISO-Partikel¹⁵ eingesetzt. BISO-Partikel sind außen mit zwei Schichten aus Pyrokohlenstoff umhüllt, die einen Austritt der Radionuklide verhindern sollen.

Im Vergleich dazu besitzen die sog. TRISO Partikel, zusätzlich zu den zwei Pyrokohlenstoffschichten, eine weitere Siliciumcarbid-Schicht (vgl. Abb. 4.13). Die äußere Pyrokohlenstoffschicht sorgt dafür, einen Austritt der Radionuklide zu verhindern. THTR-Brennelementkugeln weisen folgende Zusammensetzung auf: 94,5 % C-12, 0,47 % U-235, 0,03 % U-238 und 5,0 % Th-232.

Die Zusammensetzung und Anteile der im AVR und THTR eingesetzten Brennelementkugeln sind in Tab. 3.3 ausführlicher beschrieben.

Die AVR-Brennelementkugeln sind in Edelstahlkannen mit jeweils 950 Brennelementkugeln pro Kanne befüllt. In den vergleichsweise größeren THTR-Kannen können 2.100 Brennelementkugeln eingebracht werden. Ein Behälter des Typ CASTOR®-THTR/AVR fasst entweder zwei AVR-Kannen (insgesamt als 1.900 Brennelementkugeln) oder eine THTR-Kanne. Die

¹⁵ Bistructural Isotropic (BISO), Tristructural Isotropic (TRISO)

Brennelemente aus beiden Hochtemperaturreaktoren befinden sich zurzeit in CASTOR®-THTR/AVR-Behältern im Zwischenlager in Ahaus bzw. auf dem Forschungsgelände in Jülich.

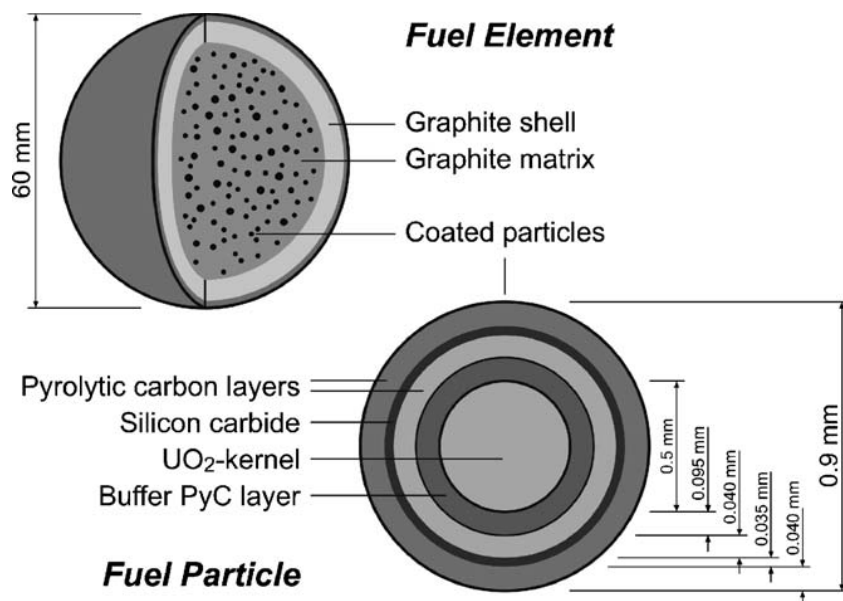


Abb. 4.13 Schematische Abbildung eines AVR/THTR-BE und eines TRISO Brennelementpartikels /FAC 06/

Die Aktivität der AVR/THTR-Brennelementkugeln im Endlager wird hauptsächlich durch die gasförmigen Radionuklide H-3, C-14 und Kr-85 mit Halbwertszeiten für H-3 von 12,35 a, Kr-85 von 10,76 a und C-14 von 5.736 a dominiert¹⁶. Diese Radionuklide entstehen teilweise durch Aktivierungen von Verunreinigungen in der Graphitmatrix. Bei den hier aufgezählten, handelt es sich um leichtflüchtige Radionuklide, welche aus der Brennelementmatrix heraus migrieren können /FAC 08/, /FAC 98/, /NIE 99/. Das Tritium-Inventar ist hauptsächlich auf He-3 und Li-6-Verunreinigungen der Graphitmatrix zurückzuführen. Die Gesamtaktivität beträgt ungefähr 2E12 Bq pro Kanne. Die Aktivität von C-14 beträgt 7E9 Bq und die des Spaltgases Kr-85 ca. 1E13 Bq pro Kanne. Bei Kr-85 hängt die Freisetzung hauptsächlich von der Anzahl der defekten Brennstoffpartikel ab /KAR 13/.

Zeitabhängiges Radionuklidinventar

In Abb. 4.14 und Abb. 4.15 ist die Gesamtaktivität und der relative Beitrag der Radionuklidgruppen zur Gesamtaktivität von bestrahlten THTR- und AVR-Brennelementkugeln¹⁷ für die

¹⁶ Vollständiges Inventar von gasförmigen Radionukliden in Lagerkannen in /NIE 99/

¹⁷ Auf Grundlage der endzulagernden Inventarmengen in den Betrachtungen der VSG (siehe Methode zur Berechnung des Nuklidinventars, Kapitel 4.1.4)

Zeitpunkte 500, 1.000, 10.000, 100.000 und 1.000.000 Jahren nach Verschluss des Endlagers (Jahr 2075) dargestellt. Die vollständige Liste der beim Zerfall produzierten Radionuklide und deren Aktivität zu den oben angegebenen Zeitpunkten befindet sich in Anhang A.1.

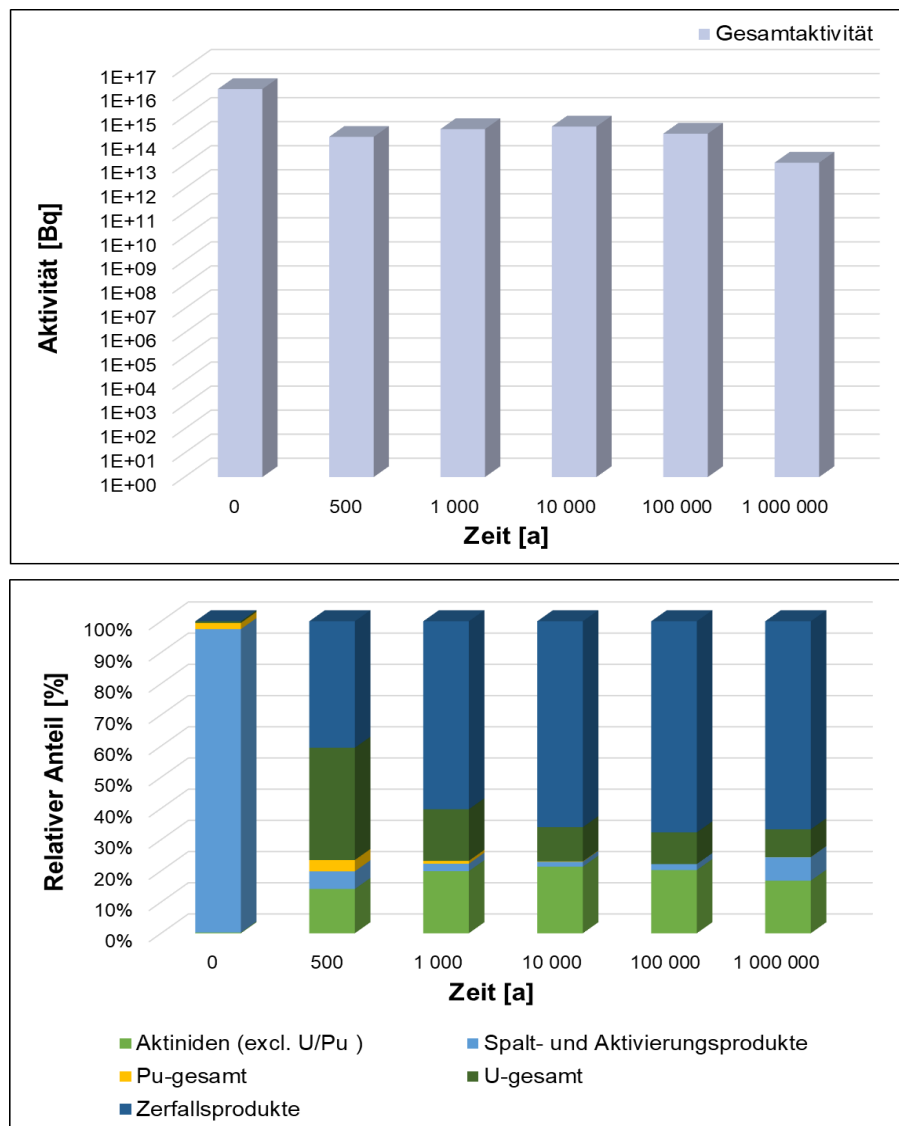


Abb. 4.14 Gesamtaktivität von THTR-Brennelementkugeln und relativer Beitrag von Actinoiden (exklusive Uran und Plutonium), Plutonium, Uran, Spalt- und Aktivierungsprodukten (aus Tab. 4.3) sowie Zerfallsprodukten zur Gesamtaktivität

Die Anfangsaktivität der THTR-Brennelementkugeln bei Verschluss beträgt 9,26E15 Bq. Nach 500 Jahren beträgt die Aktivität 1 % und nach 1.000 Jahren 2 % der Gesamtanfangsaktivität. Dies fällt nach 1 Mio. Jahren auf 0,1 % der Aktivität.

Zum Zeitpunkt des Einschlusses leisten Spalt- und Aktivierungsprodukte den größten Beitrag zur Gesamtaktivität. Dies ändert sich über die betrachtete Zeitspanne und nach 100.000 Jah-

ren dominiert der Anteil der Zerfallsprodukte. Wegen des geringen Abbrands der Brennelementkugeln im THTR machen Plutonium-Isotope nur einen sehr kleinen Anteil der Aktivität aus.

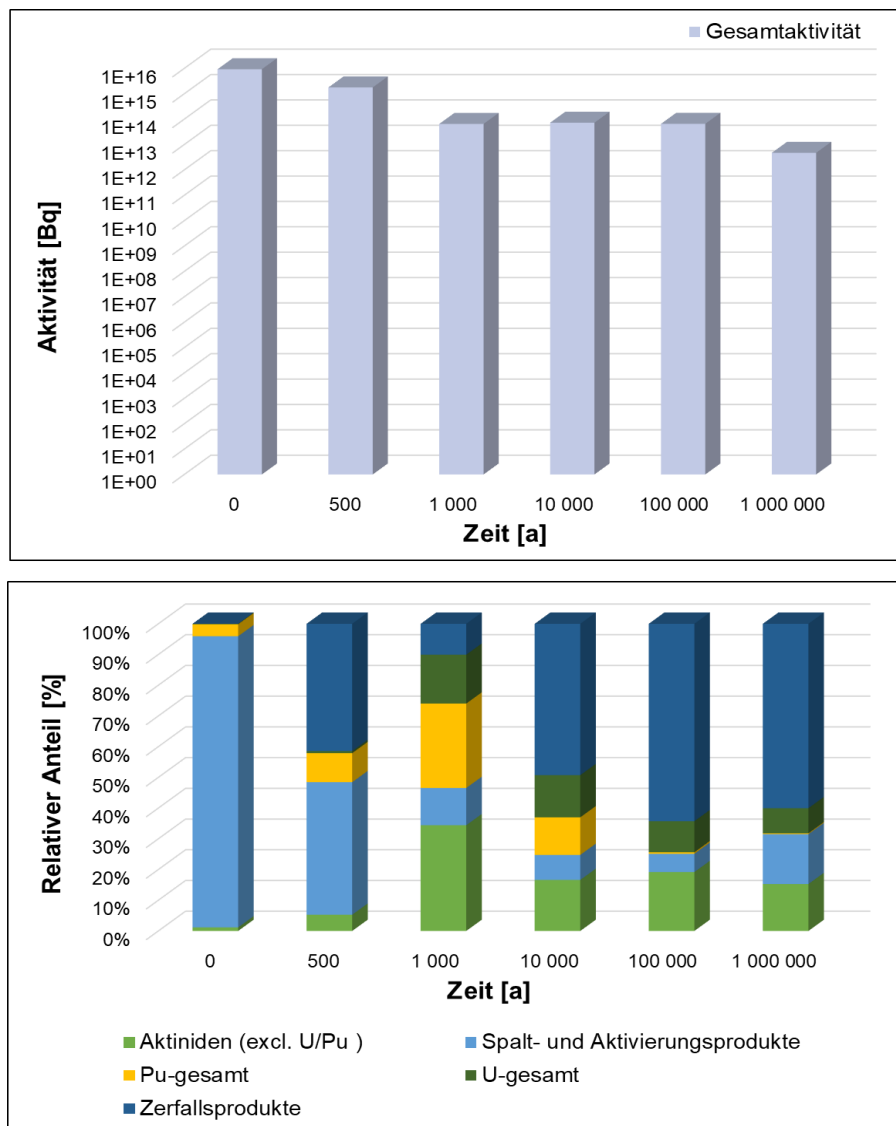


Abb. 4.15 Gesamtaktivität von AVR-Brennelementkugeln und relativer Beitrag von Actinoiden, Plutonium (exklusive Uran und Plutonium), Uran, Spalt- und Aktivierungsprodukten (aus Tab. 4.3) sowie Zerfallsprodukten zur Gesamtaktivität

Die Anfangsaktivität von AVR-Brennelementkugeln bei Einschluss beträgt 9,3E15 Bq. Nach 500 Jahren beträgt die Aktivität von AVR-Brennelementkugeln noch 20 %, und nach 1.000 Jahren liegt sie bei unter 1 % der ursprünglichen Aktivität. Zum Zeitpunkt t_0 leisten Spalt- und Aktivierungsprodukte den größten Beitrag zur Gesamtaktivität. Dies ändert sich nach einer Zeitspanne von ungefähr 100.000 Jahren, nach der die radioaktiven Zerfallsprodukte die Gesamtaktivität dominieren.

Die Aktivität der insgesamt 905.767 AVR/THTR-Brennelementkugeln in den 457 CASTOR® AVR/THTR-Behältern entspricht bei Einlagerung ungefähr 0,1 % der Gesamtaktivität des endzulagernden Inventars /BOL 12/. Über eine Lagerzeit von 1 Mio. Jahre verringert sich die Aktivität der AVR/THTR-Brennelementkugeln um drei Größenordnungen. Nach 100.000 Jahren beträgt der Anteil der Aktivität der AVR- und THTR-Brennelementkugeln in Summe 0,6 % des gesamten Inventars (siehe Tab. 4.9 und Tab. 4.10).

Tab. 4.9 Gesamtaktivität der THTR-Brennelementkugeln und relativer Anteil an der Gesamtaktivität über einen Zeitraum von 1 Mio. Jahren nach Einlagerung

Jahre nach Einlagerung	0	500	1.000	10.000	100.000	1.000.000
Gesamtaktivität THTR-Brennelementkugeln [Bq]	1,39E+16	1,43E+14	3,00E+14	3,83E+15	1,93E+14	1,20E+13
THTR-Aktivitätsanteil an Gesamtaktivität des endzulagernden Inventars [%]	< 0,1	< 0,1	< 0,1	0,1	0,44	< 0,1

Tab. 4.10 Gesamtaktivität der AVR-Brennelementkugeln und relativer Anteil an der Gesamtaktivität über einen Zeitraum von 1 Mio. Jahren nach Einlagerung

Jahre nach Einlagerung	0	500	1.000	10.000	100.000	1.000.000
Gesamtaktivität AVR-Brennelementkugeln [Bq]	9,26E+15	1,78E+15	6,48E+13	7,22E+13	6,52E+13	4,70E+12
AVR-Aktivitätsanteil an Gesamtaktivität des endzulagernden Inventars [%]	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	0,2	< 0,1

4.1.4.2.3 Forschungsreaktor-Brennelemente

Zusammensetzung

Die Zusammensetzung und Eigenschaften der Forschungs- und Versuchsreaktorbrennelemente (FRM II, FR MZ, BER II, RFR, KNK II, OH) sind im Detail in den Kapiteln 2 (AP 1) und 3 näher beschrieben. Zusammenfassend handelt es sich überwiegend um dünne plattenförmige, größtenteils Dispersions-Brennelemente, bei denen U_2Si_3 bzw. UO_2 -Partikel in einer Metallmatrix (Al oder Mg) eingebettet sind. Weiterhin kamen Brennstoffe vom Typ $UZrH_x$ (FR MZ) bzw. MOX und Uranoxid (KNK II, OH) zum Einsatz.

Zeitabhängiges Radionuklidinventar

In Abb. 4.16 ist die Gesamtaktivität und der relative Beitrag der Radionuklidgruppen zur Gesamtaktivität der zusammengefassten Forschungsreaktor-Brennelemente¹⁸ mit einer Anfangsaktivität von $4,0 \times 10^{17}$ Bq für die Zeitpunkte 500, 1.000, 10.000, 100.000 und 1.000.000 Jahre nach dem Verschluss des Endlagers (Jahr 2075) dargestellt. Die vollständige Liste der beim Zerfall produzierten Radionuklide und deren Aktivität befindet sich in Anhang A.1.

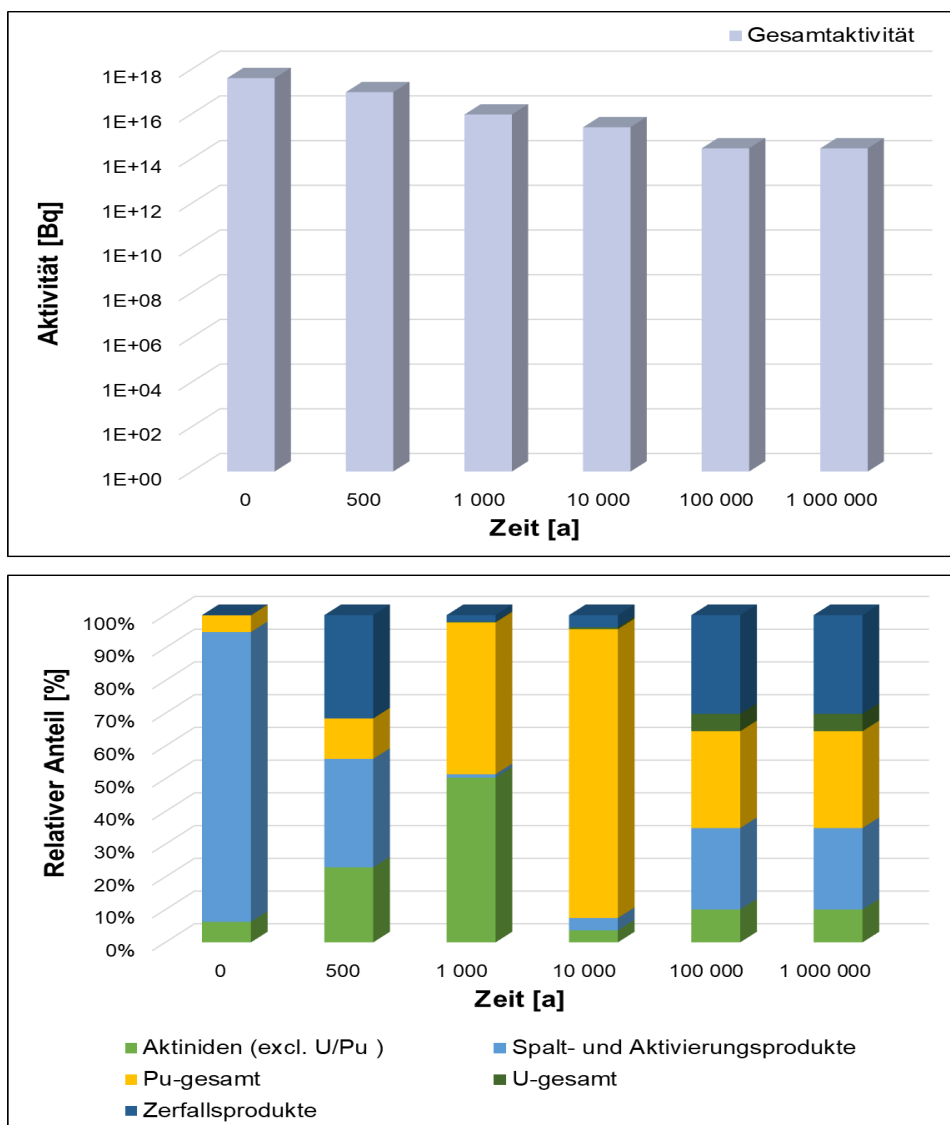


Abb. 4.16 Gesamtaktivität von FR-BE und relativer Beitrag von Actinoiden, Plutonium, Uran, Spalt- und Aktivierungsprodukten (aus Tab. 4.3) sowie Zerfallsprodukten zur Gesamtaktivität

¹⁸ Auf Grundlage endzulagernder Inventarmengen in den Betrachtungen der VSG (siehe Methode zur Berechnung des Nuklidinventars, Kapitel 4.1.4)

Nach 500 Jahren beträgt die Aktivität 23 % und nach 1.000 Jahren nur noch 2 % der Anfangsaktivität. Spalt- und Aktivierungsprodukte (siehe Tab. 4.11) leisten in Forschungsreaktor-Brennelementen den größten Beitrag zur Gesamtaktivität. Der Hauptteil der Aktivität wird nach 1.000 Jahren durch Plutonium Isotope dominiert. Nach 1 Mio. Jahre dominieren dann die Zerfallsprodukte die Gesamtaktivität.

FR-Brennelemente machen einen kleinen Teil der Aktivität des gesamten Inventars aus und entsprechen bei Einlagerung 0,9 % der Aktivität des einzulagernden Inventars. Die Gesamtaktivität der FR-Brennelemente verringert sich um vier Größenordnungen über die Lagerzeit von 1 Mio. Jahren. Der Anteil an der Gesamtaktivität ist zeitabhängig, und so tragen die Forschungsreaktor-Brennelemente nach 1 Mio. Jahren 1,6 % zur Aktivität des gesamten Inventars bei.

Tab. 4.11 Gesamtaktivität der FR-Brennelemente und relativer Anteil an der Gesamtaktivität über einen Zeitraum von 1 Mio. Jahren nach Einlagerung

Jahre nach Einlagerung	0	500	1.000	10.000	100.000	1.000.000
Gesamtaktivität [Bq]	3,79E+17	8,13E+16	4,54E+15	1,58E+13	3,70E+13	6,08E+13
Anteil am Gesamtinventar [%]	0,9	0,8	0,6	0,7	0,7	1,6

4.2 Betrachtung der Mobilisierungsmechanismen

Im folgenden Kapitel werden die in der Literatur als maßgeblich identifizierten Prozesse einer möglichen Mobilisierung bzw. Immobilisierung von Radionukliden beschrieben und dargestellt. Ebenfalls wird auch auf Korrosionsmechanismen und Eigenschaften der verschiedenen relevanten Metalle und Werkstoffe mit einer Barrierefunktion eingegangen.

Mittels bestimmter Legierungen wie bspw. die Legierung mit der Werkstoffnummer 2.4602 bestehend aus Cr-Ni-Mo-W, oder durch den Zusatz edler Metalle, wie Palladium bei Titan-Legierungen, können Korrosionsvorgänge vermieden bzw. so weit verlangsamt werden, dass signifikante Effekte in den relevanten Zeiträumen der Endlagerung ausbleiben /KIN 11/. Aufgrund der hohen Kosten bzw. Ressourcenverfügbarkeit kommt dies jedoch nicht in Frage, und es wird allgemein angenommen, dass eine oder mehrere Korrosionsarten die Standzeiten (Lebensdauer) der Endlagerbehälter bestimmen. Kapitel 4.2.1 gibt eine Übersicht zu relevanten Zusammenhängen zur Korrosion der Behälterwerkstoffe (abhängig vom Endlagerkonzept, siehe Abb. 4.17) und verschiedenen Hüllrohrmaterialien.

Gestein	Land	Jahr	Inventar	Zusammensetzung Behälter (mm)		außen
Kristallin	Schweden, Finnland	1995	BE	50	50	Bentonit
Ton	Schweiz	2012	BE, VA	140		Bentonit
Steinsalz	Deutschland	2004	BE, VA	160	274	Salz
		2010		19,5...44,5		*

*Gebinde in Vertikalbohrlöcher mit Quarzsand verfüllt

BE – Brennelement
VA – Verglaste Abfälle

 Kupfer
 Gusseisen
 Stahl

Abb. 4.17 Konzepte unterschiedlicher Endlagerbehälter (nicht maßstabsgetreu)

Abbildung verändert aus /HER 20/ übernommen.

Nach Verlust der Integrität der Barrieren können folgende Prozesse zu einer Mobilisierung von Radionukliden führen:

- die Korrosion der Brennstoffmatrix und Hüllrohre bei den Leichtwasserreaktor-Brennelementen (und Forschungsreaktor-Brennelementen)
- die Auflösung der graphithaltigen Materialien bei den HTR-Brennstoffen sowie der Glasmatrix und Edelstahlhülle bei den verglasten hochaktiven Abfällen in Kokillen

Kapitel 4.2 stellt die Mobilisierungsmechanismen zu den verschiedenen Inventaren dar.

Die berücksichtigten Inventare sind analog zur Zwischenlageranalyse (siehe Kapitel 3) und werden nach Art und chemischer Zusammensetzung wie folgt betrachtet:

- HAW-Glas in Edelstahlbehälter (CSD-V) in Kapitel 4.2.2
- UO_2/MOX – Brennstoff (LWR-BE, WWER, RFR, KNK II, OH) in Kapitel 4.2.3.1
- HTR – Brennstoff (AVR, THTR) in Kapitel 4.2.3.2
- U_2Si_3 – Brennstoff (FRM II und BER II) in Kapitel 4.2.3.3
- UZrH_x – Brennstoff (FR MZ) in Kapitel 4.2.3.4

Für die Mobilisierung von HAW-Glas und UO_2 -Brennstoff werden mit Hilfe von Modellen Korrosionsraten und der gelöste Anteil der jeweiligen Matrix bestimmt. Die Modelle setzen die Annahme voraus u. a., dass unendlich viel Lösungsmittel für die Mobilisierung zur Verfügung steht. Dies wird in einem realen Endlager nicht der Fall sein. Das Lösungsmittel ist in einem Endlager limitierender Faktor für die Korrosion und Freisetzung der Radionuklide. Deshalb

werden die Ergebnisse bei der Bewertung der einzelnen Unterkapitel zur besseren Einordnung, der zeitabhängigen Gesamtaktivität der jeweiligen Abfallgruppe (für alle Inventare) und der durch eine einfache Abschätzung der erwartbaren Mengen vom Lösungsmittel im jeweiligen Wirtsgestein (für HAW-Glas und UO_2/MOX -Brennstoff) gegenübergestellt.

Die Aktivität des AVR/THTR- und FR-Brennstoffs trägt mit ca. 1 % zur Gesamtaktivität des endzulagernden, wärmeentwickelnden Abfalls bei. Bisher liegen, im Vergleich zu UO_2/MOX -Brennstoff, nur relativ wenig Forschungsergebnisse zu endlagerrelevanten Korrosionsverhalten für AVR/THTR-Brennstoff (HTR), FR-Brennstoff (U_2Si_3 - und UZrH_x) vor. Deshalb wird in diesem Vorhaben kein analytisches Modell vorgeschlagen, sondern eine Übersicht der aktuellen Forschungsergebnisse dargestellt.

4.2.1 Korrosion von Behälter- und Hüllrohrmaterialien

Für den sicheren Einschluss der Radionuklide sind die Korrosionseigenschaften der Behältermaterialien ein wichtiger Einflussfaktor. Bei der Betrachtung der Korrosionseigenschaften wurde der Fokus auf eisen- und kupferhaltige Werkstoffe der Behälter gelegt (vgl. Tab. 4.12). In folgenden Kapiteln findet sich eine Übersicht über die Korrosionsdaten der Materialien, welche für Abfälle aus der Wiederaufbereitung und für die POLLUX®-Endlagerbehälter für ein in Deutschland ursprünglich geplantes Streckenlagerkonzept in Steinsalz vorgesehen waren. Darüber hinaus wurden für die Recherche sowohl die Endlagerbehältermaterialien der schwedischen bzw. finnischen Referenzkonzepte für Granit als auch die Endlagerbehältermaterialien des schweizerischen Referenzkonzepts für Tonstein untersucht.

Kupfer ist als Korrosionsbarriere im schwedischen und im finnischen Endlagerkonzept der SKB /SWE 78/ bzw. von Posiva /PAS 07/ vorgesehen. Beim Schweizer Endlagerkonzept der Nationalen Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA) sind unlegierte bzw. Kohlenstoffstähle als Korrosionsbarriere vorgesehen. Die in Deutschland bisher bevorzugt untersuchten Materialien für Endlagerbehälter bestehen im Wesentlichen aus Eisenwerkstoffen. Die zusammengetragenen Ergebnisse aus der Literaturrecherche beleuchten das Korrosionsverhalten von Werkstoffen in einem Temperaturbereich von 25 bis 200 °C und decken somit die für die jeweiligen Endlagerkonzepte relevanten Temperaturen ab. Hierbei handelt es sich um Temperaturen, welche an der Außenseite der Behälter erwartet werden können.

Tab. 4.12 Behälterwerkstoffe und Korrosionsexperimente

D: Deutschland, CH: Schweiz, S: Schweden, FIN: Finnland

Material	DIN/EN	Laborexperimente	In-situ-Experimente	Wirtsgestein
Gusseisen	EN-GJS-400	/SMA 86/, /FZJ 98/, /FZJ 99/, /2021/	/KFK 90/, /Smailos E. 2002/, /BEC 04/	Salz (D)
Kohlenstoffstahl	15MnNi6-3	/FZJ 98/, /FZJ 99/, /KFK 92/, /KFK 93/	/Smailos E. 2002/, /BEC 04/	Salz (D)
	TStE 355 und unlegierte Stähle	/SMA 04/, /L. H. Johnson, F. King 2003/	/Smailos E. 2002/, /BEC 04/	Salz (D), Granit (CH)
Edelstahl	X12CrNi23-13	/2021/	/BEC 04/, /KFK 93/, /SMA 96/	Salz (D)
Kupfer		/SMA 04/, /SKB 10/, /PAS 07/, /POS 12/		Granit (S, FIN, D)

4.2.1.1 Eisenhaltige Werkstoffe

Während der Einlagerung und in der Anfangsphase nach dem Verschluss sind die Behälter Sauerstoff ausgesetzt, welcher sich in Folge der Bewetterung der aufgefahrenen Schächte des Endlagers in der Auflockerungszone, Poren und Hohlräumen akkumuliert. Dieser Sauerstoff wird durch eine Reihe von Prozessen wie bspw. durch Metallkorrosion konsumiert, und es stellen sich anaerobe Bedingungen ein. Die Zeit, nach welcher dieser Übergang von einem aeroben zu einem anaeroben Milieu geschieht, hängt davon ab, wieviel Restsauerstoff in einem verfüllten Endlager vorhanden ist /KUR 04/. Bei der anaeroben Korrosion entsteht u. a. Wasserstoff. Eine vereinfachte Übersicht über die aeroben und anaeroben Korrosionsprozesse und die zugehörigen Korrosionsprodukte für Eisenwerkstoffe ist in Abb. 4.18 gegeben.

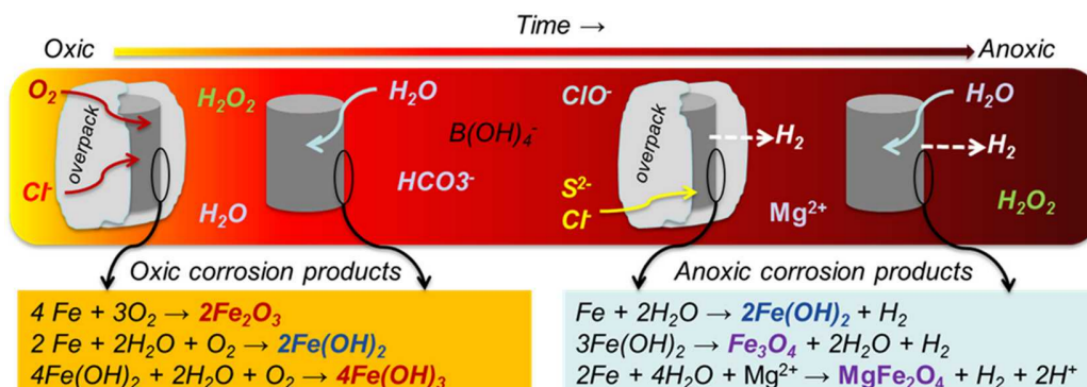


Abb. 4.18 Korrosionsprodukte der aeroben (oxic) und anaeroben (anoxic) Korrosion
/ILG 14/

Unter anaeroben Bedingungen korrodiert Eisen in einer direkten Reaktion mit Wasser gemäß:



$Fe(OH)_2$ ist thermodynamisch instabil und kann u. a. in einer zweiten Teilreaktion zu Magnetit (auf das Fe-H-O System beschränkt) reagieren:



Anhand der Reaktionsgleichungen (4.4) und (4.5) ist ersichtlich, dass im Zuge der anaeroben Korrosion des eisenhaltigen Behältermaterials Wasserstoff entsteht. Ist die Entstehungsrate von Wasserstoff höher als der Anteil, welcher ausdiffundiert, kann der Wasserstoff zu einem Anstieg des hydrostatischen Drucks beitragen¹⁹.

Edelstähle zeichnen sich im Gegensatz zu unlegierten bzw. niedrig legierten Stählen dadurch aus, dass die Materialabtragungsraten durch gleichmäßige Korrosion unter sowohl anaeroben als auch aeroben Bedingungen gering sind. Bei Edelstählen baut sich an der Oberfläche eine passive Oxidschicht auf, welche die Korrosionseffekte zurückhält. Dies ist im Grunde auch bei Gusseisen bzw. niedrig legierten Stählen der Fall. Hier bildet sich zwar eine Oxidschicht, welche jedoch nicht fest haftend bzw. dicht ist und damit keine ausreichende Passivierung ermöglicht. Grundsätzlich ist festzustellen, dass sich die Korrosionsrate wie bei allen anderen Metallen auch, sowohl mit der Bestrahlungsintensität als auch mit steigender Temperatur und steigendem pH-Wert erhöht. Bestimmte Anionen wie bspw. Nitrate, Carbonate und Sulfate verringern die lokale Korrosionsanfälligkeit genauso wie der Molybdän-, Chrom- und Nickel-Anteil in der Legierung. Insbesondere austenitische Stähle sind in der Umgebung von Chlorid-Ionen, Sulfiden und Thiosulfaten von lokalisierter Korrosion betroffen. Lokale Korrosionseffekte wie Lochfraß-, Spalt- und Spannungsrisskorrosion sind kurz nach Endlagerverschluss am wahrscheinlichsten, wenn die Wärmeleistung des Inventars hoch ist und der in der Umgebung vorhandene Sauerstoff oxidierende Rahmenbedingungen schafft.

Die Temperaturfeldberechnungen der verschiedenen Endlagerkonzepte zeigen, dass die Temperatur durch das Einlagern des Inventars und Verschließen der Einlagerungsschächte zunächst erhöht und dann wieder sinkt, bis langfristig die Ausgangstemperatur des Wirtge-

¹⁹ Dies kann dafür sorgen, dass das Behältermaterial porös wird. Aus experimentellen Untersuchungen ist bekannt, dass bei Drücken von 140 MPa und 80 MPa die Bildung von Eisenhydroxiden und Magnetit unterbunden wird. Da solch signifikante Spannungen durch die Wasserstoffproduktion jedoch nicht erreicht werden, wird die Bildung der Korrosionsprodukte dementsprechend nicht verlangsamt.

steins erreicht ist. Ein Anstieg der Temperatur kann die Korrosion beeinflussen /DAV 00/. Die Temperatur kann

- zur Aufrechterhaltung trockener Umgebungsbedingungen beitragen und damit etwaige Korrosionseffekte limitieren bzw. verzögern,
- die Korrosionsraten in wässrigen Umgebungen erhöhen²⁰ und
- Auswirkungen auf die Art und Stabilität der Korrosionsprodukte haben, welche wiederum die Korrosionsbeständigkeit beeinflussen.

Generell nimmt die Passivität metallischer Materialien mit steigender Azidität²¹ ab /KUR 04/. Die Effekte durch Änderungen im pH-Wert sind auch abhängig von der Art der in der Reaktionsumgebung vorhandenen Ionen. Diese können bspw. die anodischen Auflösungsprozesse beeinflussen bzw. die physikalischen und chemischen Eigenschaften der Korrosionsprodukte signifikant verändern. Außerdem beeinflusst der pH-Wert den Initiierungsprozess der lokalen Korrosionseffekte. Bei einer Abnahme des pH-Werts verschiebt sich bspw. das Potential für die Lochfraßkorrosion in die aktive Richtung. In stark basischen Umgebungen verschiebt sich das Potential für Lochfraßkorrosion hingegen in eine passive Richtung. Die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Lochfraßkorrosion ist jedoch unabhängig von der Höhe des pH-Wertes.

Korrosionsverhalten unter ionisierender Strahlung

Die Dosisrate, bei welcher Korrosionseffekte auftreten, hängt vom Material und den Strahlungseigenschaften des eingeschlossenen radioaktiven Abfalls ab. Gammastrahlung ist die einzige Form ionisierender Strahlung, welche an der Oberfläche der Endlagerbehälter zu erwarten ist /KUR 04/. Die Dosisleistung hängt dabei von der Wandstärke und Materialauswahl der Endlagerbehälter ab. Gammastrahlung trägt zur Entstehung oxidierender und reduzierender Radikale bzw. molekularer Stoffe bei, welche wiederum Einfluss auf die Korrosionsraten und -mechanismen haben. Beim Prozess der Spaltung von Wasser entstehen reaktive Radikale ($\text{OH}^\cdot$, $\text{H}^\cdot$, $\text{OOH}^\cdot$ und e^-_{aq}) und Moleküle (H_2O_2 , H_2 und O_2). Reduktions- und Oxidationsmittel werden durch die Radiolyse gleichermaßen produziert. In salzhaltigen Lösungen trägt die Gammastrahlung zur Entstehung von Cl_2^- - bzw. ClO^- -Ionen bei, welche einen signifikanten Effekt auf die Korrosionsarten haben.

²⁰ Bei höherer Temperatur kann die Reaktionsgeschwindigkeit und -umsatz erhöht werden, da die Aktivierungsenergie besser erreicht werden kann. Des Weiteren sind höhere Diffusionsraten von Ionen in den Elektrolyten bzw. in der Oxidschicht zu erwarten.

²¹ Azidität beschreibt die Fähigkeit einer chemischen Verbindung (i.d.R. Säuren) Protonen abzugeben.

Korrosionsexperimente

Die Geschwindigkeit der gleichmäßigen oder allgemeinen Korrosion wird in den meisten Fällen als Materialabtragungsrate in $\mu\text{m/a}$ angegeben. Diese Angabe lässt sich zumeist aus der Bestimmung des Gewichtsverlustes korrodierter Proben ermitteln und wird zeitlich gemittelt über eine bestimmte Versuchsdauer angegeben. Dadurch, dass Versuchsparameter wie Versuchsdauer, zeitliche Auflösung, Probenart, Temperatur, Elektrolytzusammensetzung, pH-Wert bzw. Art des Milieus (anaerob oder aerob) einen großen Einfluss auf das Korrosionsverhalten ausüben, sind die mittleren Abtragungsraten verschiedener Experimente mitunter nur bedingt vergleichbar. Spezifische Werte sind daher unter Vorbehalt zu betrachten, und der Fokus sollte darauf liegen, aus den zusammengetragenen Experimenten Tendenzen abzulesen. Um die Korrosionsbeständigkeit von Komponenten zu bestimmen, wird zumeist auf vorliegende Betriebserfahrungen bzw. experimentelle Ergebnisse zum Korrosionsverhalten zurückgegriffen. Dadurch können geeignete Werkstoffe ausgewählt werden bzw. kann eventuellen Unsicherheiten dadurch begegnet werden, dass entsprechende Sicherheitszuschläge für Korrosionseffekte gemacht werden.

Für das Konzept Streckenlagerung in Steinsalz wurde der POLLUX[®]-Behälter entwickelt²². Die im folgenden Abschnitt vorgestellten experimentellen Untersuchungen umfassen Labor- und auch in-situ-Experimente und wurden in Hinblick auf das Endlagerkonzept in Steinsalz durchgeführt. Die Korrosionsraten sind für die relevanten Materialien des POLLUX[®]-Behälter ermittelt. Aufgrund der schwer abschätzbaren Behälterlebensdauer im Hinblick auf lokale Korrosionseffekte haben sich Werkstoffe durchgesetzt²³, die aktiv korrodieren, sich jedoch durch eine allgemeine Flächenkorrosion erwarten lassen /FZJ 99/. Darüber hinaus finden sich die Korrosionsraten für den für die CSD-V-Kokillen verwendeten Edelstahl X12CrNi23-13. Außerdem sind die Korrosionsraten für Kohlenstoffstahl vorhanden, welcher für Behälter im schweizerischen Endlagerkonzept vorgesehen ist.

Nachfolgend wird auf Korrosionsexperimente eingegangen für:

1. Gusseisen (EN-GJS-400)
2. Feinkornbaustahl (15MnNi6-3)

²² Dieser besteht aus einem Innenbehälter aus Feinkornbaustahl (15MnNi6-3) mit einer Wandstärke von 160 mm. Der Innenbehälter ist mit einer 265 mm starken Schicht aus Späthrohguß aus EN-GJS-400 umgeben, welche als sog. verlorene Abschirmung dient.

²³ Für das Wirtsgestein Steinsalz

3. Edelstahl (X12CrNi23-13)
4. Kohlenstoffstahl (TStE 355)

Gusseisen (EN-GJS-400)

/FZJ 98/ bestimmte die Korrosionskinetik über gaschromatographische Analysen der Wasserstoffentwicklung. Es wurde festgestellt, dass die Anfangskorrosionsraten eine deutlich signifikantere Temperaturabhängigkeit aufweist und dass die Temperaturabhängigkeit über längere Versuchszeiträume abnimmt. Von /KIE 17b/ wurden Laborexperimente zum Korrosionsverhalten verschiedener Materialien in einer umfassenden Literaturrecherche zusammengetragen. Abtragungsraten für EN-GJS-400 wurden bspw. bei einer Temperatur von 150 °C in drei verschiedenen Salzlösungen ermittelt und sind in Abb. 4.19 aufgetragen. Aus den Experimenten ist ersichtlich, dass die maximalen Materialabtragungsraten in NaCl-Lösung (Lösung 3) bei ungefähr 70 $\mu\text{m/a}$ liegen. Die Abtragungsraten für MgCl_2 -haltige Lösungen liegen deutlich darüber und schwanken zwischen 350 $\mu\text{m/a}$ und 150 $\mu\text{m/a}$. Weiterhin konnte festgestellt werden, dass die Abtragungsraten bei verschweißten Proben signifikant erhöht waren²⁴.

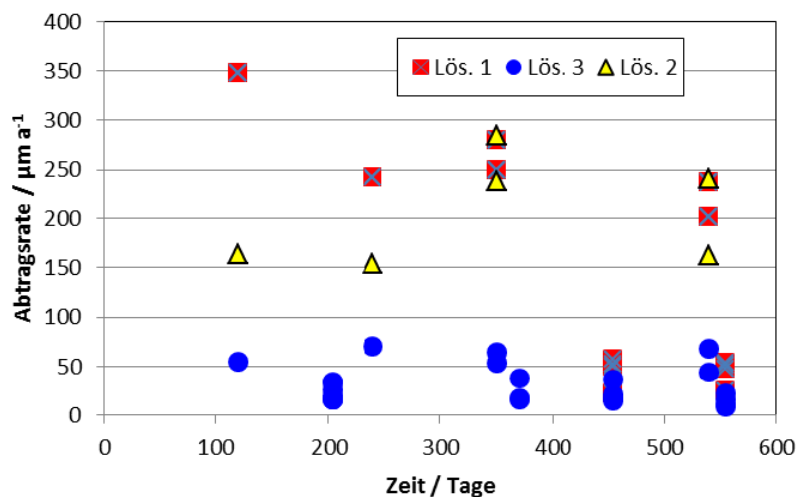


Abb. 4.19 Materialabtragsrate von Sphärograph GGG 40.3 in drei Salzlösungen bei 150 °C

Lös. 1: MgCl_2 - 14.4 mol/kg; Lös. 2: MgCl_2 - 17.1 mol/kg; Lös. 3: NaCl - 6.1 mol/kg /KIE 17b/

In /KFK 90/ wurden Abtragungsraten aus in-situ-Testversuchen im Asse-Bergwerk ermittelt. Für Temperaturen von 32 °C konnten in einem trockenen Salzgrus Abtragungsraten von 0,14 $\mu\text{m/a}$ ermittelt werden. Im Zuge der „Brine Migration Tests“ wurden Korrosionsraten von

²⁴ Die Maximalwerte, dargestellt in Abb. 4.19, konnten nur bei verschweißten Proben festgestellt werden /KIE 17b/.

1,01 µm/a ermittelt /KUR 04/. Diese Abtragungsraten wurden für einen begrenzten Laugenzutritt und unter Gammastrahlung mit einer Dosisleistung von 300 Gy/h ermittelt. Bei der Langzeitkorrosionsstudie BAMBUS-II konnten Materialabtragungsraten von 0,09 µm/a bei einer Temperatur von 90 °C und 0,08 µm/a bei einer Temperatur von 180 °C ermittelt werden /Smailos E. 2002/.

Von /2021/ wurden die Korrosionsraten für EN-GJS-400 in unterschiedlich konzentrierten salinären Lösungen bei verschiedenen pH-Werten und Temperaturen untersucht. Es konnte eine gleichmäßige Korrosion ohne die Bildung einer Passivierungsschicht festgestellt werden. Außerdem konnte ermittelt werden, dass die Korrosionspotentiale bei Raumtemperatur niedriger sind als bei Edelstahl²⁵. Zusammenfassend wurde festgestellt, dass der Korrosionsmechanismus mit der Zusammensetzung der Lösung zusammenhängt, wohingegen die Korrosionsrate vom pH_M-Wert beeinflusst wird /2021/.

Der für den POLLUX®-10 Außenbehälter vorgesehene Sphäroguss²⁶ zeigt einen generellen Trend für eine gleichmäßige Korrosion, bei der Material aktiv und annähernd flächig abgetragen wird. Lokale Korrosionseffekte wie Loch- und Spaltkorrosion treten nur vereinzelt auf. Außerdem konnte festgestellt werden, dass die Korrosionsabtragung durch NaCl gesättigte Elektrolyte weniger aggressiv abläuft als durch MgCl₂, CaCl₂ bzw. Q-Laugen.

Tab. 4.13 Materialabtragungsraten verschiedener Experimente; Außenbehälter POLLUX®-10 (EN-GJS-400, Werkstoff Nr. 0.7043)

Elektrolyt	T [°C]	t [d]	Materialabtragung [µm/a]	Beschreibung	Quelle
Asse-Bergwerk	32	-	0,14	In-situ	/KFK 90/
Asse-Bergwerk	120	700	1,01	In-situ ¹⁾	/KUR 04/, /KFK 90/
MgCl ₂ -reiche Q-Lauge	90	244	165,2	Laborversuch ²⁾	/SMA 86/
Asse-Bergwerk	90	3740	0,09 ± 0,04	In-situ ³⁾	/Smailos E. 2002/, /BEC 04/
	180	3740	0,08 ± 0,06		/Smailos E. 2002//BEC 04/
NaCl-Lösung	90	480	47,5 ± 5 µm	Laborversuch	/Smailos E. 2002/ /BEC 04/

²⁵ Es konnte festgestellt werden, dass der Umfang der gleichmäßigen Materialabtragung durch Korrosion vom pH_M-Wert gesteuert wird. In Systemen, in welchen der pH_M-Wert im Bereich von 5-6 lag (0.1 M NaCl bei 90°C) konnten Korrosionsraten von 10 µm/a beobachtet werden. Bei einem höheren pH_M-Wert von 9 betrugen die Korrosionsraten nach 42 Wochen ungefähr 1 µm/a.

²⁶ EN-GJS-400 (Werkstoffnummer 0.7043) wird auch bei den CASTOR®-Behältern eingesetzt-lim Falle einer direkten Einlagerung der Transport- und Lagerbehälter in Steinsalz können die gleichen Annahmen bzgl. der Korrosionseigenschaften getroffen werden.

Elektrolyt	T [°C]	t [d]	Materialab- tragung [µm/a]	Beschreibung	Quelle
NaCl-Lösung	90 150	33,3	4 - 7 65 - 100	Laborversuch	/FZJ 99/
MgCl ₂ -/ CaCl ₂ - Lösung	90 150	33,3	95 - 212 200 - 290		/FZJ 99/
Q-Lauge	90 150	33,3	46 - 92 97 - 250		/FZJ 99/
NaCl (0.1M NaCl)	90	294	10 für pH 5-6 1 für pH 9	Laborversuch	/2021/
Q-Lauge	90	33,3	89 - 92,1	Laborversuch	/FZJ 98/
NaCl	90	4,2	3,8 - 4,1	Laborversuch	/FZJ 98/
MgCl ₂ -/ CaCl ₂ - Lösung	90	33,3	95,9	Laborversuch	/FZJ 98/

¹⁾ Brine Migration Bestrahlung: 300 Gy/h; ²⁾ Bestrahlung: 1.000 Gy/h; ³⁾ BAMBUS II

Berechnungsbeispiel für Behälterlebensdauer

Bei einem stetigen Materialabtrag kann davon ausgegangen werden, dass ab einem gewissen Punkt die Stützwirkung der Behältermaterialien nicht mehr gegen die Gebirgslasten in einem Endlager standhält. Ab diesem Zeitpunkt ist anzunehmen, dass die strukturelle Integrität nicht mehr gegeben ist. Für das Endlager Gorleben sind aus der Literatur Gebirgslasten im Wertebereich von 17 MPa bis ungefähr 30 MPa erwartbar /DBE 08/. Die Abb. 4.20 zeigt die Grenztragfähigkeit eines TLB aus EN-GJS-400 in Abhängigkeit der Wandstärke. Die Angaben zur Grenztragfähigkeit gehen aus FE-Berechnungen eines CASTOR®-AVR/THTR-Behälters hervor /FZJ 99/ und sollen für den POLLUX®-Behälter im Folgenden beispielhaft herangezogen werden.

Die Grenztragfähigkeit wird hierbei zum einen in Abhängigkeit von Streckgrenzen- und zum anderen in Abhängigkeit des Bruchdehnungskriteriums abgebildet. Aus dem Kurvenlauf ist ersichtlich, dass die Tragfähigkeit der Behälter mit Abnahme der Wandstärke nachlässt. Für die strukturelle Integrität eines Endlagerbehälters ist das Bruchdehnungskriterium zur Bewertung der strukturellen Integrität gegen ein mögliches Behälterversagen als das zutreffendere anzusehen /FZJ 99/. Nimmt man Gebirgslasten von maximal 30 MPa an, kann davon ausgegangen werden, dass ein Versagen der strukturellen Integrität bei Restwandstärken von weniger als 70 mm zu erwarten ist.

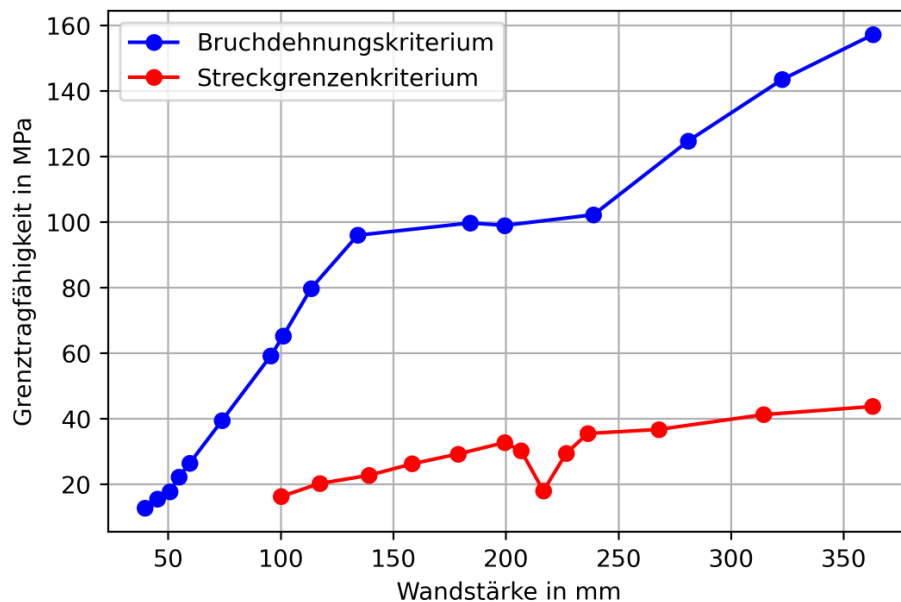


Abb. 4.20 Tragfähigkeit eines CASTOR®-AVR/THTR-Außenbehälters anhand des Streckgrenzen- und Bruchdehnungskriteriums /FZJ 99/

Für eine Oberflächentemperatur von 100 °C lassen sich entsprechende Korrosionsversuche heranziehen.

Nimmt man die Korrosionsraten von NaCl- bzw. der MgCl₂/CaCl₂-haltigen Lösungen für EN-GJS-400 (vgl. /FZJ 99/) bei einer Temperatur von 90 °C, ergibt sich eine Bandbreite von:

$$1 \mu\text{m/a (NaCl)} < v < 48 \mu\text{m/a (MgCl}_2\text{/CaCl}_2\text{)}$$

Bei einer Wandstärke des POLLUX® 10-Behälters von 265 mm und einer Grenztragfähigkeit des Behälters von ungefähr 70 mm ergibt sich, dass nach einer Abtragung von 195 mm mit einem Verlust der Strukturintegrität des Behälters zu rechnen ist. Daraus ergibt sich eine Bandbreite für die strukturelle Integrität des Außenbehälters τ_b von $(195 \text{E}3 \mu\text{m}/(48 \mu\text{m/a})$ und $195 \text{E}3 \mu\text{m}/(1 \mu\text{m/a})$:

$$4.062 \text{ a} \leq \tau_b \leq 195.000 \text{ a}$$

Diese Größenordnungen sind weit entfernt von den Beobachtungszeiträumen, welche realistisch für experimentelle Versuche sind und zeigen, dass signifikante Extrapolationen vorgenommen werden müssen. Dies stellt die Belastbarkeit solcher Rechnungen grundsätzlich in Frage. Für eine theoretisch vorgesehene Bergbarkeit der Behälter nach 500 Jahren /BMU 20/ ergibt sich aus den Berechnungen, dass die Korrosionsrate nicht größer als 390 $\mu\text{m/a}$ sein darf. Bei diesem Wert wird nach 500 Jahren eine Materialabtragung von 195 mm erreicht und

es besteht die Möglichkeit, dass die Behälter keine ausreichende mechanische Stabilität aufweisen und eine Handhabung ganzer Endlagergebäude nicht gegeben ist. Da die FE-Daten zur Grenztragfähigkeit nicht für eine POLLUX®-Behälter, sondern für einen CASTOR THT/AVR®-Behälter durchgeführt wurden, lassen sich die berechneten Werte nicht exakt übertragen und sollten nur zur Veranschaulichung dienen. Außerdem hat der POLLUX®-Behälter einen weiteren Innenbehälter, welcher selbst bei einem Verlust der strukturellen Integrität der Außenbehälter für eine Radionuklidimmobilität sorgt.

Feinkornbaustahl (15MnNi6-3)

Der Innenbehälter der POLLUX®-Endlagerbehälter besteht aus Feinkornbaustahl (15MnNi6-3) (Werkstoffnummer 1.6210) mit einer Wandstärke von 160 mm. Die Korrosionsraten für den Innenbehälter wurden von /GRA 98/ experimentell für drei verschiedene salinäre Lösungen bei einer Temperatur von 150 °C bestimmt. Bei den Versuchen konnten keine Anzeichen bzgl. lokaler Korrosion ermittelt werden. Die Korrosion (siehe Abb. 4.21) zeigt einen linearen Verlauf und nimmt über die Zeit zu. In NaCl-Lauge (Brine 3 - 25.9 wt%) konnte eine Korrosionsrate von 71,3 µm/a beobachtet werden. Dies ist deutlich geringer als für die MgCl₂-Laugen (Brine 1 - 26.8 wt% und Brine 2 - 33 wt%), bei denen Korrosionsraten in einem Bereich von 94 bis 117,3 µm/a beobachtet wurden. Außerdem konnte ermittelt werden, dass es in verschweißten Proben zu einem Anstieg lokaler Korrosionseffekte in der sog. Heat Affected Zone (HAZ) kam. /GRA 98/ erwähnen, dass selbst bei stark korrodierenden Medien davon ausgegangen werden kann, dass bei einer Wandstärke des Innenbehälters von 160 mm die strukturelle Integrität für die ersten 500 Jahre nicht gefährdet ist.

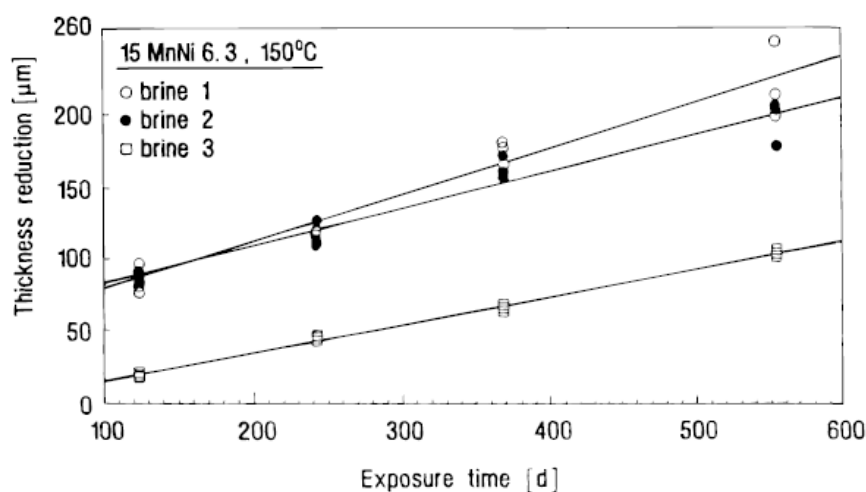


Abb. 4.21 Korrosionsraten von 15MnNi6-3 bei 150 °C in drei unterschiedlichen salinaren Lösungsmedien /GRA 98/

15MnNi6-3 wurde auch im Zusammenhang mit dem Forschungsvorhaben BAMBUS II in in-situ-Verfahren untersucht. Hier wurden Materialproben auf elektrisch beheizbaren Behälter für eine Dauer von 3740 Tagen ins Asse-Bergwerk verbracht und anschließend untersucht. Bei den Versuchen konnten Korrosionsraten von $0,05 \pm 0,01 \mu\text{m/a}$ bei einer Temperatur von 90°C und Korrosionsraten von $0,05 \pm 0,03 \mu\text{m/a}$ bei einer Temperatur von 180°C ermittelt werden. Die Temperatureffekte in den in-situ-Versuchen sind deutlich geringer als in den Laborversuchen. Außerdem konnten, ähnlich wie bei EN-GJS-400, deutlich geringere Abtragungsraten festgestellt werden.

In Versuchen von /SMA 91/ konnte ermittelt werden, dass bei einer Temperatur von 90°C Dosisleistungen von 1 Gy/h bis 100 Gy/h nicht ausreichend waren, um das Korrosionsverhalten des 15MnNi6 zu verändern (vgl. Abb. 4.22). Außerdem konnte keine signifikante Abnahme der Korrosionsbeständigkeit gegenüber lokalen Effekten wie Lochfraß- und Spaltkorrosion ermittelt werden. Erst bei hohen Gamma-Dosisleistungen von 1.000 Gy/h konnten erhebliche Gewichtsverluste beobachtet werden

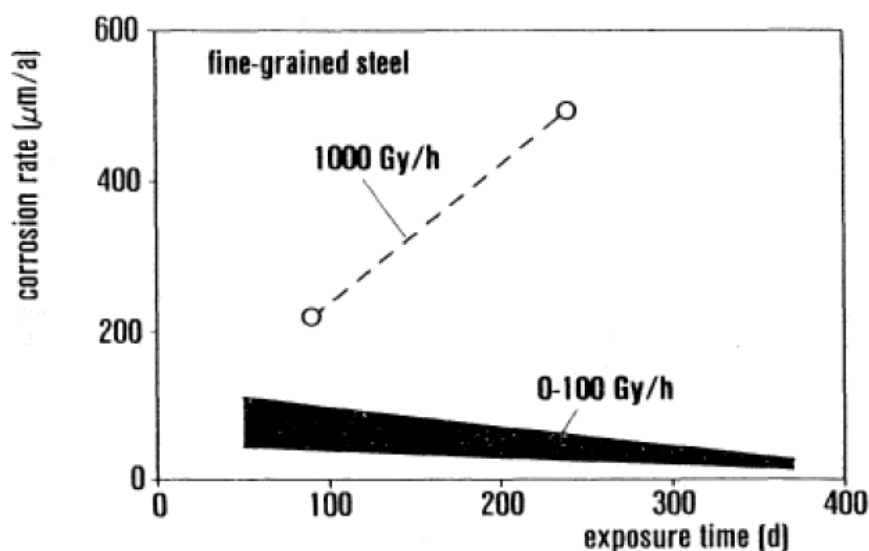


Abb. 4.22 Allgemeine Korrosionsrate von 15MnNi6 bei 90°C in MgCl_2 -Lösung mit und ohne Gamma-Bestrahlung /KIE 17b/

In /FZJ 99/ sind die Abtragungsraten von 15MnNi6-3-Proben in verschiedenen salinaren Lösungen ermittelt worden. Es ergaben sich deutliche Steigerungen der Materialabtragung in Abhängigkeit zur Temperatur. Außerdem konnte auch hier eine deutliche Abhängigkeit der Korrosionsbeständigkeit der Materialien von der Art der Lauge ermittelt werden. Bei einer Temperatur von 90°C ergaben sich Abtragungsraten von 1 bis $2 \mu\text{m/a}$ in einer NaCl -Lösung und 156 bis $199 \mu\text{m/a}$ und 75 bis $78 \mu\text{m/a}$ in $\text{MgCl}_2/\text{CaCl}_2$ - bzw. in Q-Lauge. Außerdem wurden in /FZJ 98/ aus den Wasserstoffbildungsraten die zugehörigen Korrosionsraten ermittelt. Hierbei

ergaben sich für Steinsalz Wasserstoffbildungsraten von 14.440 $\mu\text{l/m}^2\text{h}$ bis 1.739 $\mu\text{l/m}^2\text{h}$, was Abtragungsraten von 4,1 bis 4,9 $\mu\text{m/a}$ entspricht. Die Korrosionsraten relevanter Experimente sind in Tab. 4.14 zusammengetragen.

Tab. 4.14 Materialabtragungsraten verschiedener Experimente; Innenbehälter POLLUX® (15MnNi6-3, Werkstoff Nr. 1.6210)

Elektrolyt	T [°C]	t [d]	Materialabtragungsrate [$\mu\text{m/a}$]	Beschreibung	Quelle
Q-Lauge	90	244	165,2	Laborversuch ¹⁾	/SMA 86/
Asse-Bergwerk	90	3740	Nicht geschweißt: $0,05 \pm 0,01$; UP-geschweißt: $0,06 \pm 0,03$	In-situ ²⁾	/Smailos E. 2002/
	180	3740	Nicht geschweißt: $0,05 \pm 0,03$; UP-geschweißt: $0,05 \pm 0,04$		/Smailos E. 2002/
NaCl	150	365	127,5	Laborversuch	/KFK 92/
MgCl ₂	150	365	112,0		/KFK 92/
Q-Lauge	150	365	72,0		/KFK 92/
NaCl	150	540	117,3		/KFK 93/
MgCl ₂	150	540	94,0		/KFK 93/
Q-Lauge	150	540	71,3		/KFK 93/
NaCl	90	33,3	1 - 2		/FZJ 99/
	150		71 - 94		
MgCl ₂ /CaCl ₂	90	33,3	156 - 199		/FZJ 99/
	150		178 - 205		
Q-Lauge	90	33,3	75 - 78		/FZJ 99/
	150		320 - 422		

¹⁾ Bestrahlung: 1.000 Gy/h; ²⁾BAMBUS II

Aus den in Tab. 4.14 zusammengestellten Werten ist ersichtlich, dass selbst bei stark korrodierenden Medien davon ausgegangen werden kann, dass bei einer Wandstärke des Innenbehälters von 160 mm die strukturelle Integrität für die ersten 500 Jahre nicht gefährdet und damit eine Handhabung der Behälter gegeben ist²⁷. Dies ist auch dann der Fall, wenn die Grenztragfähigkeit der Innenbehälter für Materialabtragungen von weniger als 160 mm nicht mehr gegeben sein sollte. Da den Autoren keine FE-Simulationsergebnisse zur Grenztragfähigkeit bzw. des Bruchdehnungskriterium bzgl. 15MnNi6-3 vorliegen, lassen sich diesbezüglich keine genauen Aussagen treffen. Vor allem, aus den ermittelten in-situ-Werten /Smailos E. 2002/, die deutlich geringer ausfallen als die im Labor ermittelten Korrosionsraten, ergeben sich Werte für die strukturelle Integrität von mehreren 10.000 Jahren.

²⁷ Der Endlagerbehälter muss die Anforderungen bzgl. einer eventuellen Bergung innerhalb der ersten 500 Jahre nach dem Verschluss des Endlagers, gemäß den Sicherheitsanforderungen des /BMU 10b/ erfüllen.

Edelstahl (X12CrNi23-13)

Das Korrosionsverhalten austenitischer Edelstähle ist gut erforscht. X12CrNi23-13 (Werkstoffnummer 1.4833) wird als Behältermaterial der Edelstahlkannen für Abfälle aus der Wiederaufbereitung verwendet. Im Vergleich zu niedrig legierten Stählen bzw. Materialien aus Gusseisen zeigt X12CrNi23-13 eine erhöhte Anfälligkeit dafür lokal zu korrodieren. Im Rahmen des belgischen Endlager-Forschungsprogramms wurden eine Reihe von Edelstählen untersucht. Es konnte festgestellt werden, dass Thiosulfate bzw. andere sulfathaltige Stoffe korrosionsfördernd sind, da sie Spannungsrisskorrosion begünstigen /KUR 04/. Edelstahl zeigt in Kombination mit zementhaltigen Puffermaterialien gute Eigenschaften, da alkalisches Porenwasser durch das Puffermaterial diffundiert und somit eine gleichmäßige Korrosion verlangsamt und lokale Korrosionseffekte (auch bei erhöhten Temperaturen) und mikrobiell induzierte Korrosion unterbindet.

In den von /KIE 17b/ beschriebenen Versuchen zeigt X12CrNi23-13 in einer MgCl_2 -Lösung eine verringerte Beständigkeit gegenüber Spannungsrisskorrosion. Außerdem konnten weitere lokale Korrosionseffekte wie bspw. Lochfraß- und Spaltkorrosion beobachtet werden. In in-situ-Langzeit-Versuchen (Asse-Bergwerk) wurde eine flächige Korrosionsrate von $0,02 \mu\text{m/a}$ bei einer Temperatur von 180°C und nach einer Zeit von 504 Tagen bestimmt /SMA 02/. In /SMA 96/ wird für ähnliche Versuche eine Korrosionsrate von $0,7 \mu\text{m/a}$ bei einer Temperatur von 190°C nach einer Zeit von 1935 Tagen /SMA 96/ angegeben. Die Edelstahlproben zeigten jedoch erhebliche lokale Korrosionseffekte mit zugehörigen Korrosionstiefen von $30 \mu\text{m}$ /SMA 02/ bis $200 \mu\text{m}$ /SMA 96/ sowie zusätzliche Zeichen von Spannungsrisskorrosion /SMA 02/, /SMA 96/. Bezüglich der veränderten Korrosionseigenschaften von Edelstählen in Folge von Gammastrahlung konnten /SMA 91/ ermitteln, dass das Korrosionspotential²⁸ signifikant gesteigert werden kann, wenn ein Strahlungsfeld mit einer Dosisleistung 10^4 Gy/h angelegt wird /SHO 99/.

Von /2021/ wurde das Korrosionsverhalten von polierten Proben aus X12CrNi23-13 unter anaeroben Bedingungen in verdünnten und konzentrierten Salzlösungen bestimmt. In einer 5 M NaCl-Lösung konnte kein signifikanter Korrosionsangriff auf die untersuchten Oberflächen ermittelt werden. Auch in MgCl_2 -Lösungen konnten, unabhängig von der Konzentration, keine signifikanten Korrosionsvorgänge beobachtet werden. Bei der Bestimmung des Massenverlusts der Proben wurden auch über längere Versuchszeiten von einem Jahr nur geringe

²⁸ In einer $0,018 \text{ mol/l}$ -haltigen NaCl-Lösung

Korrosionsraten von $< 0,1 \mu\text{m/a}$ festgestellt²⁹. Im Zusammenhang mit den durch /2021/ durchgeführten Versuchen konnte keine Lochfraßkorrosion nachgewiesen werden. Ursächlich könnten die zu geringen Kontaktzeiten für das Initiieren der Lochfraßkorrosion sein. Eine Übersicht über relevante Korrosionsexperimente für X12CrNi23 ist in Tab. 4.15 dargestellt.

Tab. 4.15 Materialabtragungsraten verschiedener Experimente; X12CrNi23-13 (AISI Type 309 SS, Werkstoff Nr. 1.4833)

Umgebung	T [°C]	t [d]	Materialabtragung [$\mu\text{m/a}$]	Lokale Korrosion [μm]	Beschreibung	Quelle
Asse-Bergwerk	190	1935	0,7	200	In-situ	/SMA 96/
Asse-Bergwerk	180	504	$1 \pm 0,6$	30	In-situ ¹⁾	/KFK 93/, /SMA 99/
Asse-Bergwerk	90	3740	Nicht geschweißt $0,3 \pm 0,2$	50	In-situ ²⁾	/SMA 86/, /Smailos E. 2002/
Asse-Bergwerk	180	3740	Nicht geschweißt $0,02 \pm 0,001$	20	In-situ ²⁾	/SMA 86/, /Smailos E. 2002/
NaCl	25 - 90	182	$< 0,1$	-	Laborversuch	/2021/
MgCl ₂	25 - 90	182	$< 0,1$	-	Laborversuch	/2021/

¹⁾ DEBORA; ²⁾ BAMBUS II

Die Untersuchungen zeigen, dass bei den als korrosionsbeständig geltenden hochlegierten Edelstählen eine Tendenz zu lokaler Korrosion (Lochfraßkorrosion, Spannungsrisskorrosion etc.) zu beobachten ist. Aus den durch /SMA 96/, /SMA 86/, /Smailos E. 2002/, /KFK 93/ ermittelten Eindringtiefen aufgrund lokaler Lochfraßkorrosionseffekte ist bei einer Wandstärke der CSD-V Kokillen von nur 5 mm unter konservativen Annahmen damit zu rechnen, dass die strukturelle Integrität nach wenigen Jahrzehnten nicht mehr gegeben ist.

Kohlenstoffstahl (TStE 355)

Der Feinkorn- bzw. Kohlenstoffstahl (TStE 355) wurde als Behältermaterial im Zuge von Endlagerforschungsvorhaben in Deutschland, Belgien, Spanien und der Schweiz in allen drei Wirtsgesteinen untersucht. Speziell im NAGRA-Behälterkonzept wurden mehrere Kohlenstoffstähle untersucht, die in ihren Eigenschaften dem Werkstoff TStE 355 sehr ähnlich sind.

Für granitische Lösungen wurde das Korrosionsverhalten von /SMA 01/ untersucht. Unter aeroben Bedingungen war TStE 355 nur im niedrigkonzentrierten Granitwasser bei einer Chloridkonzentration von 98 mg/l stabil. Hier konnte eine allgemeine Abtragungsrate von $21,1 \mu\text{m/a}$

²⁹ Hier lag der pH_M-Wert zwischen 5,6 und 7,3.

ermittelt werden. Die allgemeine Korrosionsrate betrug trotz der deutlich höheren Chlorid-Konzentration von 6,26 g/l lediglich 22,6 $\mu\text{m/a}$. Für höher konzentriertes Ciemat-Referenz-Wasser wurde eine signifikante Lochfraßkorrosion ermittelt³⁰. In /L. H. Johnson, F. King 2003/ sind die allgemeinen Abtragungsraten für synthetisches Granitwasser mit 0,1 $\mu\text{m/a}$ angegeben. Auch für Grundwasser aus dem Äspö mit einer Chloridkonzentration von 0,3 mol/l wird eine Abtragungsrate von 0,1 $\mu\text{m/a}$ angegeben.

In /L. H. Johnson, F. King 2003/ sind Korrosionsraten für TStE 355 in Opalinuston zusammengestellt. In feuchtem Ton konnten Abtragungsraten in einem Bereich von 0,02 bis 0,34 $\mu\text{m/a}$ bei einer Temperatur von 170 °C ermittelt werden. Für Tonwasser wird bei gleichen Bedingungen eine deutlich niedrigere Korrosionsrate von 0,5 bis 2,1 $\mu\text{m/a}$ angegeben³¹. Unter anaeroben Bedingungen wird in /L. H. Johnson, F. King 2003/ für Opalinuston mit einer Abtragungsrate von 1 $\mu\text{m/a}$ gerechnet, was nach 1000 Jahren einer Abtragung von 1 mm entspricht. Es ist diesbezüglich vermerkt, dass eine Korrosionsrate von 0,1 $\mu\text{m/a}$ als konservativ angenommen ist und die tatsächlichen Raten deutlich geringer ausfallen sollten. Die Materialabtragung von TStE 355 in Folge von Korrosion wird mit 1,5 cm für einen Zeitraum von 1000 Jahren angegeben /L. H. Johnson, F. King 2003/.

In /GRS 11/ wird erwähnt, dass mikrobielle Prozesse die Korrosionsbeständigkeit von TStE 355 deutlich herabsetzen können. Demnach wurde eine Verdopplung der Korrosionsrate im Vergleich von Bedingungen mit sulfatreduzierenden Bakterien zu sterilen Bedingungen beobachtet (20 %-Lösung aus Callavo-Oxfordian-Ton). Unabhängig vom Wirtsgestein sind Abtragungsraten von bis zu 700 $\mu\text{m/a}$ durch mikrobielle induzierte Korrosion möglich /GRS 11/. Außerdem verstärken sich durch mikrobielle Prozesse lokale Korrosionseffekte. Die Korrosionsraten für TStE 355 und unlegierte Stähle wurden auch in einer Reihe von Langzeitkorrosionsexperimenten untersucht (siehe Tab. 4.16).

Tab. 4.16 Materialabtragungsraten verschiedener Experimente; unlegierte Stähle/Kohlenstoffstahl und TStE 355 (Werkstoff Nr. 1.0566) und unlegierte Stähle

Umgebung	T [°C]	t [a]	Material	Materialabtragung [$\mu\text{m/a}$]	Beschreibung	Quelle
Feuchter Ton	170	0,5	Kohlenstoffstahl	0,02 - 0,34	-	/L. H. Johnson,

³⁰ Die TStE 355 Proben zeigten lokale Abtragungen von bis zu 1200 μm nach 300 Tagen.

³¹ Eine weitere Untersuchung der Korrosionseigenschaften bei einer Temperatur von 90°C und einer Expositionszeit von neun Monaten ergab Materialabtragungswerte von 25 $\mu\text{m/a}$. Die hohen Abweichungen in den Korrosionseigenschaften lassen auf eine unterschiedliche Zusammensetzung der Tonwasser schließen.

Umgebung	T [°C]	t [a]	Material	Materialabtra- gung [µm/a]	Beschreibung	Quelle
						F. King 2003/
Tonwasser	170	0,5	Kohlenstoffstahl	0,5 - 1,1	-	/L. H. Johnson, F. King 2003/
Tonwasser	90	0,75	Kohlenstoffstahl	25	-	/L. H. Johnson, F. King 2003/
Ton	-	-	Kohlenstoffstahl	< 1 mm ae- robe Korro- sion, 10 mm Lochfraß; 1 mm anae- robe Korrosion	Annahme Nagra nach 1.000 a ergibt Gesamtab- trag < 1,5 cm ¹⁾	/L. H. Johnson, F. King 2003/
Ton	-	-	TStE 355	30	sulfatreduzie- rende Bakterien verdoppeln Korro- sionsrate	/GRS 11/
Ton	-	-	TStE 355	700	durch Mikrobielle Korrosion	/GRS 11/
Granitwasser	-	-	TStE 355	21,1 ± 2,1	98 mg/l Chlorid	/SMA 01/
Granitwasser	-	-	TStE 355	22,6 ± 3,6	6260 mg/l Chlorid	/SMA 01/
Granit	-	-	Kohlenstoffstahl	-	Annahme Nagra nach 1000 Jahren ergibt ≤ 30 mm ¹⁾	/L. H. Johnson, F. King 2003/
MgCl ₂	90 170 200	4	TStE 355	69,7 199,4 651	Laborversuch	/KFK 93/
Q-Lauge	90 170 200	4	TStE 355	37,6 307,9 462,8	Laborversuch	/KFK 93/
NaCl	90 170 200	4	TStE 355	5,1 46 18,3	Laborversuch	/KFK 93/
Asse-Bergwerk	150	1,91	TStE 355	13,68	in-situ-Versuch ²⁾	/KFK 92/
Asse-Bergwerk	150	2,46	TStE 355	0,95	in-situ-Versuch ³⁾	/KFK 92/
Asse-Bergwerk	180	1,48	TStE 355	17,1	in-situ-Versuch ⁴⁾	/SMA 99/
Asse-Bergwerk	90	10,24	TStE 355	0,07 ± 0,01	in-situ-Versuch ⁵⁾	/Smailos E. 2002/
Asse-Bergwerk	90	1,31	TStE 355	5,1 ± 2,2	in-situ-Versuch ⁵⁾	/Smailos E. 2002/
Asse-Bergwerk	190	5,3	TStE 355	40 ± 20	in-situ-Versuch ⁵⁾	/SMA 96/

- 1) Theoretische Abschätzung
- 2) Brine-Migration 300 Gy/h
- 3) Brine-Migration ohne Dosisleistung
- 4) DEBORA nicht geschweißte Proben
- 5) BAMBUS-II

Die aus den experimentellen Untersuchungen zusammengetragenen Korrosionsraten (vgl. Tab. 4.16) für unlegierte Stähle bzw. Kohlenstoffstahl fallen je nach Wirtsgestein und Korrosionsart sehr unterschiedlich aus. Für Ton gehen Abschätzungen der NAGRA /L. H. Johnson, F. King 2003/ von einem Materialabtrag von weniger als 1,5 cm nach einer Zeit von 1000 Jahren aus. Bzgl. der Korrosionsraten in Granit wird durch /L. H. Johnson, F. King 2003/ ein Materialabtrag von 30 mm nach einer Zeit von 1000 Jahren unter konservativen Annahmen abgeschätzt. Diese beiden Werte liegen deutlich unter der vom NAGRA-Behälterkonzept vorgesehenen Behälterwandstärke von 120 bis 140 mm. Die durch /GRS 11/ ermittelten, im Vergleich, sehr hohen Werte für die mikrobielle Korrosion zeigen die Relevanz eines Overpackmaterials, welches den Zutritt von Bakterien zu den Behältern begrenzt.

Unterschiede von in-situ-Experimenten und Laborexperimenten

Im Forschungsbergwerk Asse erfolgten eine Reihe von in-situ-Korrosionsexperimenten mit verschiedenen Materialien wie Feinkornbaustahl, Gusseisen, Ti99.8-Pd, Hastelloy-C4 etc.. Hierbei konnte festgestellt werden, dass sich die Korrosionseigenschaften bei in-situ-Experimenten zum Teil stark von Experimenten unter Laborbedingungen unterschieden. Unter Laborbedingungen waren die Korrosionsraten bspw. für Spähhrohguss mit ungefähr 50 µm/a deutlich höher als unter in-situ-Bedingungen (< 1 µm/a) /Smailos E. 2002/. Die geringeren Korrosionsraten bei den in-situ-Experimenten können dadurch erklärt werden, dass die Menge an Elektrolyt, welches mit den Materialproben in Kontakt kommt, deutlich geringer ist. Unter Laborbedingungen, in denen die Proben vollständig durch Elektrolytlösungen umschlossen sind, ergeben sich höhere Korrosionsraten. Da sowohl Feinkornbaustahl als auch Gusseisen aktiv korrodieren, hängt die Korrosionsrate stark von der vorhandenen Menge an salzhaltiger Lauge ab. Nur bei titan- und nickelbasierten Verbindungen waren die in-situ-Ergebnisse den Laborergebnissen ähnlich /Smailos E. 2002/.

Bezüglich einer Übertragung von Behälterlebensdauern auf unterschiedliche Wirtsgesteine können nur allgemeine Aussagen getroffen werden. Dies gilt auch wegen der unterschiedlichen Umgebungsparameter innerhalb eines Wirtsgesteins. So sind in trockenen Steinsalzformationen Materialabtragungsraten durch Korrosion als gering anzunehmen, wohingegen bei einem Zutritt wässriger Lösungen ein wesentlich aggressiveres geochemisches Milieu entsteht und dementsprechend höhere Korrosionsraten anzunehmen sind.

4.2.1.2 Kupfer

Kupfer hat sich als bevorzugtes Behältermaterial und Korrosionsschutz in Schweden /SWE 78/, Finnland /PAS 07/ und Kanada /KIN 00/ etabliert. Auch andere Länder wie Japan /JAP 00/ haben Kupfer als Behältermaterial in Betracht gezogen. Im Vereinigten Königreich wurde ein Behältermodell aus Kupfer entwickelt /KIN 11/.

Der Fokus liegt dabei auf sauerstofffreien Kupferwerkstoffen, zu welchen Phosphor (30 bis 70 ppm) zugefügt wird, um die Kriecheigenschaften zu verbessern /SWE 06/. Kupfer weist für zu erwartende Endlagerbedingungen hervorragende Eigenschaften auf, da es in wässrigen Lösungen unter anaeroben Bedingungen und bei geringen Konzentrationen von Sulfiden thermodynamisch stabil gegenüber Korrosion ist. Sind in der Umgebung jedoch Komplexbildner wie bspw. Cl^- , HS^- , $\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$ und NH_4^+ -Ionen vorhanden, kann davon ausgegangen werden, dass korrosive Prozesse ablaufen. Kupferwerkstoffe besitzen außerdem die Eigenschaft, in einer Chlorid-Ionen-Umgebung gleichmäßig zu korrodieren, woraus sich wiederum die Korrosionsraten gut abschätzen lassen³². Für Sulfid-Konzentrationen im Grundwasser von bis zu 1 mg/l kann mit Materialabtragungsraten im Nanometerbereich pro Jahr gerechnet werden /SKB 10/. Die in einem Endlager vorherrschenden Korrosionsmechanismen lassen sich hinsichtlich der Zeitspanne wie folgt unterteilen /ESK 21/:

- Aerobe Korrosion in Gegenwart von Restsauerstoff in der ungesättigten Zone des Bentonit-Buffers
- Anaerobe Korrosion in der ungesättigten Zone des Bentonit-Buffers verursacht durch den Saunaeffekt (Aufkonzentration von Salzen) über einen Zeitraum von einigen hundert bis tausend Jahren nach Verschluss
- Anaerobe Korrosion durch Einwirkung von Sulfid³³ über den gesamten Zeitraum anaerober Bedingungen
- Strahlungseffekte (bis zum Zerfall der wichtigsten Spaltprodukte)

³² Im schwedischen und im finnischen Endlagerkonzept wird Kupfer als Behältermaterial in Kombination mit einem Bentonitpuffer eingesetzt. Der Bentonitpuffer dient dazu, die Zufuhr von O_2 und HS^- -Ionen zur Behälteroberfläche zu minimieren, einen neutralen pH-Wert herzustellen und die Menge von anfänglich eingefangenen Sauerstoff und mikrobieller Aktivität zu limitieren. Ab dem Zeitpunkt, in dem der eingeschlossene Sauerstoff aufgebraucht ist, wird die Korrosionsrate maßgeblich durch die Diffusionsrate von HS^- -Ionen durch die Bentonitschicht bestimmt.

³³ Sulfid reagiert mit elementarem Kupfer gemäß der Gleichung: $2 \text{Cu} + \text{HS}^- + \text{H}^+ \rightleftharpoons \text{Cu}_2\text{S} + \text{H}_2$

/KIN 11/ erwähnt, dass die Korrosionsrate unter aeroben Bedingungen unbedeutend ist, da sie im Grunde durch den im Endlager eingefangenen Sauerstoff begrenzt ist. Sollten sich in Folge von Korrosion schwerlösliche sulfidische Korrosionsprodukte bilden und die Oberfläche bedecken, dient diese als Passivierungsschicht und damit als Schutz gegen weitere Korrosionseffekte. An Stellen, an denen die Passivierungsschicht beschädigt ist, können jedoch lokalisierte Korrosionseffekte auftreten.

Experimentelle Untersuchungen zur Kupferkorrosion

/SKB 10/ geht davon aus, dass nach einem Zeitraum von 1 Mio. Jahren eine Schicht von weniger als 5 mm abgetragen wird. Dies entspricht einer Korrosionsrate von ungefähr 5 nm/a. Laut /SKB 10/ und /ESK 21/ sind keine Korrosionsprozesse bekannt, welche eine 50 mm starke Kupferhülle, die im schwedischen Endlagerkonzept vorgesehen ist, in einem Zeitraum von 100.000 Jahren durchdringen³⁴.

Für ein Endlagerkonzept in Steinsalzlösungen wurden von /KIE 17b/ Untersuchungen zusammengetragen, welche die Korrosion von reinem Kupfer ($\text{Cu} > 99\%$) und Kupferlegierungen ($\text{Cu } 90\%/\text{Ni } 30\%$ und $\text{Cu } 70\%/\text{Ni } 30\%$) in Salzlösungen betrachten /KIE 17b/. Hierbei wurden sowohl MgCl_2 - als auch NaCl -Lösungen unter Zugabe von Na_2S untersucht. Die Experimente fanden bei einer Temperatur von 150°C statt. Die Ergebnisse des Korrosionsverhaltens der Kupferlegierung ($\text{Cu } 70\%/\text{Ni } 30\%$) zeigt Abb. 4.23.

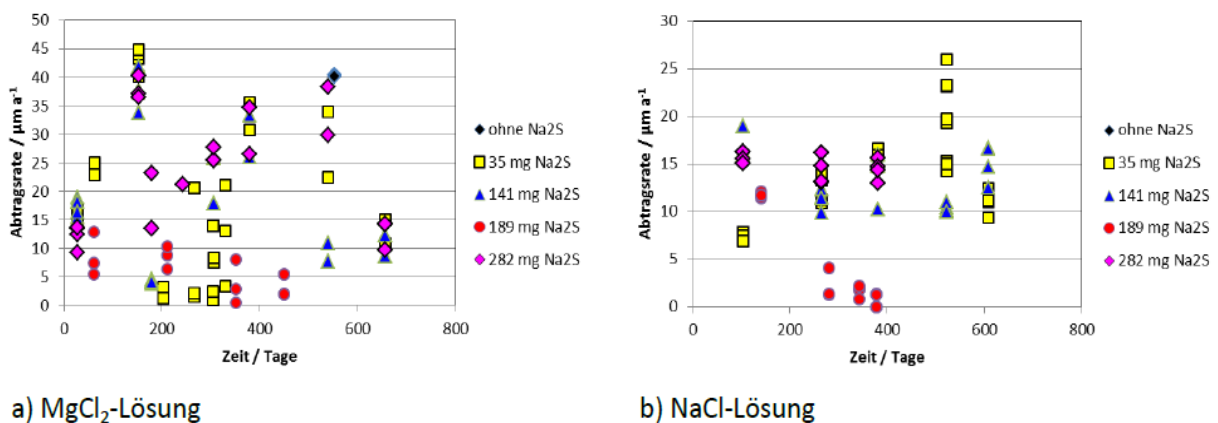


Abb. 4.23 Abtragungsraten der Legierung ($\text{Cu } 70\%/\text{Ni } 30\%$) gemessen über verschiedene Zeiträume in MgCl_2 - und in NaCl -Lösungen bei 150°C und für unterschiedliche Sulfid-Konzentrationen /KIE 17b/

³⁴ In /ESK 21/ ist hierzu vermerkt, dass die Tiefenwasser in Deutschland hochmineralisiert sind und demzufolge deutlich höhere Chloridgehalte aufweisen, als in den skandinavischen Standorten der Fall ist. Das kann die Materialabtragungsraten deutlich vorantreiben, da Chlorid-Ionen das Korrosionsverhalten beschleunigen.

Aus Abb. 4.23 kann geschlossen werden, dass die Konzentration an Sulfid-Ionen bei der Kupferlegierung (Cu 70 %/ Ni 30 %) keinen Einfluss auf die Materialabtragungsraten hat. In NaCl- und in MgCl₂-Lösungen konnten maximale Abtragungsraten von 25 µm/a bzw. 45 µm/a bei den jeweils geringsten Na₂S-Konzentrationen ermittelt werden. In reinen NaCl-Lösungen bildet Kupfer eine passive Oberflächenschicht aus, die vor weiteren Korrosionsprozessen schützt. Auch für reines Kupfer konnten hohe Korrosionsraten und spongiöse Oberflächenstrukturen nach einer Zeit von 614 Tagen ermittelt werden.

Für das Auftreten von Spannungsrisskorrosion in Kupfer sind zum einen eine Zugspannung und zum anderen ein unterstützendes aggressives Medium nötig. Hochreines Kupfer, insbesondere mit einem erhöhten Phosphorgehalt, ist nicht vollständig beständig gegenüber Spannungsrisskorrosion. Laut /SKB 10/ gibt es jedoch keinerlei Hinweise für Spannungsrisskorrosionen im Zuge der langen anaeroben Phase. Für diese Bedingungen konnten für die Geschwindigkeit, mit welcher sich Risse ausbreiten, Werte von 0,1 µm pro 100.000 Jahre abgeschätzt werden. Sulfid-Ionen, welche das Risswachstum beschleunigen, werden durch den Bentonitpuffer abgehalten und gelangen dadurch nicht zur Riss Spitze.

Tab. 4.17 Materialabtragungsraten verschiedener Experimente; reines Cu und Cu30Ni

Elektrolyt	T [°C]	Material	Materialabtragung [µm/a]	Beschreibung	Quelle
Granitwasser; Chloridgehalt 98 mg/l	90	Cu	4,3 ± 0,5	Laborversuch	/SMA 04/
Bentonitwasser; Chloridgehalt 6550 mg/l	25	Cu30Ni	21	Laborversuch	/SMA 04/
Bentonitwasser; Chloridgehalt 6550 mg/l	90	Cu30Ni	70	Laborversuch	/SMA 04/
Bentonitwasser; Chloridgehalt 50000 mg/l	25	Cu30Ni	65	Laborversuch	/SMA 04/
Bentonitwasser; Chloridgehalt 50000 mg/l	90	Cu30Ni	390	Laborversuch	/SMA 04/
Korrosion in Kristallgestein		Cu	Abtrag von max. 5 mm nach 1E6 Jahren	Theoretische Abschätzung für aerobe und anaerobe Phase	/SKB 10/
Korrosion in Kristallgestein		Cu	Abtrag von max. 2 mm nach 1E6 Jahren	Theoretische Abschätzung für aerobe und anaerobe Phase	/POS 12/

4.2.1.3 Hüllrohre

Zirkonium-Legierungen

Legierungen aus Zirkonium kommen als Hüllrohrmaterialien weltweit zum Einsatz. Sie verfügen über einen geringen Neutronenabsorptionsquerschnitt, gute mechanische Eigenschaften und exzellente Korrosionseigenschaften. Zircaloy-2 bzw. Zircaloy-4 gehören zu den am häufigsten verwendeten Legierungen³⁵.

Zirkonium ist äußerst reaktiv und bildet, sobald es in Kontakt mit Wasser kommt, eine passivierende Oxidschicht aus. Die Oxidation von Hüllrohrmaterialien aus Zirkonlegierungen erfolgt gemäß folgender chemischer Reaktion:



Gemäß Reaktionsgleichung (4.6) entsteht eine ZrO_2 -Deckschicht an der äußeren Brennstaboberfläche. Die Korrosion setzt das Vorhandensein von Wasser voraus. In den TLB ist eine maximal zulässige Restfeuchte vorgeschrieben, welche durch eine Entwässerung und Trocknung erreicht wird und in der Größenordnung von 1 g/m³ liegt /ELL 10/. Da das zur Korrosion benötigte Wasser nur geringfügig vorhanden ist und die Temperatur der Behälter kontinuierlich abnimmt, ist anzunehmen, dass die Hüllrohrwandstärke ausreicht und degradierende Effekte der Hüllrohrkorrosion auch während einer verlängerten Zwischenlagerung zu vernachlässigen sind.

Korrosionsverhalten unter Endlagerbedingungen

/AHN 99/ berichten, dass durch Oxidationseffekte bei Temperaturen von 200 °C die Abtragungseffekte so gering sind, dass mit Hüllrohrlebensdauern von etwa 10.000 Jahren zu rechnen ist.

³⁵ In SWR kommt hauptsächlich Zircaloy-2 und in DWR Zircaloy-4 zum Einsatz. Neben Zircaloy-2 bzw. Zircaloy-4 kommen auch die Legierungen ZIRLO und M5 in deutschen Leistungsreaktoren zum Einsatz. Sowohl ZIRLO als auch M5 wurden entwickelt, um den steigenden Anforderungen an die Hüllrohrmaterialien durch höhere Abbrandwerte gerecht zu werden. Sie besitzen eine, gegenüber Zircaloy-2 bzw. Zircaloy-4, erhöhte Festigkeit, Duktilität und Korrosionsresistenz. Darüber hinaus wurden Duplex-Hüllrohre entwickelt, welche mehrere Legierungen kombinieren. Bspw. wurde das Wandmaterial Zircaloy-4 mit einer dünnen korrosionsbeständigen Außenschicht kombiniert, um vor exzessiver Korrosion zu schützen.

/CHU 00/ stellte fest, dass eine verzögerte Rissbildung, induziert durch Hydride unter Endlagerbedingungen, unwahrscheinlich ist. Auch probabilistische Modelle konnten zeigen, dass sowohl die Effekte des Delayed Hydride Cracking bzw. Rissbildungen in der Oxidschicht bei Zr-2.5 Nb Legierungen bei Temperaturen von 200 bis 300 °C geringer ausfallen, als bei Umgebungstemperaturen /PAN 07/.

/FRA 90/ untersuchte das Korrosionspotential von Zircaloy-4 in Wasser³⁶. Die Autoren schlussfolgerten, dass das Korrosionspotential in einer Endlagerumgebung nicht ausreichend sei, um lokale Korrosionseffekte zu initialisieren. /CRA 01/ untersuchten neben der Initiierung von Lochfraßkorrosion auch das Repassivierungspotential von Zircaloy-4 in chlorid- und fluoridhaltigen Lösungen bei Temperaturen von 25 °C, 65 °C und 95 °C³⁷. Durch die äußerst stabile ZrO₂-Oxidschicht betrugen die Korrosionsraten weniger als 0,1 µm/a.

/KUP 00/ ermittelte im Passivbereich des Zircalloy-4 nur geringe allgemeine Korrosionsraten in einem Bereich von 0,02 und 0,6 µm/a. Darüber hinaus wurden nur geringe Unterschiede zwischen unterschiedlichen Laugensystemen festgestellt. Die Temperaturabhängigkeit war viel größer.

³⁶ Bei einer Temperatur von 95 °C und einem pH-Wert von 8,3 bis 8,5. Über die Impedanz-Methode konnten allgemeine Korrosionsraten in einer Größenordnung von 0,2 bis 1 µm/a ermittelt werden.

³⁷ Die Proben umfassten sowohl polierte Proben als auch Proben, bei welchen sich bereits eine Oxidschicht ausgebildet hatte. Die bereits oxidierten Proben zeigten ein höheres Korrosionspotential, besonders dann, wenn Wasserstoffperoxid bzw. Eisen(III)-chlorid-Ionen in der wässrigen Lösung vorhanden waren. Effekte der Spaltkorrosion konnten im Gegensatz zur Lochfraßkorrosion nicht beobachtet werden. Außerdem wurden sehr geringe Raten für eine allgemeine Korrosion selbst in aggressiven Lösungen beobachtet.

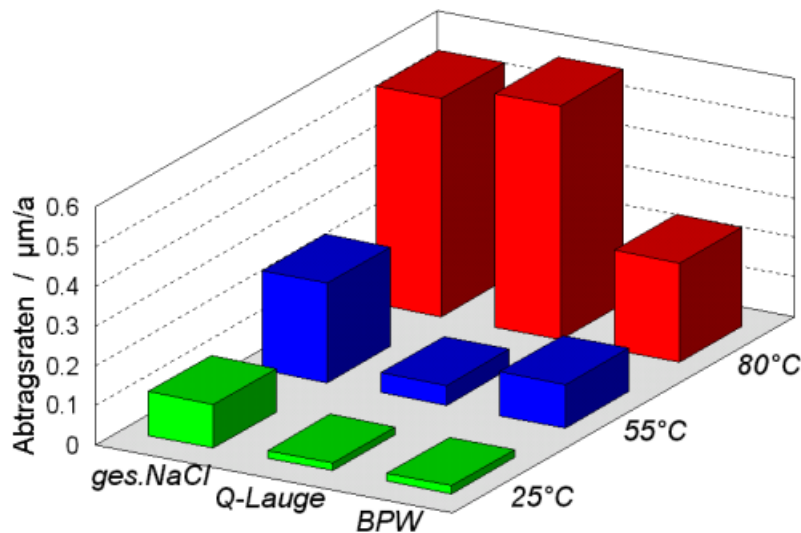


Abb. 4.24 Vergleich verschiedener Abtragsraten von Zircaloy-4 in unterschiedlichen Elektrolytsystemen in Abhängigkeit von der Temperatur /KUP 00/

Die Korrosionsuntersuchungen /KUP 00/ von Kernbrennstoffen in Salzlaugen konnten zeigen, dass sich Zircaloy-4 nur bedingt als Korrosionsschutz eignet, da er zwar eine hohe Korrosionsbeständigkeit, jedoch nur einen kleinen Passivbereich besitzt. Weiterhin konnten die Ergebnisse aufzeigen, dass die durch Radiolyseprozesse gebildete Menge an Wasserstoffperoxid bei den gegebenen Abkühlzeiten der bestrahlten Kernbrennstoffe zu gering ist, um die Korrosionsbeständigkeit von Zircaloy-4 negativ zu beeinflussen. Außerdem konnte festgestellt werden, dass MgO die Ausbildung einer stabileren und korrosionsbeständigeren Zirkonium-Deckschicht fördert, was die direkte Endlagerung in magnesiumhaltigen Salzen favorisiert.

Darüber hinaus eine Reihe von Studien das Korrosionsverhalten von Zirkonium in alkalischen Umgebungen. /ADL 04/ analysierten Zircaloy-4 Proben, welche sechs Jahre lang am Idaho National Engineering and Environmental Laboratory (INEEL) vergraben waren. Das Substrat hatte einen pH-Wert von 8,1 bis 8,3 und die Korrosionsraten rangierten zwischen 0,5 nm/a bis nicht messbar. /KUR 99/ konnte die Korrosionsrate von Zircaloy-2 in einer alkalischen Umgebung über die Gasbildung auf 1 nm/a ermitteln. Auch von /WAD 99a/ wurde die Korrosionsrate über die Gasbildung gemessen und es wurden Werte von 0,2 nm/a bei einem pH-Wert von 12,5 über einen Zeitraum von 300 Tagen ermittelt. In einem pH-Bereich von 8 bis 12,5 konnten bzgl. des pH-Wertes keine signifikanten Einflüsse auf die Korrosionseigenschaften festgestellt werden /WAD 99b/. /SAK 12/ ermittelt die Korrosionsrate über die Bildung von Wasserstoff. Hier konnten für Zircaloy-4 nach einem Zeitraum von 1500 Tagen Korrosionsraten von 6 nm/a bei einem pH-Wert von 12,5 erfasst werden.

Veröffentlichungen zur Korrosion von Zirkonium-Legierungen aus In-situ-Versuchen sind nur vereinzelt vorhanden, und es besteht an dieser Stelle weiterer Forschungsbedarf.

Die verfügbaren experimentellen Daten zeigen, dass für Endlagerkonditionen mit Korrosionsraten von deutlich weniger als 1 $\mu\text{m/a}$ und dementsprechend mit einer strukturellen Integrität der Hüllrohre von mehreren tausend Jahren gerechnet werden kann.

Edelstahl

Für die Brennelemente aus der kompakten, natriumgekühlten Kernreaktoranlage wurde als Hüllrohrmaterial austenitischer Edelstahl mit den Werkstoffnummern 1.4981 bzw. 1.4988 verwendet. Das Korrosionsverhalten ist ähnlich zu dem in Kapitel 4.2.1.1 beschriebenen Korrosionsverhalten der CSD-V Kokillen, welche für die verglasten Abfälle aus der Wiederaufbereitung eingesetzt werden. Die passive Oxidschicht schützt vor allgemeiner Korrosion. Durch mechanische Schädigungen der Oxidschicht bzw. durch Chlorid-Ionen kann es jedoch zu lokalen Korrosionseffekten kommen, welche die strukturelle Integrität der Hüllrohre beeinflussen.

In einem basischen pH-Wertebereich unter anaeroben Bedingungen wurde das Korrosionsverhalten von X5CrNi18-10 (Werkstoffnummer 1.4301) von /FUJ 99/ untersucht. Die Studien wurden bei einem pH-Wert von 12,8 durchgeführt, welcher die Gegebenheiten kurz nach der Einlagerung in einem Endlager in zementhaltigem Behältermaterial simulieren sollte. Um die Endlagerkonditionen für einen Zeitraum von mehr als 10.000 Jahren zu simulieren, wurden Studien bei einem pH-Wert von 10,5 durchgeführt. Nach 200 Tagen konnten durch /FUJ 99/ Korrosionsraten von 8 nm/a bei einem pH-Wert von 12,8 und 3 nm/a bei einem pH-Wert von 10,5 ermittelt werden. Von /WAD 99b/ wurde das Korrosionsverhalten über die entstehende Gasmenge mit Hilfe von Massenspektroskopieverfahren erfasst. Hier konnten nach einem Zeitraum von 230 Tagen Korrosionsraten von 6 bis 9 nm/a bei einem pH-Bereich von 10,0 bis 13,5 ermittelt werden. Nishimura ermittelten die Korrosionsraten über einen Zeitraum von 650 Tagen bei einer Temperatur von 50 °C. Bei einem pH-Wert von 10,0 betrug die Korrosionsrate 9 nm/a. Bei einem höheren pH-Wert von 13,5 sank die Korrosionsrate auf 6,5 nm/a. Lokale Korrosionseffekte wurden in den beschriebenen Studien nicht ermittelt.

Es zeigt sich, dass die Korrosion von Edelstählen unter alkalischen Konditionen im Nanometerbereich pro Jahr liegt und die strukturelle Integrität der Hüllrohre für einen Zeitraum von mehreren tausend Jahren dementsprechend nicht gefährdet ist. Für eine Endlagerung in Steinsalz können die Korrosionsraten aus Tab. 4.15 herangezogen werden. Auch hier sind die Korrosionsraten für eine flächige Materialabtragung gering. Treten jedoch lokale

Korrosionseffekte in einer Größenordnung auf, wie sie von /Smailos E. 2002/, /KFK 92/, /SMA 96/ beobachtet wurden, kann damit gerechnet werden, dass die strukturelle Integrität der Hüllrohre nach wenigen Jahren bzw. Jahrzehnten nicht mehr gegeben ist.

Aluminium-Legierungen

Aluminium wird als Hüllrohrmaterial für Brennelemente von Forschungsreaktoren, bspw. in FRM II, BER II und FRMZ verwendet. Dadurch, dass Aluminium in Kontakt mit Sauerstoff, ähnlich wie Zirkonium und Edelstahl, eine Passivierungsschicht ausbildet, welche weitere Oxidationsvorgänge verlangsamt bzw. unterbindet. Daher verfügt es über eine hohe Korrosionsbeständigkeit. Trotz der Passivierungsschicht kann es jedoch zu verschiedenen lokalen Korrosionsmechanismen kommen, wobei Lochfraßkorrosion relativ häufig vorkommt.

Wenn Aluminium mit anderen Metallen in elektrischen Kontakt gebracht wird, kann es zu galvanischer Korrosion kommen. Sind die Korrosionspotentiale der beiden in Kontakt stehenden Materialien unterschiedlich, wird das Metall mit dem höheren Potential E_{corr} (nobel) kathodisch und das unedlere Metall anodisch. Das anodische Metall korrodiert dabei schneller und verlangsamt gleichzeitig die Korrosionsreaktion des nobleren Metalls.

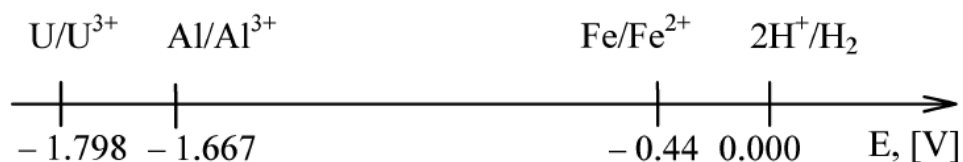


Abb. 4.25 Standardpotential von U, Al und Fe in Wasser bei einer Temperatur von 25 °C
/MAZ 03a/

Wie in Abb. 4.25 ersichtlich, hat Eisen ein höheres Korrosionspotential als Aluminium. Das bedeutet, dass Eisen in Kontakt mit Aluminium zur Kathode wird und Aluminium demzufolge schneller korrodiert. Des Weiteren bilden sich FeAl_3 -Verbindungen, die verhindern, dass sich die passive Oxidschicht an der Oberfläche ausbildet.

Uran hat ein geringeres E_{corr} -Potential. Aluminium ist also nobler, was die Korrosionsprozesse in Kontakt mit Uran verlangsamt.

Sind Chlorid-Ionen vorhanden, beschleunigt sich die Materialabtragungsrate. Chloridionen verschieben das Potential zu unedleren Werten, wodurch Aluminium seine Korrosionsbeständigkeit verliert und vermehrt Lochfraßkorrosion auftritt /MAZ 03a/.

Das Korrosionsverhalten von Aluminium weist eine deutliche Zunahme der Korrosionsraten unter zunehmend saureren bzw. alkalischeren Bedingungen auf (vgl. Abb. 4.26). Die Oxidschicht sorgt jedoch für eine weitgehende Stabilität bei einem pH-Bereich von 4 bis 8,5 /DRU 19/.

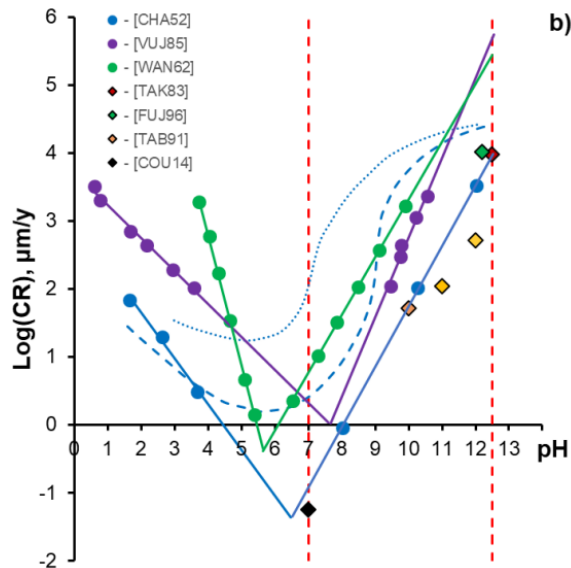


Abb. 4.26 Korrosionsraten von Aluminium in Abhängigkeit vom pH-Wert /HZB 21/

In einer alkalischen Umgebung korrodiert Aluminium, und es bilden sich $\text{Al}(\text{OH})_4^-$ und Wasserstoff. Die Korrosionsrate steigt mit zunehmender Temperatur und steigendem pH-Wert. Die Korrosionsrate ist deutlich höher als in sauren Milieus, und es konnten Korrosionsraten von 500 mm/a bei einem pH-Wert von 14 beobachtet werden. Ist in den Hüllrohren mit einer gewissen Restfeuchte zu rechnen, können zu Beginn der Endlagerung hohe Korrosionsraten erwartet werden. Die Korrosionsrate sinkt jedoch nach einem Zeitraum von wenigen Monaten auf Werte von 0,1 bis 0,5 µm/a. Langzeitexperimente mit Versuchsdauern von bis zu 27 Jahren in Kontakt mit Zement, Beton bzw. Mörtel wurden für Aluminiumlegierungen von /WAL 57/ durchgeführt. Hierbei konnte festgestellt werden, dass die Korrosionsraten in den ersten Stunden 1.000 µm/a betrug. Dieser Wert sank auf 50 µm/a nach sechs Monaten. Die durchschnittliche Korrosionsrate, welche nach 27 Jahren ermittelt wurde, betrug 1,3 µm/a. Auch Studien von /THO 94/ konnten zeigen, dass sich die Korrosionsraten nach einem Zeitraum von weniger als zwei Jahren auf 0,1 bis 0,5 µm/a einpendelten. Die anfänglichen Korrosionsraten waren erheblich höher und betrugen 1.000 bis 13.000 µm/a.

Für Endlagerkonditionen, für die ein neutraler bis leicht basischer pH-Wert angenommen werden kann, beträgt die Korrosionsrate bei Aluminium gemäß experimentellen Daten (siehe

Abb. 4.26) ungefähr 1 bis 2 $\mu\text{m/a}$. Das bedeutet, dass bei einer Korrosionsrate von 2 $\mu\text{m/a}$ nach 250 Jahren mit einem Materialverlust von 0,5 mm ausgegangen werden kann.

4.2.1.4 Bewertung

In Kapitel 4.2.1 wurde das Korrosionsverhalten von verschiedenen metallischen Endlagerbehälterwerkstoffen und Hüllrohrmaterialien in einer Literaturrecherche zusammengetragen. Experimentelle Ergebnisse zu den Korrosionseigenschaften der Eisenwerkstoffe EN-GJS-400 bzw. 15MnNi6.3, welche für Außen- und Innenbehälter der POLLUX®-Endlagerbehälter eingesetzt werden, sowie für Edelstahl X12CrNi23-13, welcher zum Abfüllen der HAW-Gläser verwendet wird, wurden für das Wirtsgestein Salz zusammengetragen. Weiterhin wurden Korrosionseigenschaften für Kupfer bzw. Kupferlegierungen in Granit und für unlegierten Kohlenstoffstahl TStE355 in Ton untersucht. Kupfer wird als Endlagerbehältermaterial in Schweden und Finnland eingesetzt. Unlegierter Kohlenstoffstahl wird voraussichtlich als Material für den Endlagerbehälter der NAGRA in der Schweiz verwendet.

Die Literaturrecherche ergab, dass der Eisenwerkstoff EN-GJS-400 zwar aktiv mit einer vergleichsweise hohen Rate korrodiert, sich jedoch resistent gegenüber lokalen Korrosionseffekten zeigt. Durch den linearen Verlauf allgemeiner Korrosionsvorgänge lässt sich die Materialabtragung relativ gut abschätzen. Dies gilt ebenso für den Innenbehälter aus 15MnNi6.3. Beim passivierbaren Edelstahl X12CrNi23-13 sind die Materialabtragungsraten durch allgemeine Korrosion geringer. Jedoch ist mit lokalen Korrosionsprozessen, wie bspw. Spaltkorrosion, zu rechnen, welche sich erst nach einer gewissen Zeit einstellt, dann jedoch beschleunigt fortschreitet. Aus den experimentellen Untersuchungen in Salz für die POLLUX®-Endlagerbehälter konnte ermittelt werden, dass eine strukturelle Integrität und damit eine Bergbarkeit für mindestens 500 Jahre gewährleistet ist. Auch bzgl. der Korrosionseigenschaften von Kupfer bzw. des Kohlenstoffstahls TStE355 ergab sich, dass die Korrosionsraten in Granit und Ton so gering sind, dass die geforderte Behälterlebensdauer von 1000 Jahren (NAGRA) bzw. 100.000 Jahren (SKB, POSIVA) nicht beeinträchtigt ist.

Bezüglich der ermittelten Korrosionsraten aus Labor- und in-situ-Versuchen ergaben sich erhebliche Unterschiede, da mitunter bei in-situ-Versuchen eine deutlich geringere Menge an Lösungsmittel im Vergleich zu Laborproben an die Korrosionsproben gelangt.

Das Korrosionsverhalten der Behälter wird beim Zutritt vom Fluid zur Behälteroberfläche die Parameter pH-Wert, Temperatur, Fluidzusammensetzung und durch die Aktivität direkt beeinflusst. Die beiden Parameter Temperatur und Aktivität sind dabei von der Zwischenlagerungs-

dauer beeinflussbar. Alle anderen ergeben sich erst aus den Endlagerlayout und den vorherrschenden Bedingungen am Standort. Aus einer verlängerten Zwischenlagerung ergibt sich eine Abnahme der Wärmeleistung der abgebrannten Brennelemente bzw. der verglasten Abfälle und damit eine mögliche Verringerung der Oberflächentemperatur der Endlagerbehälter. Außerdem verringert sich, über die Dauer der Zwischenlagerung, die Aktivität der jeweiligen Inventare. Dementsprechend kann mit einer geringeren Korrosionsrate der Endlagerbehälter gerechnet werden. Einen Einfluss auf die Temperatur und die Aktivität kann durch konkrete Beladung der Endlagerbehälter genommen werden. Darüber hinaus kann die Temperatur durch den Abstand der Endlagergebäude zueinander im Endlagerbergwerk beeinflusst werden. Um die endlagerabhängigen Korrosionseigenschaften zu bestimmen, sind konkrete standortspezifische Daten entscheidend, welche vom Wirtsgestein und der chemischen Zusammensetzung des vorhandenen Fluids abhängig sind. Aus den hohen Abweichungen der Korrosionsraten verschiedener Versuchsreihen ergibt sich, dass bezüglich einer Übertragung der Behälterlebensdauer in unterschiedlichen Wirtsgesteinen nur hinlänglich allgemeine Aussagen getroffen werden können. Dies gilt auch für verschiedene Umgebungsparameter innerhalb eines Wirtsgesteins. So sind bspw. in trockenen Steinsalzformationen Materialabtragungsraten durch Korrosion als gering anzunehmen, wohingegen bei einem massiven Zutritt wässriger Lösungen, ein wesentlich aggressiveres geochemisches Milieu entsteht und dementsprechend höhere Korrosionsraten anzunehmen sind.

Für den Bericht wurde das Korrosionsverhalten der drei Hüllrohrmaterialien Aluminium, Edelstahl und Zirkonium-Legierungen untersucht. Zirkonium-Legierungen kommen in Deutschland vor allem in Leistungsreaktoren zum Einsatz, wohingegen Edelstahl und Aluminium in Forschungs- und Prototypreaktoren eingesetzt werden. Die strukturelle Integrität der Hüllrohre während der Zwischenlagerung ist derzeit nicht direkt ermittelbar. Thermische und mechanische Belastungen können zu einer strahlungsinduzierten Versprödung bzw. zur Ausscheidung von Wasserstoff führen, was die Materialien spröde macht und die Duktilität herabsenkt, aber nicht den Verlust der Integrität zur Folge haben muss (detaillierte Beschreibung in Kapitel 3). Untersuchungen von /AHN 13/ konnten zeigen, dass für Zircalloy-2 und Zircalloy-4 bei einer Menge von 1 l Restwasser in einem Transport- und Lagebehälter davon ausgegangen werden kann, dass der Materialabtrag von maximal 10 µm nach 60 Jahren nicht überstiegen wird und ein Hüllrohrversagen durch Korrosion innerhalb des Behälters, selbst unter Annahme einer verlängerten Zwischenlagerung, nicht relevant ist. Die zulässige Restwassermenge in einem beladenen CASTOR-Behälter beträgt weniger als 4,4 g H₂O/m³ /GNS 06/.

Es sind nur wenig experimentelle Daten, welche das Korrosionsverhalten von Zirkonium-Legierungen unter Endlagerbedingungen untersuchen, vorhanden, und an dieser Stelle besteht

Forschungsbedarf. Die in Kapitel 4.2.1.3 aufgeführten experimentellen Daten zeigen jedoch, dass für Endlagerkonditionen mit Korrosionsraten von deutlich weniger als 1 µm/a zu rechnen ist und dementsprechend von einer strukturellen Integrität der Hüllrohre von mehreren hundert Jahren ausgegangen werden kann. Für Aluminium bewegen sich die Korrosionsraten unter Endlagerkonditionen, für die ein neutraler bis leicht basischer pH-Wert angenommen werden kann, in einem ähnlichen Bereich. Die Korrosion von Edelstählen unter alkalischen Konditionen liegt im Nanometerbereich pro Jahr. Somit ist die strukturelle Integrität der Hüllrohre für einen Zeitraum von mehreren tausend Jahren nicht gefährdet. Für eine Endlagerung in Steinsalz können die Korrosionsraten aus Tab. 4.15 herangezogen werden. Auch hier sind die Korrosionsraten für eine flächige Materialabtragung gering. Treten jedoch lokale Korrosionseffekte in einer Größenordnung im mm-Bereich auf, wie sie von /Smailos E. 2002/, /KFK 92/, /SMA 96/ beobachtet wurden, kann davon ausgegangen werden, dass die strukturelle Integrität der Hüllrohre nach wenigen Jahren bzw. Jahrzehnten nicht mehr gegeben ist. Allgemein gilt jedoch, dass das Hüllrohrmaterial als Barriere erst relevant wird, wenn die äußeren Barrieren (Behälter) ihre Rückhaltefunktion verloren haben und ein Zutritt des Fluids an die Hüllrohrmaterialien stattfindet.

4.2.2 Verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung

Die komplexe Zusammensetzung und Struktur von abfallbeladenen Borosilikatgläsern sowie die Gesamtaktivität und die Anteile relevanter Radionuklide beschreibt Kapitel 4.1.4.1.1. Diesem Kapitel erläutert die Prozesse der Glaskorrosion und das verwendete Modell. Ebenfalls werden die Berechnungen zu Korrosionsrate(n), den Anteil gelöster Glasmatrix sowie Berechnungen zur Verfügbarkeit des zur Korrosion benötigten Fluids beschrieben.

In Tab. 4.18 sind Einflussfaktoren zur Radionuklidmobilisierung aus der Zwischen- und Endlagerung angegeben. Eine Einordnung und Bewertung der Faktoren bzgl. des Korrosionsmodells, der Aktivität des Inventars und der Fluidverfügbarkeit wird in Kapitel 4.2.2.3 gegeben.

Tab. 4.18 Zuordnung Einflussfaktoren aus Zwischen- bzw. Endlagerung

Einflussfaktoren	Zwischenlagerung	Endlagerung/-konzept
<i>Aktivität und Nuklidinventar (siehe Kap. 4.1.4.1.2)</i>	Oberfläche der Kokille, Wärmeleistung (Temperatur)	Temperaturverlauf
	Dauer der Zwischenlagerung	keine
<i>Fluidverfügbarkeit (siehe Kap. 4.1.3 und 4.2.2.2)</i>	keine	Wirtsgestein

4.2.2.1 Korrosion

Bei der Glaskorrosion finden, unabhängig von der Glaszusammensetzung und den Bedingungen, viele verschiedene, sich gegenseitig beeinflussende, Prozesse statt, u. a. Wasserdiffusion, Ionenaustausch von H_3O^+ -Ionen und Alkalimetall-Ionen (sog. Interdiffusion), Hydrolyse von Si-O-M-Bindungen ($\text{M} = \text{Si}, \text{Al}, \text{Zr}, \text{Fe}$ usw.; siehe Abb. 4.29 (iii)) und die Bildung einer amorphen Gelschicht³⁸ sowie kristalliner Phasen.

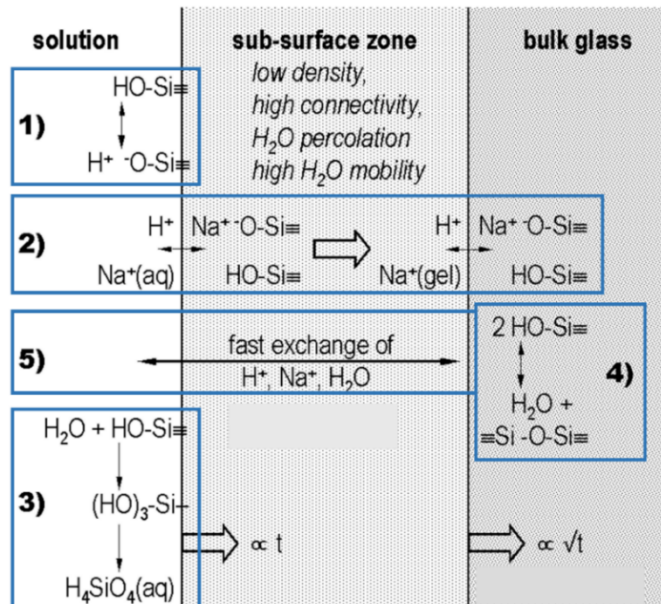


Abb. 4.27 Modell der Reaktionen, die an der Glasoberfläche bzw. oberflächennah ablaufen am Beispiel des binären Modellsystems $\text{Na}_2\text{O}-\text{SiO}_2$ (verändert aus /DJA 14/)

- 1) Einstellung eines Oberflächengleichgewichts
- 2) Einstellung eines lokalen Gleichgewichts zw. Netzwerkandler ($\equiv\text{Si}-\text{O}-\text{Na}^+$) und Silanolgruppen ($\equiv\text{Si}-\text{OH}$) durch Protonentransfer – *Ionenaustausch*
- 3) Spaltung von Siloxangruppen ($\equiv\text{Si}-\text{O}-\text{Si}\equiv$) an der Glasoberfläche – *Matrixauflösung* und Bildung von *Kieselsäure* (H_4SiO_4)
- 4) Einstellung eines lokalen Gleichgewichts zw. Silanolgruppen einerseits und Siloxangruppen + Wasser andererseits – *Gelschichtbildung*
- 5) rascher Austausch von Ionen und molekularem Wasser zw. wässriger Lösung und Grundglas

Die Korrosion von Borosilikatglas führt zum Umbau des Glasnetzwerkes und führt zu einer komplexen Schichtabfolge des alterierten Glases an der Oberfläche. Diese Schichtabfolge spiegelt, vereinfacht zusammengefasst, die verschiedenen Schritte der Glaskorrosion wider (siehe Abb. 4.28).

³⁸ Die Bildung der Gelschicht auf der Oberfläche des Glases kann unter bestimmten Umständen passivierend wirken /GIN 00/, /REB 5/. Eine SiO_2 -reiche, amorphe Phase kann eine effiziente Barriere gegen wässrige Lösungen und einen Ionen-Transport darstellen /REB 5/, /GIN 01/. Abhängig von den (geo-)chemischen Bedingungen und der Zusammensetzung des Glases bildet sich aber häufig eine poröse Alterationsschicht auf der Glasoberfläche, /FRA 18/.

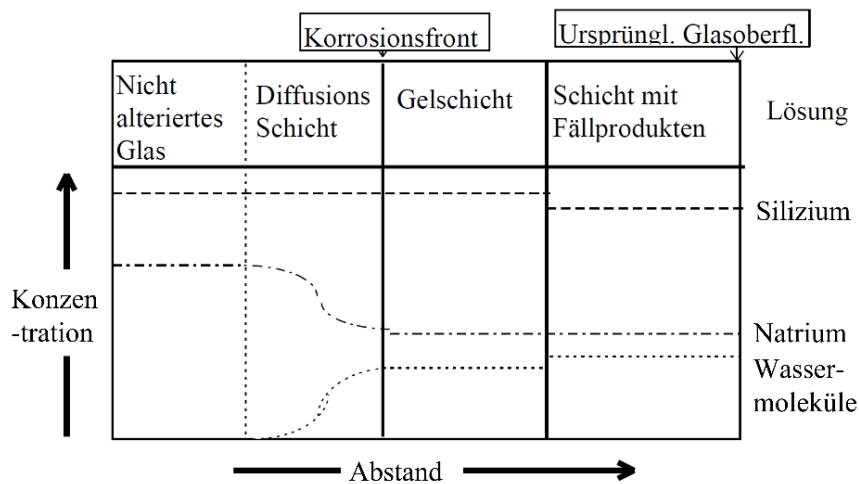


Abb. 4.28 Schematische Darstellung von Glaskorrosionsschichten /GRA 97/

Die Voraussetzung für Korrosion ist das Vorhandensein eines Lösungsmediums³⁹. Mit Lösungsmittelzutritt können verschiedene chemische Reaktionen an der Oberfläche und in den mit zunehmender Zeit alterierten Glasschichten erfolgen. Dies ist, vereinfacht auf molekularer Ebene für das binäre Modellsystem $\text{Na}_2\text{O-SiO}_2$, in Abb. 4.28 gezeigt. Bei der Auflösung der Glasmatrix wird Kieselsäure frei. Kieselsäure⁴⁰ bildet gelöst in Wasser unter Wasserabspaltung (Kondensation) Dikieselsäure. Eine weitere Kondensation führt zur Bildung höherer Kieselsäureketten. Mit Zunahme der Molekülgröße nimmt die Löslichkeit ab.

Der effektive Diffusionskoeffizient für die Diffusion von Wasser in Borosilikatglas liegt bei 10^{-17} bis $10^{-23} \text{ m}^2/\text{s}$ /GIN 13/⁴¹. Die Korrosion von Gläsern wird daher eher als Oberflächenreaktion gesehen. Die dargestellten Reaktionen und Prozesse tragen zur Auflösung der Glasmatrix und zur Mobilisierung der Bestandteile des Abfallglases bei bzw. können der geschwindigkeitsbestimmende Beitrag zur Korrosion sein.

Die Glaskorrosion wird in der Literatur mit kinetischen Modellen beschrieben. Die beschriebenen Prozesse und die daraus resultierende Alteration des Glases wird anhand von drei Phasen bzw. Korrosionsraten beschrieben (siehe Abb. 4.29 oberer Teil). Die initiale Korrosionsrate r_0 (Phase 1) sinkt mit fortschreitender Gelschichtbildung und/oder Zunahme gelöster Glaskomponenten. In der zweiten Phase stellt sich ein Gleichgewicht in Bezug auf die Auflösung der Glasmatrix ein, beschrieben durch eine nahezu konstante Glaskorrosionsrate (r_r). Die Korro-

³⁹ Wasser im Wirtsgestein enthält weitere Ionen. Diese sowie weitere Randbedingungen sind hier zum Verständnis der wesentlichen Prozesse vernachlässigt worden.

⁴⁰ H_4SiO_4 ist in großer Verdünnung und einem pH-Wert von 3,20 einige Zeit beständig. Bei kleineren und höheren pH-Werten neigt sie zur (Poly)Kondensation.

⁴¹ In Abhängigkeit der Randbedingungen (T, pH, Glaszusammensetzung)

sionsrate nimmt bis zum Erreichen einer Langzeit-Korrosionsrate ab, kommt aber nicht zum Erliegen. Welche Mechanismen maßgeblich die Langzeit-Korrosionsrate bestimmen, ist noch unklar.

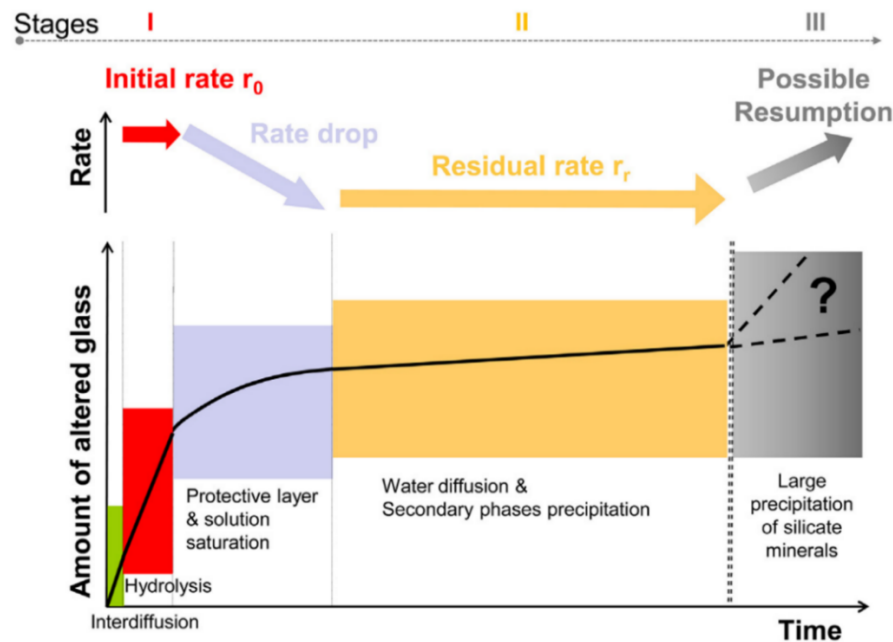


Abb. 4.29 Ablaufende Phasen und Prozesse der Glaskorrosion /GIN 13/

Eine Änderung der Umgebungsbedingungen führt zur Änderung der Gleichgewichtskonzentration der wässrigen Lösung und somit zur Änderung der Glaskorrosionsrate (r_{III}) in der dritten Phase. Den größten Effekt auf die Glaskorrosionsrate (r_{III}) hat die Bildung und das Wachstum von sekundären Phasen/Edukten, wie Calciumsilikat-Hydrat-, Magnesiumsilikat-Hydrat-Phasen, Zeolithen und Eisen-Silikaten. Diese mineralischen Phasen stellen eine Senke für die gelösten Glaskomponenten (v. a. Si sowie Ca, Mg, Al, Fe) dar, mit Folge einer Absenkung der Sättigungskonzentration in der wässrigen Phase und damit einem Fortschreiten der Auflösung der Glasmatrix /GIN 16/, /GUO 20/, /FOU 17/, /FOU /, /JAN 17/, /RIB 04/, /STR 00/.

4.2.2.2 Berechnungen

Grundlagen

Es sind verschiedene Modelle zur Beschreibung der Glaskorrosion durch Auflösungs- und Ionenaustauschprozesse in der Literatur zu finden, z. B. /GRA 97/, /GRA 06a/. Das folgende Modell beschreibt das Eindringen einer wässrigen Lösung in die Glasstruktur. Der limitierende Faktor für die Freisetzung der Ionen ist der Transport der H_2O -Moleküle in das Netzwerk.

In der Literatur wird die Korrosionsrate anhand kinetischer Zusammenhänge beschrieben. Ein gemeinsames Element aller Korrosionsmodelle ist dabei das Verhältnis der aktuellen Konzentration und der Sättigungskonzentration der Kieselsäure (siehe Gl. (4.7)) /FRU 08/.

$$r = \vec{r} \cdot \left(1 - \frac{C_{Si,Lösung}}{C_{Si,Sättigung}} \right) \quad (4.7)$$

Die Auflösung des Glases kommt zum Erliegen, wenn die Sättigung erreicht ist, der Bruch also 1 erreicht (siehe Abb. 4.30, blaue Kurve).

Unter Annahme eines kontinuierlichen Lösungsmittelzu- und abflusses tritt keine Sättigung ein, und der Ausdruck in der Klammer ist im Grenzfall rechnerisch zu vernachlässigen.

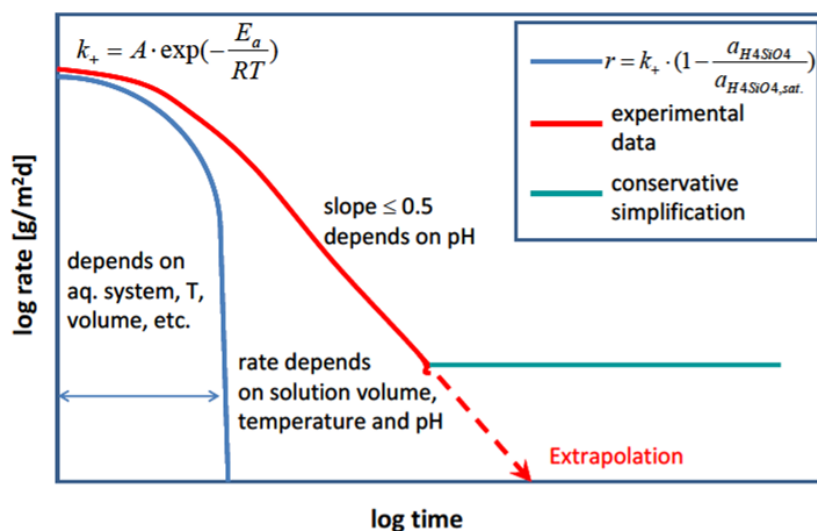


Abb. 4.30 Darstellung verschiedener Korrosionsraten /KIE 12/

Wie in Abb. 4.28 (oben) und Abb. 4.30 (rote und grüne Kurve) schematisch dargestellt, nimmt die initiale Korrosionsrate bis zum Erreichen einer extrapolierten Langzeit-Korrosionsrate ab.

Aus unterschiedlichen experimentellen Untersuchungen zur Langzeitkorrosion sind die Glas-korrosionsraten in Abhängigkeit der Temperatur bestimmt worden /KIE 12/. Die experimentelle Korrosionsrate kann mit Hilfe der Gl. 4.8 in der Einheit kg/m²d beschrieben werden⁴² (qualita-tiver Verlauf rote Kurve in Abb. 4.30). Mittels Auftragung und Auswertung der experimentellen

⁴² Bei den Experimenten wurde der Masseverlust des Glaspulvers (R7T7 aktiv und inaktiv) durch das Eluieren mit Wasser (bzw. NaCl-Lösung) über einen bestimmten Zeitraum gemessen. Vom Glaspulver wurde im Vorhinein die Oberfläche bestimmt. Dadurch ergibt sich für die experimentell bestimmte Korrosionsrate die Einheit kg/m²d.

Ergebnisse von /GRA 97/ wurden daraus der präexponentielle Faktor (A) und die Aktivierungsenergie (E_a) bestimmt (siehe Tab. 4.19)⁴³ so dass die Korrosionsrate r nach Gl. (4.8) nur noch von der Temperatur abhängt.

$$\vec{r} = A \cdot e^{\left(-E_a/RT\right)} \quad (4.8)$$

Tab. 4.19 Werte für den präexponentiellen Faktor A und die Aktivierungsenergie E_a

Größe	Symbol	Einheit	Wert
präexponentieller Faktor	A	-	560
Aktivierungsenergie	E_a	J/mol	61498,66
universelle Gaskonstante	R	J/mol K	8,314

Ergebnisse zur Berechnung der remanenten Korrosionsrate

Die Temperatur bzw. der Temperaturverlauf im jeweiligen Wirtsgestein wird aus den Temperaturfeldberechnungen⁴⁴ der Endlagerkonzepte abgeleitet (siehe Kapitel 2 und Kapitel 4.1.2). Eine Aufwärmphase des Wirtsgesteins vor und nach dem Endlagerverschluss wird nicht berücksichtigt. Für das vereinfachte Modell wird als Anfangstemperatur die maximale Temperatur aus den Temperaturfeldberechnungen festgesetzt:

- Für Salzgestein für den Standort Gorleben mit einer Anfangstemperatur T_0 von 200°C /BOL 12/
- Für Ton für das schweizerische Nagra-Konzept mit einer Anfangstemperatur T_0 von 147°C /NAG 02b/
- Für Kristallingestein für das schwedische Konzept der SKB mit einer Anfangstemperatur T_0 von 100°C /BIR 16/

⁴³ Die Modellierung der remanenten Auflösungsrate (r_r) erfolgte über eine numerische Iteration der Ergebnisse der experimentellen Daten (verschiedene Lösungsmedien und Temperaturen). A und E_a wurden aus den experimentellen Daten zum Auslaugverhalten von R7T7 (aktiv und inaktiv) extrapoliert. Eine ausführliche Beschreibung zum Modell ist in /KIE 12/ gegeben. Die Experimente zum Auslaugverhalten sind in /GRA 97/ dargestellt.

⁴⁴ Die Temperatur im Endlager wird durch die Wärmeleistung der (theoretisch) eingelagerten radioaktiven Abfälle beeinflusst. In die Berechnungen sind u. a. das Endlagerlayout, die konservative Beladung der Endlagerbehälter, die Wärmeleitfähigkeit, die Kapazität und initiale Gebirgstemperatur des jeweiligen Wirtsgesteins als relevante Größen eingeflossen.

Der aus diesen Referenzen abgeleitete Temperaturverlauf für die verschiedenen Wirtsgesteine ist in Abb. 4.31 gezeigt. Nach ca. 10.000 Jahren ist nahezu in allen drei Wirtsgesteinsarten die initiale Gebirgstemperatur wieder erreicht.

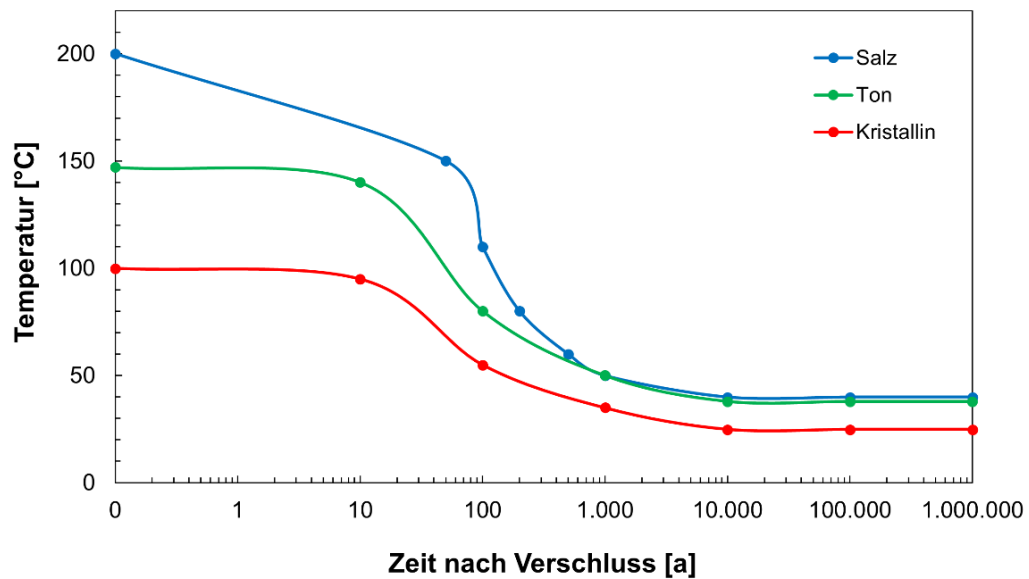


Abb. 4.31 Temperaturverlauf für die drei Wirtsgesteinsarten abgeleitet aus den jeweiligen Temperaturfeldberechnungen

Unter Berücksichtigung des jeweiligen Temperaturverlaufs, der Parameter des Modells aus der Literatur (siehe Tab. 4.19) und den Parametern für eine Glaskokille (siehe Tab. 4.20) kann über Gl. (4.9) eine zeitabhängige Glaskorrosionsrate pro Glaskokille in Salz- (siehe Abb. 4.32), Ton- (siehe Abb. 4.33) und Kristallingestein (siehe Abb. 4.34) bestimmt werden. Die Korrosion der Glasmatrix kann allerdings erst zu einem Zeitpunkt beginnen, an dem die Glasmatrix in Kontakt mit dem Fluid steht. Die entsprechende Korrosionsrate ist zum Zeitpunkt (t_1) aus den Diagrammen zu bestimmen.

$$\vec{r} = A_{eff}^{Glas} \cdot \frac{1}{m^{Glas}} \cdot A \cdot e^{\left(-E_a/RT\right)} \quad (4.9)$$

Die tatsächliche Oberfläche, im Zusammenhang mit der Korrosion als effektive Oberfläche (A_{eff}) bezeichnet, der Glaskokille ist allerdings unbekannt. Ihr Einfluss auf die Korrosionsrate wurde mittels Parameterstudie dargestellt. Zusätzlich zur idealen Oberfläche (ohne Risse) von 1,73 m² wurden der 10-, 20- und 50-fache Wert für die effektive Oberfläche gewählt (siehe Tab. 4.20).

Tab. 4.20 Parameter für eine Glaskokille aus /COG 03/

¹ Ideale Glasoberfläche: 1,73 m² berechnet aus /COG 03/. Die anderen Werte wurden für die Parameterstudie gewählt.

Größe	Symbol	Einheit	Wert
Radius	r	m	0,21
Höhe	h	m	1,1
Volumen	V	m ³	0,152
Masse	m	kg	420
Dichte	ρ	g/cm ³	2,75
effektive Oberfläche ¹	A _{eff}	m ²	1,73; 17,3; 34,6; 86,4

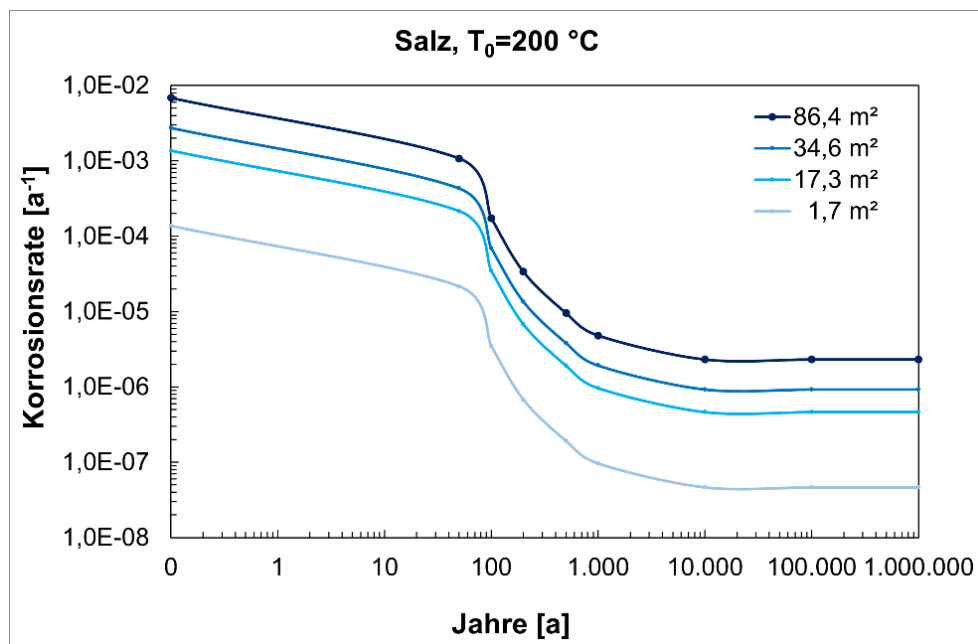


Abb. 4.32 Berechnete Korrosionsraten, beginnend ab dem Zeitpunkt des Endlagerverschlusses in Salz, für verschiedene effektive Oberflächen (bezogen auf eine Glaskokille)

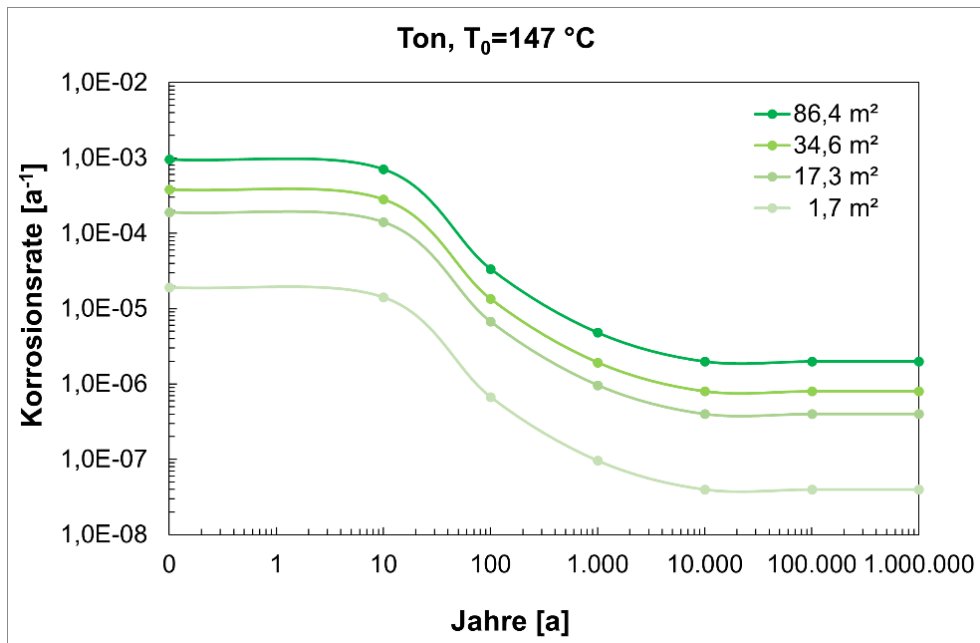


Abb. 4.33 Entwicklung der Korrosionsrate, beginnend mit dem Zeitpunkt des Endlagerverschlusses in Ton, für verschiedene effektive Oberflächen (bezogen auf eine Glaskokille)

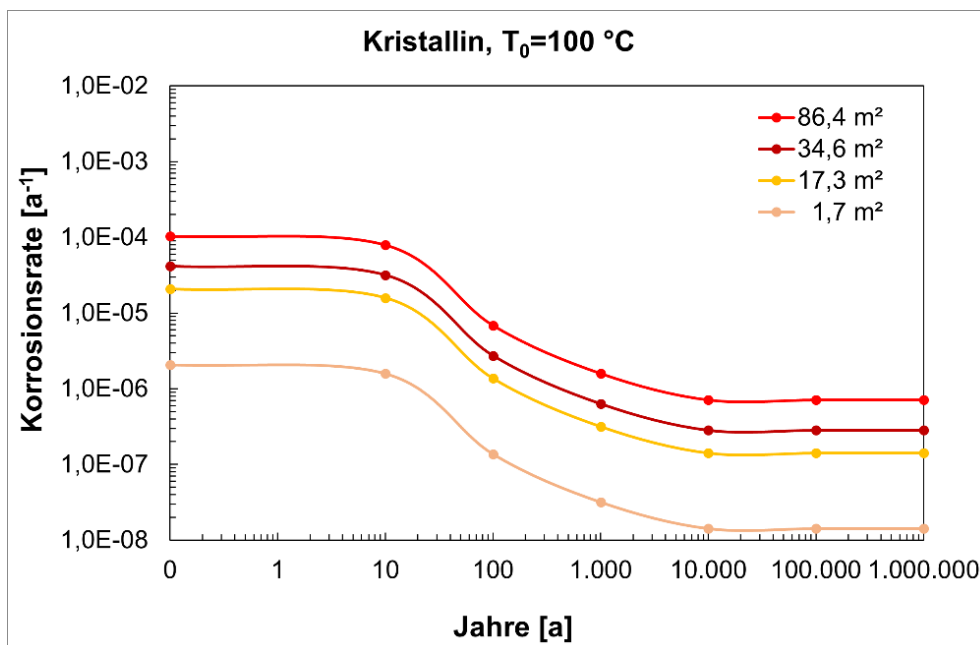


Abb. 4.34 Entwicklung der Korrosionsrate, beginnend mit dem Zeitpunkt des Endlagerverschlusses in Kristallingestein, für verschiedene effektive Oberflächen (bezogen auf eine Glaskokille)

Nach dem verwendeten Modell ist die Korrosionsrate von der Temperatur abhängig. Je höher die Anfangstemperatur (T_0) (Salz > Ton > Kristallin), desto höher ist die Korrosionsrate $\vec{r}$ zu

diesem Zeitpunkt. Die größte Korrosionsrate wird demnach für Salzgestein berechnet. Die Parameterstudie zur effektiven Oberfläche (A_{eff}) geht linear in die Korrosionsrate ein, somit unterscheiden sich r_{min} und r_{max} (für alle Wirtsgesteine) um den Faktor 50. Nach ca. 10.000 Jahren ist nahezu die initiale Gebirgstemperatur des Wirtsgesteins wieder erreicht und r_{max} liegt bei

- $2,32E-6 \text{ a}^{-1}$ für Salz,
- $1,99E-6 \text{ a}^{-1}$ für Ton und bei
- $7,07E-7 \text{ a}^{-1}$ für Kristallin.

Der Anteil korrodierter Glasmatrix wird über das Integral der zeitabhängigen Korrosionsrate in den Grenzen: t_1 – dem Zeitpunkt des Barriereversagens⁴⁵ und t_2 – dem Betrachtungszeitraum von 1 Mio. Jahre, nach Verschluss des Endlagers, beschrieben (Gl. (4.10)).

Zum Lösen von Gl. (4.10) werden drei Zeitpunkte als t_1 angenommen: 500, 1.000 und 10.000 Jahre. Diese Werte sind hypothetische Versagenszeitpunkte und orientieren sich an die vorgegebene Mindestdauer der Behälterintegrität der jeweiligen Endlagerkonzepte in Deutschland, der Schweiz und Schweden. Diese Zeitpunkte stellen nicht die tatsächlich erwartbaren Standzeiten (Lebensdauern) der Barrieren in einem Endlager dar (experimentelle Daten zu Standzeiten der Barrieren, siehe Kapitel 4.2.1).

$$F^{Glas} = A_{eff}^{Glas} \cdot \frac{1}{m_{gesamt}^{Glas}} \cdot \int_{t_1}^{1.000.000} \cdot \vec{r}_{Glas}(t, T) dt \quad (4.10)$$

Zum Lösen von Gl. (4.10) werden drei Zeitpunkte als t_1 angenommen: 500, 1.000 und 10.000 Jahre. Diese Werte sind hypothetische Versagenszeitpunkte und orientieren sich an die vorgegebene Mindestdauer der Behälterintegrität der jeweiligen Endlagerkonzepte in Deutschland, der Schweiz und Schweden. Diese Zeitpunkte stellen nicht die tatsächlich erwartbaren Standzeiten (Lebensdauern) der Barrieren in einem Endlager dar (experimentelle Daten zu Standzeiten der Barrieren, siehe Kapitel 4.2.1).

⁴⁵ Der konkrete Zeitpunkt des Versagens des Behälters bzw. Edelstahlkanne wird nicht modelliert. Die Korrosion der Barrierematerialien ist in Kapitel 4.2.1 beschrieben.

Die Auflösung der Glasmatrix⁴⁶ bzw. der Anteil aus der Glasmatrix freigesetzter Radionuklide für den Temperaturverlauf in Salz-, Ton- und Kristallingestein für ein Barriereversagen nach 500, 1.000 und 10.000 Jahren ist in den Abb. 4.35 bis Abb. 4.37 dargestellt. Zusätzlich ist in Tab. 4.21, Tab. 4.22 und Tab. 4.23 die Dauer der Auflösung für 10 % und 50 % der Glasmatrix für die jeweils kleinste und größte A_{eff} gelistet.

Der Zeitpunkt des Barriereversagens hat, für die dargestellten Zusammenhänge, einen sehr geringen Einfluss auf die Matrixauflösung und Radionuklidfreisetzung. Im Gegensatz dazu, ist bei der effektiven Oberfläche ein signifikanter Einfluss zu erkennen. Für die kleinste A_{eff} sind nach 1 Mio. Jahren weniger als 10 % der Glasmatrix gelöst (Salz, Ton und Kristallin), und für die größte A_{eff} sind 100 % der Glasmatrix nach ca. 400.000 Jahren gelöst (Salz, Ton und Kristallin). Im Vergleich der Szenarien untereinander, ist die Auflösung in Kristallingestein aufgrund der initial kleinsten Temperatur am langsamsten.

Bezogen auf das endzulagernde Gesamtradionuklidinventar (siehe Kapitel 4.1.4 und Abb. 4.5) der verglasten Abfälle unter Betrachtung des radioaktiven Zerfalls werden folgende Ergebnisse zur Korrosion der SiO_2 -Matrix beschrieben:

- Für das Wirtsgestein Salz ergibt sich bei der größten betrachteten effektiven Oberfläche und einer 10-%igen Auflösung der Glasmatrix eine freigesetzte Aktivität von ca. $4,5\text{E}14$ bis $4,0\text{E}14$ Bq nach ca. 38.000 bis 53.000 Jahren (je nach unterstelltem Versagen der Barrieren). Bei einer 50-%igen Auflösung ergibt sich eine freigesetzte Aktivität von ca. $1,5\text{E}15$ Bq nach ca. 210.000 bis 225.000 Jahren (je nach unterstelltem Versagen der Barrieren).
- Für Tongestein ergibt sich bei der größten betrachteten effektiven Oberfläche und einer 10-%igen Auflösung der Glasmatrix eine freigesetzte Aktivität von ca. $4,3\text{E}14$ bis $4,0\text{E}14$ Bq nach ca. 43.000 bis 60.000 Jahren (je nach unterstelltem Versagen der Barrieren). Bei einer 50-%igen Auflösung ergibt sich eine freigesetzte Aktivität von ca. $1,4\text{E}15$ Bq nach ca. 240.000 bis 260.000 Jahren (je nach unterstelltem Versagen der Barrieren).
- Für Kristallingestein bei der höchsten betrachteten effektiven Oberfläche und einer 10-%igen Auflösung der Glasmatrix, ergibt sich eine freigesetzte Aktivität von ca. $3,3\text{E}14$ bis $3,2\text{E}14$ Bq nach ca. 129.000 bis 145.000 Jahren (je nach unterstelltem Versagen der Barrieren). Bei einer 50-%igen Auflösung, eine freigesetzte Aktivität von ca. $0,9\text{E}15$ Bq nach ca. 670.000 bis 685.000 Jahren (je nach unterstelltem Versagen der Barrieren).

⁴⁶ Auflösung der Glasmatrix führt im Modell zu einer Freisetzung der Radionuklide und ist deshalb im Bericht gleichbedeutend verwendet.

Bei der niedrigsten betrachteten Oberfläche der Glaskokille wird eine Auflösung der Glasmatrix von 10 % erst deutlich nach 1 Mio. Jahren erreicht, was einer freigesetzten Aktivität von unter $1,4\text{E}14$ Bq entspricht.

Tab. 4.21 Korrosionsdauer für einen Anteil von 10 % und 50 % der Glasmatrix für die minimale und maximale effektive Oberfläche (A_{eff}) unter Berücksichtigung des Versagens der Barriere (t_1) in Salz (in Jahren)

Zeitpunkt des Versagens der Barriere (t_1)	Zeit nach der 10 % der Matrix korrodiert sind		Zeit nach der 50 % der Matrix korrodiert sind	
	$A_{\text{eff}} = 1,73 \text{ m}^2$	$A_{\text{eff}} = 86,4 \text{ m}^2$	$A_{\text{eff}} = 1,73 \text{ m}^2$	$A_{\text{eff}} = 86,4 \text{ m}^2$
500	> 1 Mio.	38.200	>> 1 Mio.	210.600
1.000	> 1 Mio.	39.800	>> 1 Mio.	212.100
10.000	> 1 Mio.	53.000	>> 1 Mio.	225.400

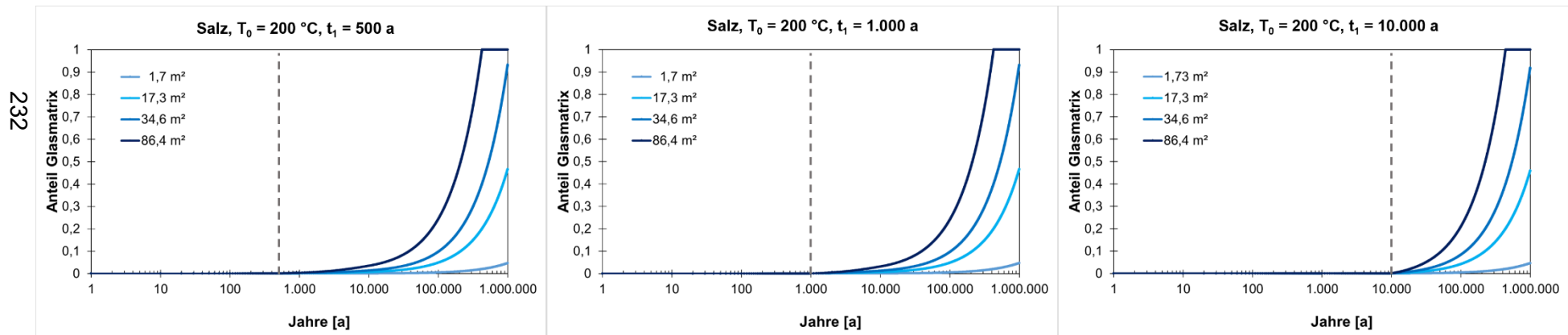


Abb. 4.35 Anteil gelöster Glasmatrix in Abhängigkeit des Barriereversagens (t_1) für verschiedene effektive Oberflächen

Tab. 4.22 Korrosionsdauer für einen Anteil von 10 % und 50 % der Glasmatrix für die minimale und maximale effektive Oberfläche (A_{eff}) unter Berücksichtigung des Versagens der Barriere (t_1) in Ton (in Jahren)

Zeitpunkt des Versagens der Barriere (t_1)	Zeit nach der 10 % der Matrix korrodiert sind		Zeit nach der 50 % der Matrix korrodiert sind	
	$A_{\text{eff}} = 1,73 \text{ m}^2$	$A_{\text{eff}} = 86,4 \text{ m}^2$	$A_{\text{eff}} = 1,73 \text{ m}^2$	$A_{\text{eff}} = 86,4 \text{ m}^2$
500	> 1 Mio.	43.000	>> 1 Mio.	243.700
1.000	> 1 Mio.	45.400	>> 1 Mio.	246.100
100.000	> 1 Mio.	60.100	>> 1 Mio.	260.700

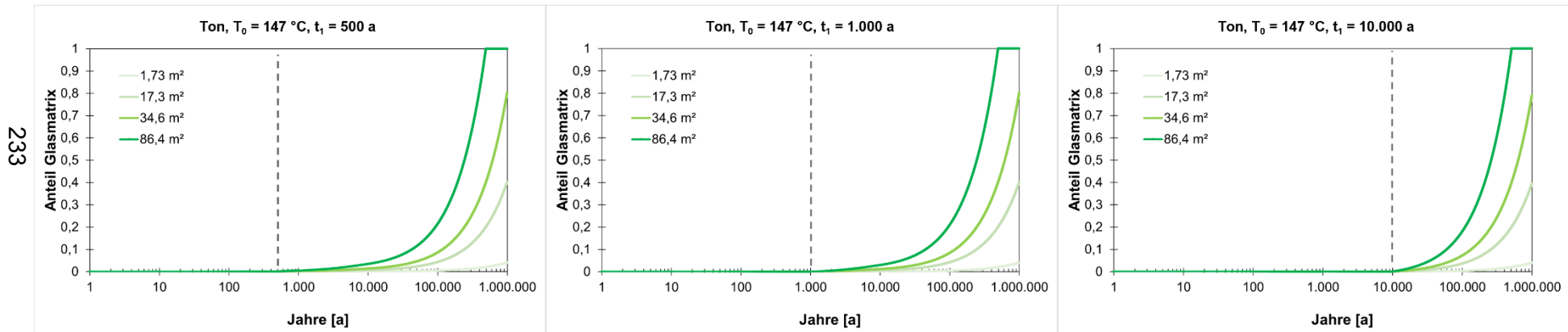


Abb. 4.36 Anteil gelöster Glasmatrix in Abhängigkeit des Barriereversagens (t_1) für verschiedene effektive Oberflächen

Tab. 4.23 Korrosionsdauer für einen Anteil von 10 % und 50 % der Glasmatrix für die minimale und maximale effektive Oberfläche (A_{eff}) unter Berücksichtigung des Versagens der Barriere (t_1) in Kristallin (in Jahren)

Zeitpunkt des Versagens der Edelstahlkanne (t_2)	Zeit nach der 10 % der Matrix korrodiert sind		Zeit nach der 50 % der Matrix korrodiert sind	
	$A_{\text{eff}} = 1,73 \text{ m}^2$	$A_{\text{eff}} = 86,4 \text{ m}^2$	$A_{\text{eff}} = 1,73 \text{ m}^2$	$A_{\text{eff}} = 86,4 \text{ m}^2$
500	> 1 Mio.	129.100	>> 1 Mio.	669.300
1.000	> 1 Mio.	131.000	>> 1 Mio.	671.200
100.000	> 1 Mio.	145.000	>> 1 Mio.	685.200

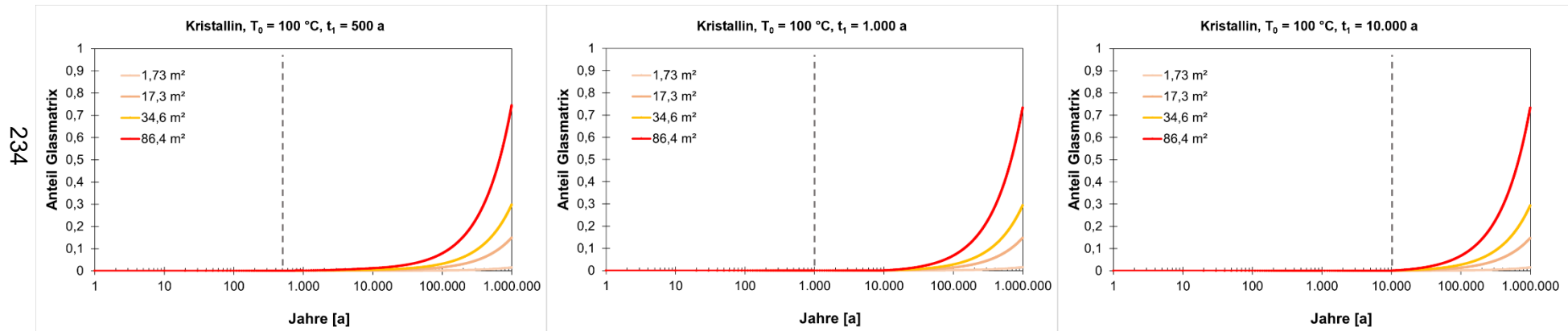


Abb. 4.37 Anteil gelöster Glasmatrix in Abhängigkeit des Barriereversagens (t_1) für verschiedene effektive Oberflächen

Korrosion in Abhängigkeit der Verfügbarkeit von Wasser

Beim Korrosionsmodell steht Wasser als Lösungsmedium unbegrenzt zur Verfügung und es wird von einem initialen Transport von Wassermolekülen in das Glasnetzwerk mit anschließender Hydrolyse der Si-Struktur unter Bildung von Kieselsäure (H_4SiO_4 oder $Si(OH)_4$) ausgegangen. Als Modellreaktion für die komplexe Glasstruktur und Zusammensetzung wird der bekannte Zusammenhang der Bildung von Kieselsäure aus Siliciumdioxid und Wasser genutzt Gl. (4.11).



Für diese vereinfachte Annahme kann die benötigte Menge Wasser aus den verfügbaren Daten zur Glaskokille und der Molaren Masse (M) der Edukte über Gl. (4.12) und Gl. (4.13) bestimmt werden.

$$n = \frac{m}{M} \quad (4.12)$$

$$\rho = \frac{m}{V} \quad (4.13)$$

Tab. 4.24 Ausgangswerte und Ergebnis

Größe	Symbol	Einheit	Wert
Masse einer Kokille	m	g	420.000
SiO ₂ -Anteil (für R7/T7 siehe Tab. 4.5)	-	%	0,472
Molare Masse von SiO ₂	M _{SiO2}	g/mol	60,01
Stoffmenge von SiO ₂	n _{SiO2}	mol	3.299,6
Molare Masse von H ₂ O	M _{H2O}	g/mol	18
Stoffmenge von H ₂ O	n _{H2O}	mol	6.599,2
Dichte von H ₂ O	P _{H2O}	g/m ³	997.000
Volumen	V	l	119,1

Für die Annahme, das Gleichgewicht der Reaktion (4.11) läge auf der rechten Seite, würden formal 119,1 l Wasser benötigt, um das SiO₂ einer Glaskokille vollständig in Kieselsäure umzuwandeln. Zusätzlich müsste die Menge Wasser, welche für die Aufsättigung von

Versatzmaterialien (z. B. Bentonit) und die Menge, die für die Korrosion der metallischen Barrieren⁴⁷ benötigt würde, berücksichtigt werden. Die Löslichkeit von Kieselsäure ist pH-abhängig. Bei niedrigen pH-Werten liegt das Gleichgewicht eher auf der linken Seite.

Voraussetzung für eine Reaktion und eine Materialdegradation unter den angeführten Umständen ist das Vorhandensein des Lösungsmediums. In Kapitel 4.1.3 sind hydrologische Parameter der Endlagerkonzepte beschrieben und dargestellt. Durch die Abschätzung des Volumenstroms nach Gl. (4.1) und der hydrologischen Parameter nach Tab. 4.2 kann, unter Zuhilfenahme der Oberfläche des Endlagerbehälters und der Anzahl der darin enthaltenen verglasten radioaktiven Abfälle, die Menge zuströmenden Wasser für eine Glaskokille berechnet werden (siehe Tab. 4.25).

Tab. 4.25 Wirtsgesteinsabhängige Berechnung der für die Auflösung des SiO₂-Anteils einer Glaskokille benötigten Menge an Wasser und der hierfür benötigten Dauer auf Grundlage der Parameter aus Tab. 4.2.

Endlagerkonzept	Salz	Ton	Bentonit in Ton	Kristallin	Bentonit in Kristallin
Oberfläche Behälter [m ²]	34,684	8,804		19,413	
Kokillen im Behälter	9	1		3	
$\dot{V}_{\text{Behälter}}$ [l/a]	3,2 bis 1,1E-6	4,6E-3 bis 2,1E-6	4,6E-3 bis 2,1E-6	4,7E10 bis 1,0E-5	2,9E-3 bis 4,3E-9
$\dot{V}_{\text{Behälter}}$ [l/a]	3,6E-1 bis 1,2E-7	4,6E-3 bis 2,1E-6	4,6E-3 bis 2,1E-6	1,6E10 bis 3,3E-6	9,6E-4 bis 1,4E-9
Zeit [a]	333 bis 1E9	2,6E4 bis 5,7E7	9,1E5 bis 8,4E12	7,7E-9 bis 3,6E7	1,2E5 bis 8,3E10

Die Berechnungen in Tab. 4.25 zeigen, dass die Wassermenge von ca. 119 l, welche für die Auflösung des SiO₂-Anteils jeweils einer Glaskokille benötigt wird, innerhalb von ca. 333 bis 1E9 Jahren in Salz, 9,1E5 bis 8,4E12 Jahren in Ton (mit Bentonit) und 1,2E5 bis 8,3E10 Jahren in Kristallin (mit Bentonit) durch das umgebene Wirtsgestein migrieren und zur Verfügung stehen könnten.

Für die relevante Oberfläche werden die Außenabmessungen der Endlagerbehälter des jeweiligen Endlagerkonzepts berücksichtigt und die maximale Beladung mit verglasten

⁴⁷ Die vollständige anaeroben Korrosion des Stahls eines einzigen POLLUX® 10 Behälters von rund 55.500 kg wird mit einem Verbrauch von rund 23.850 kg H₂O angegeben /LAR 13/. Die Dauer für die Verfügbarkeit dieser Wassermenge beträgt entsprechend für Salz rund 3,4E5 Jahre für Ton (mit Bentonit) 5,8E15 bis 5,3E22 Jahre, für Kristallin (mit Bentonit) 2,6E14 bis 1,7E20 Jahre.

radioaktiven Abfällen angenommen /BOL 08/, /PAT 12/, /BIR 16/, /JUJ 20/. In den Berechnungen wird ein einzelner Behälter im Endlager isoliert betrachtet. Das Endlagerlayout, die benachbarten Behälter und die Behälter in benachbarten Tunneln werden für den zur Verfügung stehenden Volumenstrom nicht berücksichtigt und damit die mögliche Fluid-Verfügbarkeit überschätzt. Die hier abgeschätzten Mengen werden daher als eine konservative Abschätzung angesehen.

4.2.2.3 Bewertung

Zur Berechnung der Korrosionsraten sowie der Dauer der Auflösung der Glasmatrix wurde ein kinetisches Modell angewendet. Das Modell basiert auf der Arrhenius-Gleichung, mit welcher die Temperaturabhängigkeit der Reaktionsgeschwindigkeit über eine Geschwindigkeitskonstante bestimmt wird. Die Eingangsparameter (präexponentieller Faktor und Aktivierungsenergie) für die Arrhenius-Gleichung wurden aus experimentellen Untersuchungen der Literatur übernommen. Temperatur und Temperaturverlauf für die Arrhenius-Gleichung wurde aus den Temperaturfeldbetrachtungen der jeweiligen Endlagerkonzepte übernommen. Die Anfangstemperatur wurde entsprechend für Salz auf 200 °C, für Ton 150 °C und Kristallin 100 °C gesetzt, wobei nach rund 10.000 Jahren nahezu jeweils wieder die Gebirgstemperatur erreicht wird. Die Oberfläche einer Glaskokille ist unbekannt und wurde deshalb als variable Größe als das bis zu 50-fache der idealen Oberfläche betrachtet.

Die Temperatur geht als eine abnehmende Funktion der Zeit in die Berechnungen ein. Nach rund 100 Jahren verringert sich die Korrosionsrate um rund einer Größenordnung und nach rund 1.000 Jahren um zwei Größenordnungen im Vergleich zur initialen Rate. Beim Wirtsgestein Salz ist der Unterschied aufgrund der höheren Anfangstemperatur ausgeprägter als bei Kristallin. Die Glasoberfläche ist im Modell mit keiner Zeitabhängigkeit versehen. Eine 10-fache oder 50-fache Vergrößerung der initialen Glasoberfläche bedingt eine entsprechend linear höhere Korrosionsrate. In der Realität kann eine über die Zeit abnehmende Oberfläche angenommen werden (Abrundung der „Kanten“, „schrumpfen“ des Glases). Eine geringere Oberfläche der Glasmatrix ist für eine geringere Korrosionsrate (alle Wirtsgesteine) von Vorteil.

Temperatur und Oberfläche der Glaskokille sind als die beiden Parameter identifiziert worden, welche durch die vorrangegangene Zwischenlagerung indirekt beeinflusst werden können.

Eine längere Zwischenlagerdauer und spätere Einlagerung führt wegen der Abnahme der Wärmeleistung einer Glaskokille zu niedrigeren (Anfangs-)Temperaturen im Endlager. Temperaturen können auch durch ein angepasstes Endlagerlayout verändert werden. Die

Beladung der Endlagerbehälter sowie Abstände können genutzt werden, um die Temperatur in einer gewissen Bandbreite im Endlager anpassen zu können.

Die Oberfläche der Glaskokille ist hauptsächlich durch den Herstellungsprozess, insbesondere durch anschließende Abkühlung und Rissbildung, bestimmt. Eine Veränderung der Oberfläche ist durch Strahlenschädigung (hauptsächlich durch Alpha-Teilchen) möglich, aber nach derzeitigem Kenntnisstand nicht signifikant bzw. zu erwarten (siehe Kapitel 2 und 3). Andere Prozesse, die während der Zwischenlagerung zu einer Vergrößerung der Oberfläche führen können, sind nicht bekannt. Der Transport zu und die Handhabung bei der Konditionierung bzw. Endlagerung können einen Einfluss auf die Oberfläche haben.

Da die Temperatur aber als eine abnehmende Funktion der Zeit in die Berechnungen einfließt, ist hier ein späteres Versagen der Barrieren vorteilhafter. Geringere Temperaturen verringern die Korrosionskinetik und somit auch die Korrosionsrate.

Die Annahmen aus den Experimenten und die dabei gewonnenen Daten sind für die Langzeitbetrachtung in einem Endlager als konservativ anzusehen, da in einfachen experimentellen Aufbauten die Massendifferenz von eluiertem Glaspulver gemessen wird. In der Realität ist eine solche Anordnung nicht zu erwarten, u. a., weil die verglasten radioaktiven Abfälle von Barrieren umgeben und ein gerichteter Wasserzu- und -abfluss als unwahrscheinlich anzusehen ist. Im Endlager ist die Verfügbarkeit von Wasser der limitierende Faktor für alle Korrosionsprozesse.

Im Rahmen der Bewertung des kinetischen Modells wurde eine Abschätzung der Lösungsmittelmenge pro Zeiteinheit vorgenommen, wobei die hydrologischen Parameter der jeweiligen Wirtsgesteine Berücksichtigung fanden. Die Zeitspanne, innerhalb derer die erforderliche Menge des Reaktionspartners Wasser dem Glas zugeführt werden muss, um dieses aufzulösen, ist um zahlreiche Größenordnungen länger als die Korrosionsdauer des kinetischen Modells.

Das Wirtsgestein Salz ist für Fluide impermeabel und entstandene Risse verheilen nach geologisch sehr kurzer Zeit. Deshalb sind die für die Abschätzung verwendeten hydrologischen Werte auf geschädigtes Salz bezogen (siehe Tab. 4.2) und damit als äußerst konservativ anzusehen. Ebenso ist für die Abschätzung nur ein einzelner Behälter (Endlagerlayout) betrachtet worden. Mehrere Behälter würden zu einer signifikanten Verringerung der verfügbaren Wassermenge pro Zeit und Glaskokille führen. Eine weitere konservative Annahme ist, dass nur der SiO_2 -Anteil (< 50 Gew. %) im Glas für die benötigte Wassermenge von rund 119 l

angenommen wurde. Die weiteren Bestandteile des Glases und die hierfür benötigte Menge an Wasser, welche zur Auflösung benötigt würde, wurden hierfür nicht betrachtet.

Einige Kenngrößen, darunter der pH-Wert im Endlager und die exakte chemische Zusammensetzung des migrierenden Fluids, werden durch die Zwischenlagerung nicht beeinflusst und können daher im Modell als konstant und als durch die Endlagerkonzepte vorgegeben betrachtet werden. Des Weiteren wurden sekundäre Prozesse, die nach der Auflösung der Glasmatrix stattfinden, beispielsweise die Fällung von sekundären Phasen, (Ad-)Sorption und Dispersion, nicht berücksichtigt, da sie nicht primär von der Zwischenlagerung abhängen und aufgrund der Fokussierung des Projekts nicht Teil der Untersuchung sind. Es sei darauf hingewiesen, dass die nachfolgenden Prozesse (nuklidabhängig) zu einer Bindung bzw. Retardation der Radionuklide führen können, wodurch der Transportprozess aus dem Nahfeld heraus unterbunden bzw. verlangsamt wird.

4.2.3 Bestrahlte Brennelemente

Die Zusammensetzung und Struktur von bestrahlten Brennelementen (auch Forschungsreaktor-Brennelemente) sind in Kapitel 4.1.4.2 beschrieben. Entsprechend den relevanten Zeitintervallen ist die Gesamtaktivität und die Anteile relevanter Radionuklidgruppen des Gesamtabfalls auf Basis der VSG-Daten bestimmt worden /LAR 13/. In diesem Kapitel werden die Prozesse der Brennstoffkorrosion (UO_2/MOX -Brennstoffe) und das verwendete Modell erklärt. Ebenfalls werden die Berechnungen zur Korrosionsrate(n), dem Anteil gelöster UO_2 -Matrix sowie Berechnungen zur Verfügbarkeit des zur Korrosion benötigten Fluids beschrieben. Für die Brennelemente aus kommerziellen Leistungsreaktoren wurden die DWR-Brennelemente als abdeckend betrachtet (siehe Kapitel 3).

In Tab. 4.26 sind Einflussfaktoren, die zur Radionuklidmobilisierung bei der Zwischen- und Endlagerung führen, angegeben. Eine Einordnung und Bewertung der Faktoren bzgl. des Korrosionsmodells, der Aktivität des Inventars und der Fluidverfügbarkeit werden am Ende von Kapitel 4.2.3.1 gegeben.

Tab. 4.26 Zuordnung der Einflussfaktoren aus Zwischen- bzw. Endlagerung

Einflussfaktoren	Zwischenlagerung	Endlagerung/-konzept
<i>Aktivität und Nuklidinventar (siehe Kap. 4.1.4.2.1)</i>	Alpha-Leistung (Dauer der Zwischenlagerung)	Strahlenchemische Ausbeute (G_{eff})
	Halbwertszeit (Dauer der Zwischenlagerung)	keine
<i>Fluidverfügbarkeit (siehe Kap. 4.1.3 und 4.2.3.1)</i>	keine	Wirtsgestein

4.2.3.1 UO_2 /MOX-Brennstoffe

Korrosion

Die Korrosion der UO_2 - und MOX-Brennstoffe wird aufgrund des ähnlichen chemischen Verhaltens von U und Pu im Folgenden exemplarisch für UO_2 beschrieben. Weitere Informationen zur Zusammensetzung des bestrahlten Brennstoffs (auch zur IRF) sind in Kapitel 4.1.4.2 aufgeführt.

Die Auflösungskinetik der Brennstoffmatrix wird in erster Linie durch die vorherrschenden pH- und Redox-Bedingungen, das Vorhandensein eines Lösungsmediums und seiner Zusammensetzung sowie maßgeblich das Vorhandensein von Oxidationsmitteln dominiert. Die Temperaturabhängigkeit der Matrixkorrosion von bestrahlten Brennstoffen wird in der Literatur als untergeordnet eingeschätzt /GRA 98/, /GRA 96/, /JOH 88/, /LOI 99/.

Wenn sich Wasser im direkten Umfeld des Brennstoffs befindet, kann dieses radiolytisch gespalten werden, und es entstehen reaktive Moleküle ($\text{OH}^\cdot$, $\text{H}^\cdot$, $\text{OOH}^\cdot$ und e^-_{aq}), wobei die meisten sehr rasch zu stabilen Molekülen (H_2O_2 , H_2 und O_2) rekombinieren (z. B. Abb. 4.38) /ALL 61/, /JÉG 05/, /SPI 90/.

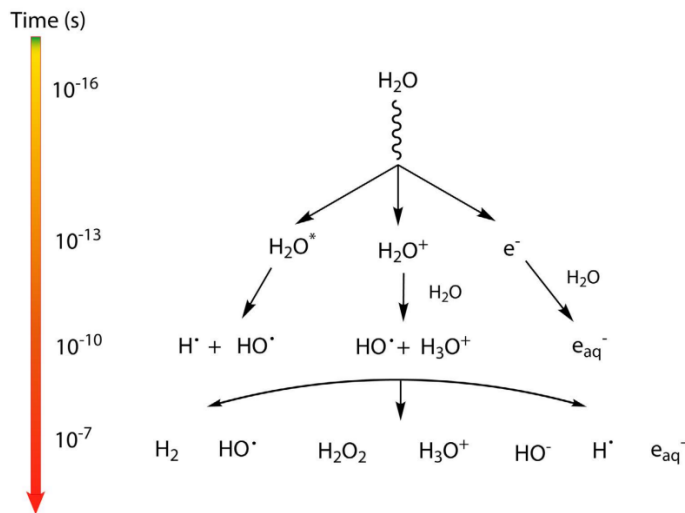


Abb. 4.38 Radiolyse von Wasser /LOU 16/

Aufgrund der Betrachtungszeit, bzw. zu erwartenden Lebensdauer der Barrieren von einigen 100 bis Millionen Jahren und der längeren Halbwertszeiten der α -Strahler, ist der Beitrag der β/γ -Strahlungsleistung zur Radiolyse im Vergleich zur α -Strahlungsleistung zu vernachlässigen⁴⁸. Des Weiteren hat α -Strahlung eine hohe lineare Energietransferleistung (LET) und eine sehr kurze Reichweite in Wasser, bei der effektiv H_2 und H_2O_2 produziert wird.

Uran(IV) ist im Gegensatz zu Uran(VI) sehr schlecht wasserlöslich. Unter der Vernachlässigung einer Reaktion mit anderen im Endlagersystem (im Überschuss) befindlichen Reduktionsmitteln (u. a. H_2), kann ein durch Radiolyse gebildetes Mol H_2O_2 ein Mol Uran(IV) zu einem Mol Uran(VI) oxidieren Gl. (4.14). Letzteres ist in Wasser löslich und damit potenziell mobil oder fällt nach Folgereaktion(en) als unlöslicher Feststoff ab.



Modell

Der oben beschriebene Vorgang der Brennstoffkorrosion ist in Abb. 4.39 stark vereinfacht skizziert.

⁴⁸ Der Anteil der α -Strahlungsleistung an der Gesamtstrahlungsleistung beträgt nach 100 Jahren ca. 84 bzw. 97 % für UO_2 - bzw. MOX-Brennstoff und nach 500 Jahren mehr als 99,5 % bei UO_2 - und MOX-Brennstoff.

Es werden folgende Bedingungen und Randbedingungen⁴⁹ für das Modell festgelegt:

- Das Versagen aller äußerer Barrieren zu einem bestimmten Zeitpunkt (t_2).
- Die unbegrenzte Verfügbarkeit von Wasser. Der Brennstoff eines Stabes ist vollständig von Wasser umgeben.
- Der Anteil der Radionuklide der Instant Release Fraction (IRF) wird mit 10 % des Gesamt-Radionuklidinventars eines Brennstabes definiert. Dieser Teil wird direkt nach dem Ausfall der Barrierefunktion (Zeitpunkt t_2) des Hüllrohres freigesetzt⁵⁰.
- Die Brennstoffkorrosion wird als Oxidation der UO_2/MOX -Brennstoffmatrix durch H_2O_2 beschrieben.
- Die Bildung von H_2O_2 durch Radiolyse von Wasser durch Alpha-Strahlung.
- Vernachlässigung der Reaktion von H_2O_2 mit anderen Reduktionsmitteln (u. a. H_2 , Fe^{2+}).
- Es werden anaerobe Bedingungen vorausgesetzt⁵¹, da der durch die Bergwerkbewetterung eingetragene Sauerstoff im Nahfeld innerhalb von wenigen Jahren bis Jahrzehnten durch Oxidationsprozesse an den metallischen Materialien und von im Bentonit bzw. Wirtsgestein enthaltenen Mineralphasen verbraucht sein wird.
- Geochemische Bedingungen, insbesondere der pH-Wert und die Zusammensetzung des Fluids, werden als externe Faktoren gewertet und – unter den im Endlager zu erwarteten Größen – im Modell als konstant angenommen.
- Ausschließliche Betrachtung von DWR-Brennelementen (aufgrund höherer Alpha-Leistung bei gleichem Abbrand im Vergleich zu SWR-BE; weitere Details siehe Kapitel 3).
- Die Korrosion der Brennstoffmatrix erfolgt kongruent mit der Freisetzung der darin enthaltenen Radionuklide.

⁴⁹ der betrachteten Endlagerkonzepte

⁵⁰ Die im Nachgang stattfindende diffusionsgetriebene Freisetzung weiterer leichtflüchtiger Radionuklide wird als eigenständiger Prozess vernachlässigt und im Modell durch die Auflösung der Brennstoffmatrix abgedeckt.

⁵¹ Der Auflösungsprozess der Brennstoffmatrix ist bei aeroben Bedingungen um drei bis vier Größenordnungen höher als unter anaeroben.

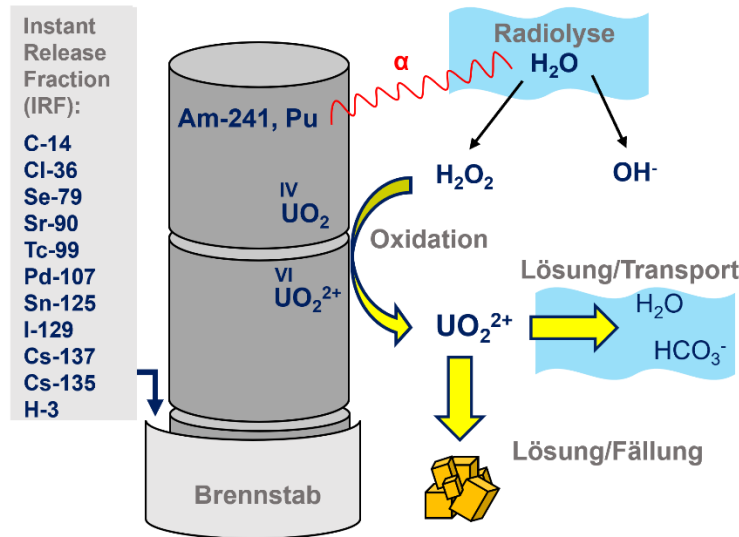


Abb. 4.39 Schematische Skizze zur Brennstoffmatrixauflösung

Die Radiolyse von Wasser aufgrund der Alpha-Strahlung und die damit verbundene Oxidation von UO_2 wird in der Literatur als Grundlage für die Auflösung der Brennstoffmatrix von bestrahlten Brennelementen betrachtet. Unter anderem wurde das radiolytische Modell im Rahmen des schwedischen Endlagerkonzepts und der Sicherheits- und Nachweisführung betrachtet (siehe z. B. /NER 83/ und die darin zitierte Literatur). In einem rezenten und noch nicht abgeschlossenen Projekt /EUR 20/ im Rahmen des EU-Horizon-Programms wird dieser Ansatz ebenfalls in Modellierungen des Materialverhaltens auf Grundlage experimenteller Daten verfolgt und weiterentwickelt. Der gleiche Ansatz der Brennstoffmatrixauflösung wird im nachfolgenden Modell betrachtet.

Die Bildung bzw. Produktion (P) von H_2O_2 in unmittelbarer Umgebung des Brennstoffes eines Brennstabes $P_{\text{H}_2\text{O}_2}^{\text{BS}}$ ist abhängig von der effektiven strahlenchemischen Ausbeute (G_{eff} -Wert) und der α -Leistung und wird für die Betrachtung eines Brennstabes $Q^{\text{BS}}\alpha$ durch Gl. (4.15) beschrieben:

$$P_{\text{H}_2\text{O}_2}^{\text{BS}}(t) = F_{\text{Radiolyse}}^{\text{BS}} \cdot G_{\text{eff}}(\text{H}_2\text{O}_2) \cdot Q_{\alpha}^{\text{BS}}(t) \quad (4.15)$$

Aufgrund der Selbstabschirmung des Brennstoffes tragen nicht alle im Brennstoff erzeugten α -Teilchen zur Radiolyse des Wassers bei. Die Berechnung der Fraktion ($F_{\text{Radiolyse}}^{\text{BS}}$) des Brennstoffanteils eines Brennstabes (BS), der zur Radiolyse beiträgt, wird mittels Gl. (4.16) bestimmt:

$$F_{Radiolyse}^{BS} = F_{Geo}^{\alpha} \frac{\lambda_{\alpha} \cdot A_{eff,BS}}{V_{BS}} \quad (4.16)$$

Dabei ist λ_{α} die Reichweite eines α -Teilchens im Brennstoff (siehe Abb. 4.40), $A_{eff,BS}$ die vom Fluid benetzbare Oberfläche des Brennstoffes eines Brennstabes (effektive Oberfläche der Pellets) normiert über das Volumen des Brennstoffes eines Brennstabes (V_{BS}). F_{Geo}^{α} dient als Geometriefaktor und berücksichtigt bei der Berechnung nur den Anteil der α -Teilchen, welche von der Oberfläche ins Fluid hinaus emittiert werden (siehe Abb. 4.40).

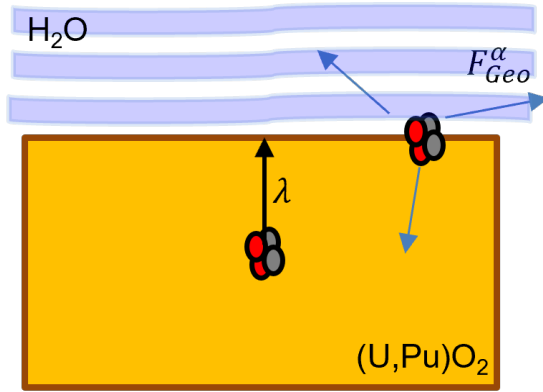


Abb. 4.40 Schematische Darstellung der Reichweite λ_{α} und des Geometriefaktors F_{Geo}^{α}

Die fraktionelle Auflösungsrate, normiert auf einen Brennstab (R_{BS}), wird in Abhängigkeit der zeitlich abhängigen Produktionsrate von H_2O_2 und der Stoffmenge von UO_2 eines Brennstabes mit Gl. (4.17) beschrieben:

$$R_{BS}(t) = \left(n_{UO_2}^{BS} / p_{H_2O_2}^{BS}(t) \right)^{-1} \quad (4.17)$$

Der gelöste bzw. oxidierte Anteil und damit die freigesetzten Radionuklide der Brennstoffmatrix können über das Integral der Korrosionsrate Gl. (4.18) bestimmt werden.

$$F_{BS} = \frac{1}{m_{gesamt}^{BS}} \cdot \int_{t_2}^{t_3} \vec{r}_{BS}(t) dt \quad (4.18)$$

Berechnungen

Die Eingangswerte sind in Tab. 4.27 aufgelistet. Ausgehend von den in Deutschland verwendeten LWR-Brennstoffen werden folgende repräsentative Brennstofftypen bzw. Abbrände berücksichtigt (siehe Kapitel 3 für mehr Details):

- MOX mit 55 GWd/Mg SM
- UO₂ mit 67 GWd/Mg SM
- UO₂ mit 45 GWd/Mg SM
- WWER mit 33 GWd/Mg SM

Die Alpha-Leistung wird aus den Abbrandrechnungen (siehe Kapitel 3) übernommen und ist in Abb. 4.41 dargestellt. Von den berücksichtigten Brennstofftypen hat MOX-Brennstoff die höchste und WWER-Brennstoff die niedrigste Alpha-Leistung. Durch die leicht unterschiedliche Datenbasis der WWER-Abbrandrechnungen und die Interpolation der Datenpunkte liegt die Alpha-Leistung der WWER-Brennelemente in Abb. 4.41 nur scheinbar teilweise über der Alpha-Leistung für die UO₂-Brennelemente (45 GWd/Mg).

Tab. 4.27 Eingangswerte zur Berechnung der Korrosionsraten der LWR-Brennstoffe bezogen auf einen Brennstab

Größe	Symbol	Einheit	Wert
Alpha-Leistung	Q_{α}	J/s	Abbrandrechnungen (siehe Abb. 4.41)
effektive strahlenchemische Ausbeute	G_{eff}	1/100 eV mol/J	0,11 1,14E-8
Geometriefaktor	$F_{\alpha, \text{Geo}}$	-	0,5
Reichweite Alpha-Teilchen	λ_{α}	m	1,1E-5 /NIT 73/
Ideal-Oberfläche eines Brennstabes	A_{BS}	m ²	0,14
Volumen eines Brennstabes	V_{BS}	m ³	1,98E-4
Masse des Brennstoffs ^{1,2}	m_{BS}	g	2040
Molare Masse von UO ₂	M_{UO_2}	g/mol	270
Stoffmenge UO ₂	$n_{\text{BS, UO}_2}$	mol	7,54

¹ Auf Grundlage der mittleren Masse aller bestrahlten Brennelemente in Deutschland.

² Die Masse eines Brennstabes hängt von der Gesamtmasse eines Brennelementes und der Zahl der darin enthaltenen Brennstäbe ab. Für DWR-BE mit ca. 611 kg Gesamtmasse und 300 Brennstäben ergibt sich ein Brennstabgewicht von ca. 1,88 kg.

Die strahlenchemische Ausbeute G wird in der Literatur mit einer Bandbreite von ca. 1 bis 0,001 Teilchen pro 100 eV angegeben [JOH 00/, [BUR 81/, [CHR 98/, [CHO 13/. Nach [JOH 00/ wird anhand von Daten aus [SKB 91/, [SKB 93/, [VIE 92/ unter Betrachtung einer hypothetischen Zusammensetzung des Fluids im Endlagersystem G_{eff} mit 0,004 bis 0,11 Teilchen pro 100 eV abgeschätzt⁵². Demnach ist der zu erwartende konservative Wert von 0,11 Teilchen pro 100 eV (umgerechnet $1,14 \cdot 10^{-8}$ mol/J) in einem Endlagersystem anzunehmen und im Nachfolgenden übernommen.

Die effektive Oberfläche des Brennstoffs ist unbekannt und wird geschätzt. Als Geometriefaktor wurde angenommen, dass geometriebedingt 50 % der Alpha-Teilchen zur Radiolyse beitragen und die restlichen Alpha-Teilchen in den Brennstoff hinein emittiert werden.

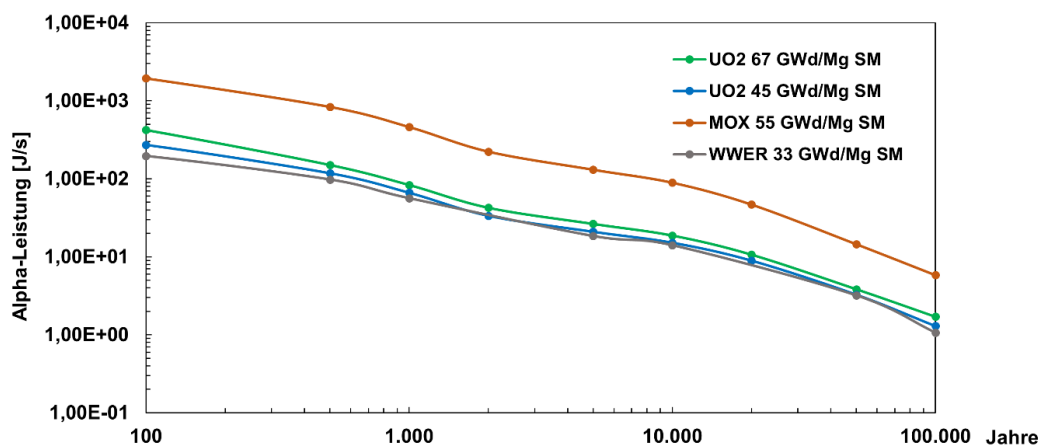


Abb. 4.41 Alpha-Leistung für Brennstoffe mit unterschiedlichen Abbränden in Abhängigkeit der Zeit (nach Entladung aus dem Reaktor)

Unter Verwendung der o. g. Gl. (4.15), (4.16) und (4.17) und der Eingangswerte aus Tab. 4.27 können die Korrosionsraten für die verschiedenen bestrahlten Brennstofftypen bestimmt werden (siehe Abb. 4.42). Die Alpha-Leistung nimmt mit der Zeit ab, dies spiegelt sich auch bei den berechneten Korrosionsraten wider.

⁵² Eine Abschätzung der effektiven strahlenchemischen Ausbeute G_{eff} erfolgt in der Literatur unter der Betrachtung eines Endlagersystem und einer möglichen Wechselwirkung mit unterschiedlichen Molekülen und Ionen (wie z. B. Fe^{2+} und H_2), welche mit H_2O_2 reagieren können.

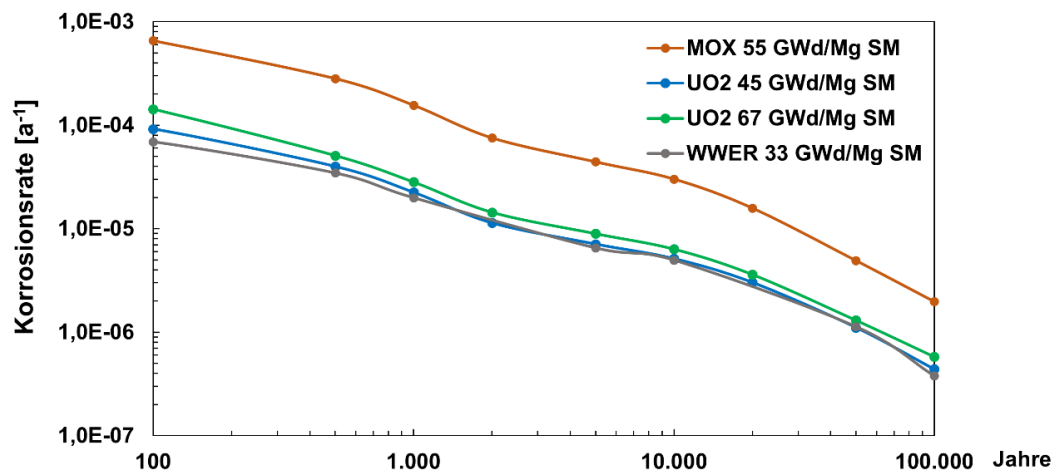


Abb. 4.42 Korrosionsraten für Brennstoffe mit unterschiedlichen Abbränden in Abhängigkeit der Zeit (nach Entladung aus dem Reaktor)

Die Korrosionsraten nehmen über den betrachteten Zeitraum um zwei bis drei Zehnerpotenzen ab. Aufgrund der höheren Alpha-Leistung für MOX-Brennstoff ist auch die Korrosionsrate für MOX-Brennstoff am größten. Die Raten der anderen Brennstoffe unterscheiden sich nur gering, vor allem ab einem Zeitpunkt von 10.000 Jahren (siehe Tab. 4.28).

Tab. 4.28 Korrosionsraten der Brennstoffe für unterschiedliche Zeitpunkte nach der Bestrahlung

Korrosionsrate nach:	100 Jahren in [a ⁻¹]	1.000 Jahren in [a ⁻¹]	10.000 Jahren in [a ⁻¹]	100.000 Jahren in [a ⁻¹]
MOX ₅₅ GWd/Mg SM	8,74E-4	2,83E-4	3,02E-5	1,97E-6
UO ₂ 67 GWd/Mg SM	2,01E-4	8,09E-5	6,35E-6	5,77E-7
UO ₂ 45 GWd/Mg SM	1,10E-4	3,99E-5	5,14E-6	4,39E-7
WWER ₃₃ GWd/Mg SM	7,68E-5	3,46E-5	6,54E-6	3,79E-7

Parameterstudie

Gemäß den angeführten Zusammenhängen ist das Oxidationsmittel Wasserstoffperoxid maßgeblich für die Brennstoffkorrosion verantwortlich. Für die berechneten Korrosionsraten wurde für die strahlenchemische Ausbeute (G_{eff}) mit Werten von 0,001 bis 1 Teilchen pro 100 eV gerechnet, um den Bereich, der in der Literatur /JOH 00/, /BUR 81/, /CHR 98/, /CHO 13/ diskutiert wird, abzudecken. Auch für die effektive Oberfläche wurde mit vier verschiedenen Werten in einem Bereich von $1 \times 0,38 \text{ m}^2$ bis $50 \times 0,38 \text{ m}^2$ gerechnet. Um den Einfluss der Größen Zeit des Behälterversagens, G_{eff} und A_{eff} auf die Korrosionsrate und den Anteil der gelösten Brennstoffmatrix zu untersuchen, wurde eine Parameterstudie für alle Brennstofftypen durchgeführt.

Im Folgenden werden die Ergebnisse für den Brennstoff mit der höchsten (MOX) und der niedrigsten Alpha-Leistung (WWER) dargestellt. Die Ergebnisse für UO₂, (45 GWd/Mg SM, 67 GWd/Mg SM) sind im Anhang A.2 aufgeführt.

In Tab. 4.29 sind die gewählten Werte für G_{eff} und A_{eff} gelistet. Die Ergebnisse der Berechnungen zu den Korrosionsraten sind aufgrund der Datenkomplexität in 3d-Diagrammen dargestellt (siehe Abb. 4.43 und Abb. 4.45). Zusätzlich sind in 2d-Diagrammen jeweils die kleinste Korrosionsrate (r_{min}) und die größte (r_{max}) für die Parameter gezeigt, um den Bereich, den die Korrosionsraten abdecken, zu verdeutlichen (siehe Abb. 4.44 und Abb. 4.46).

Tab. 4.29 Werte für Parameterstudie für G_{eff} und A_{eff}

G_{eff}	[n/100 eV]	0,001	0,01	0,1	1
A_{eff}	[0,38m ²]	1x	10x	20x	50x

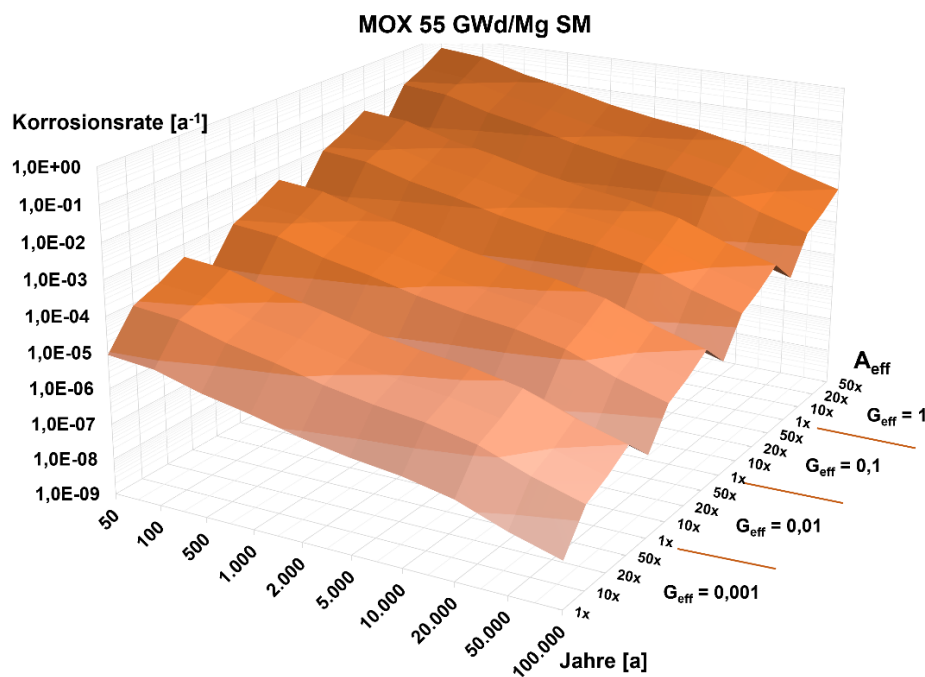


Abb. 4.43 Korrosionsraten für MOX mit 55 GWd/Mg SM in Abhängigkeit von t , A_{eff} und G_{eff}

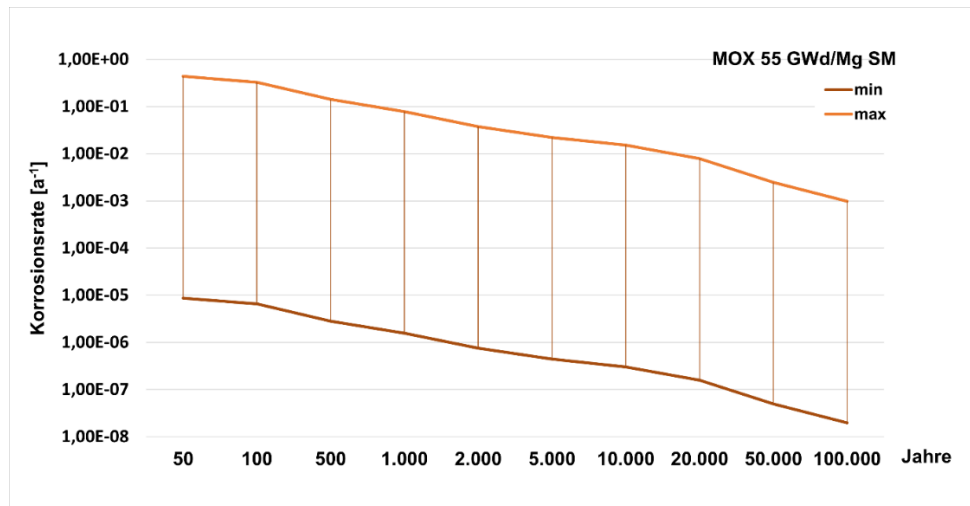


Abb. 4.44 Bereich der Korrosionsraten aufgespannt von $r(t)_{\min}$ und $r(t)_{\max}$ für MOX

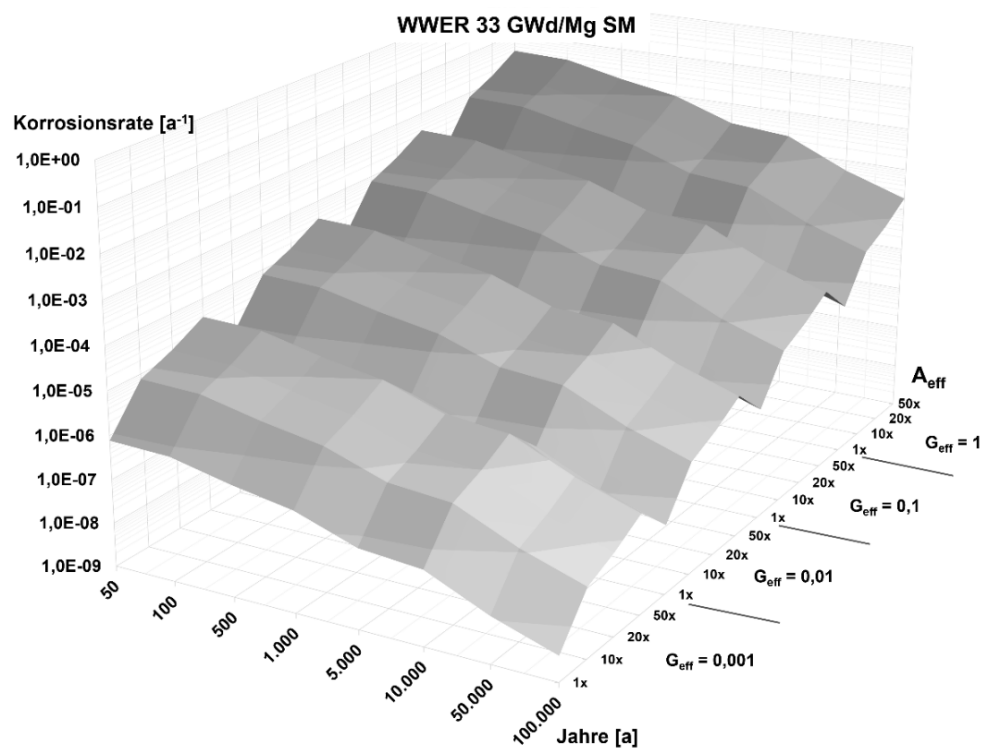


Abb. 4.45 Korrosionsraten für WWER mit 33 GWd/Mg SM in Abhängigkeit von t , A_{eff} und G_{eff}

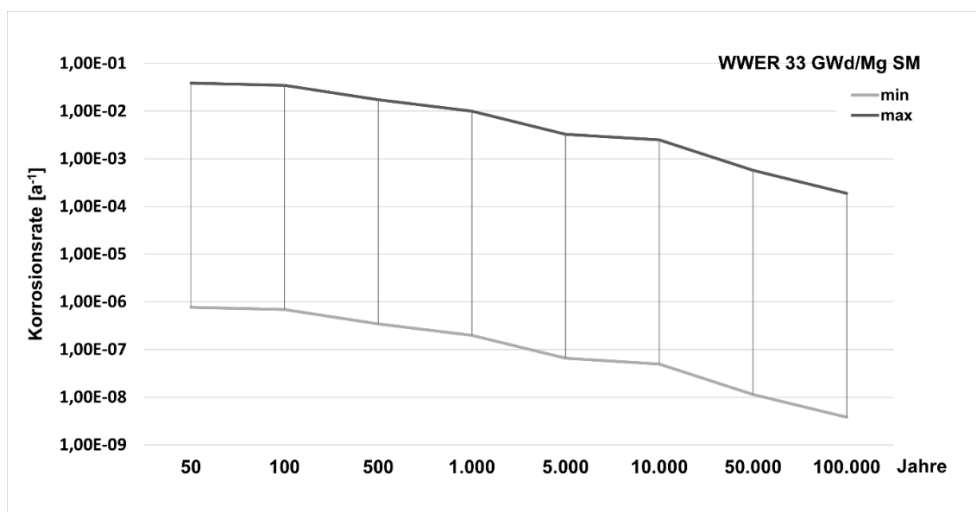


Abb. 4.46 Bereich der Korrosionsraten aufgespannt von $r(t)_{\min}$ und $r(t)_{\max}$ für WWER

Die Ergebnissen zeigen das mit A_{eff} und G_{eff} auch die Korrosionsrate linear zunimmt. Die Werte für $r_{\min}$ und $r_{\max}$ unterscheiden sich für MOX- und WWER-Brennstoff um 4 bis zu 4,5 Größenordnungen.

Tab. 4.30 Korrosionsraten (max. und min.) für MOX und WWER für unterschiedliche Zeitpunkte

Korrosionsrate	G_{eff} [n/100 eV]	A_{eff} [0,38 m ²]	100 a	1.000 a	10.000 a	100.000 a
MOX: $r(t)_{\min}$ [a ⁻¹]	0,001	1x	6,57E-6	1,56E-6	3,02E-7	1,97E-8
MOX: $r(t)_{\max}$ [a ⁻¹]	1	50x	3,28E-1	7,28E-2	1,51E-2	9,86E-4
WWER: $r(t)_{\min}$ [a ⁻¹]	0,001	1x	6,93E-7	2,00E-7	4,98E-8	3,79E-9
WWER: $r(t)_{\max}$ [a ⁻¹]	1	50x	3,47E-2	9,98E-3	2,49E-3	1,89E-4

Für die Darstellung des gelösten bzw. oxidierten Anteils der Brennstoffmatrix wird das Integral der zeitabhängigen Korrosionsrate Gl. (4.18) in den Grenzen

- t_0 - der Zeitpunkt des Endlagerverschlusses,
- t_2 - des vollständigen Barriereversagens und
- t_3 - dem Betrachtungszeitraum von 1 Mio. Jahre nach dem Verschluss des Endlagers

beschrieben. Die Auswahl der in den nachfolgenden näher betrachteten Szenarien zur Verdeutlichung der Parametereinflüsse ist wie folgt zusammengefasst:

- Veränderung des Zeitpunkts des Barriereversagens

- b) Veränderung der effektiven strahlenchemischen Ausbeute (G_{eff})
- c) Veränderung der effektiven Oberfläche (A_{eff})

Für die Bestimmung des freigesetzten Radionuklidinventars aus der Brennstoffmatrix werden 10 % des Gesamtanteils der Radionuklide als IRF angenommen (siehe Kapitel 4.1.4.2.1).

zu a) Zeitpunkt des Barriereversagens

Die Abb. 4.47 und Abb. 4.48 zeigen die Ergebnisse der Modellrechnungen für die Freisetzung der Radionuklide in Abhängigkeit des Zeitpunktes des Behälterversagens für MOX-Brennelemente (55 GWd/Mg SM) bzw. für WWER-Brennelemente (33 GWd/Mg SM). Der Anteil der aufgelösten Brennstoffmatrix bzw. der freigesetzten Radionuklide zeigt einen leicht unterschiedlichen Verlauf zum Zeitpunkt des Barriereversagens bei 10.000 Jahren (siehe Abb. 4.47). Im Vergleich der beiden gegensätzlichen Brennstoffe untereinander, WWER (Abb. 4.48) und MOX, wird die Abhängigkeit der Freisetzung der Radionuklide (Korrosion der Brennstoffmatrix) von der Alpha-Leistung (siehe Abb. 4.41) deutlich. Letztere ist für MOX am größten.

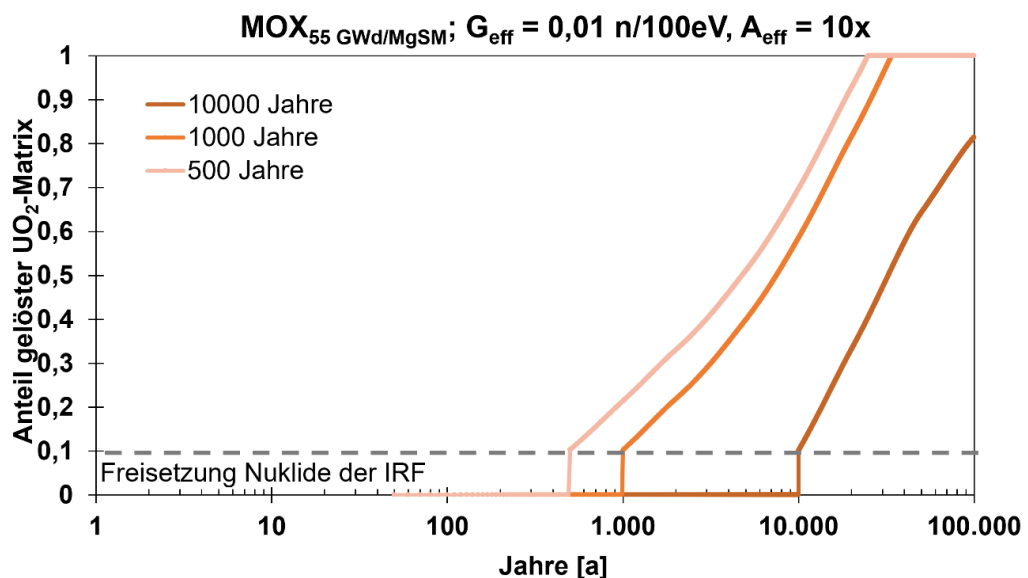


Abb. 4.47 Anteil gelöster UO_2 -Matrix für drei fiktive Zeitpunkte eines Barriereversagens: 500, 1.000 und 10.000 Jahre

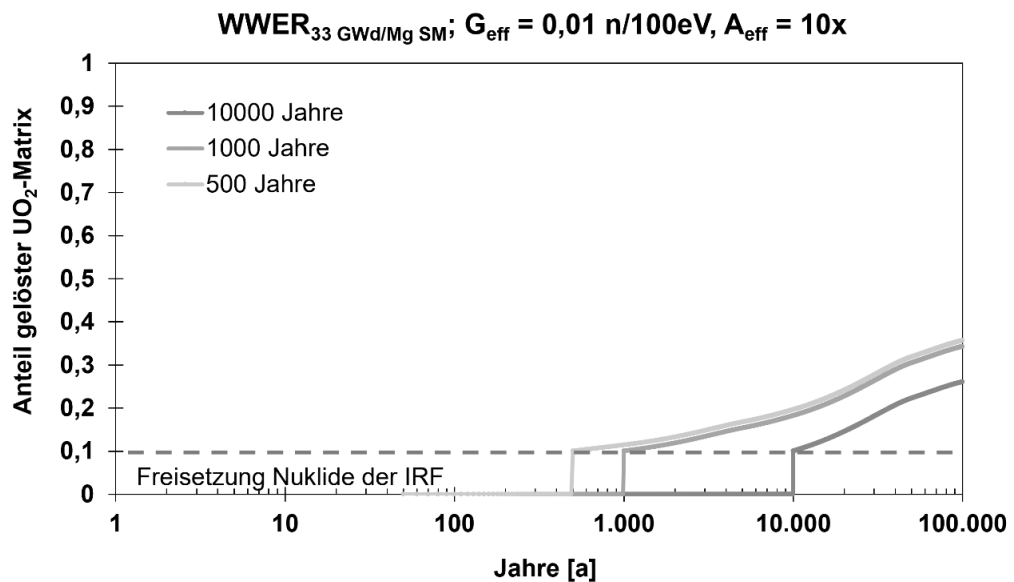


Abb. 4.48 Anteil gelöster UO_2 -Matrix für drei fiktive Zeitpunkte eines Barriereversagens: 500, 1.000 und 10.000 Jahre

Zu b) Effektive Strahlenchemische Ausbeute G_{eff}

Abb. 4.49 und Abb. 4.50 zeigen die Ergebnisse bzgl. der Brennstoffkorrosion in Abhängigkeit der effektiven strahlenchemischen Ausbeute für MOX-Brennelemente (55 GWd/Mg SM) bzw. WWER-Brennelemente (33 GWd/Mg SM) für ein Barriereversagen nach 500 Jahren. Bei einer effektiven strahlenchemischen Ausbeute von 1 ist die Brennstoffmatrix sowohl bei den MOX- als auch bei den WWER-Brennelementen innerhalb von 100 Jahren vollständig aufgelöst ist. Auch bei einem Wert von $G_{\text{eff}} = 0,1$ ist die Brennstoffmatrix nach weniger als 1.000 Jahren aufgelöst. Bei $G_{\text{eff}} = 0,001$, der kleinsten Annahme für die strahlenchemische Ausbeute, ist nach einer Zeit von 100.000 Jahren bei den MOX-Brennelementen nur ein Anteil von weniger als 0,2 aufgelöst. Die WWER-Brennelementen haben einer Zeit von 100.000 Jahren einen deutlich kleineren Anteil. Erwartungsgemäß steigt mit der strahlenchemischen Ausbeute die Bildung von Wasserstoffperoxid, was zu einer schnelleren Auflösung der Brennstoffmatrix und die Freisetzung der Radionuklide führt.

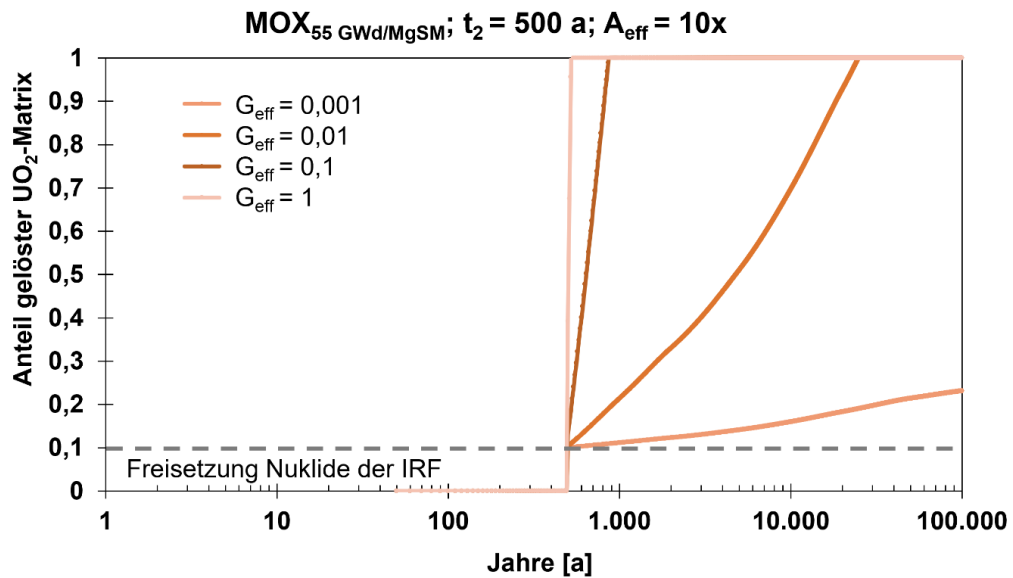


Abb. 4.49 Anteil gelöster UO_2 -Matrix für G_{eff} : 1; 0,1; 0,01; 0,001, bei einem Barriereversagen nach 500 Jahren

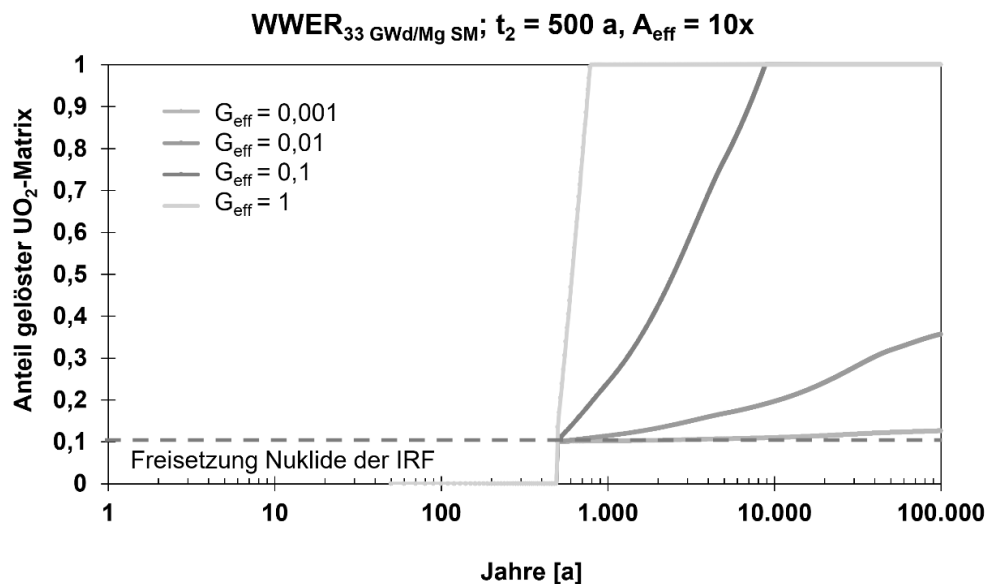


Abb. 4.50 Anteil gelöster UO_2 -Matrix für G_{eff} : 1; 0,1; 0,01; 0,001, bei einem Barriereversagen nach 500 Jahren

Zu c) Effektive Oberfläche A_{eff}

Abb. 4.51 und Abb. 4.52 stellen die Ergebnisse bzgl. des Anteils freigesetzter Radionuklide für MOX-Brennelemente (55 GWd/Mg SM) bzw. für WWER-Brennelemente (33 GWd/Mg SM) in Abhängigkeit von A_{eff} (1x, 10x, 20x, 50x) dar. Auch hier lässt sich ablesen, dass der Zeitraum, für die vollständige Freisetzung der Radionuklide bei den MOX-Brennelementen deutlich früher als bei den WWER-Brennelementen ist. Bei einem effektiven Oberflächenfaktor von 50 ist

dies bei den MOX-Brennelementen nach ungefähr 800 Jahren und bei den WWER-Brennelementen erst nach ungefähr 11.000 Jahren gegeben. Für eine ideale Oberfläche der Brennstoffmatrix mit $A_{\text{eff}}=1$, beträgt der freigesetzte Anteil der Radionuklide nach 100.000 Jahren bei den MOX-Brennelementen ungefähr 0,2, während der freigesetzte Anteil der Radionuklide bei den WWER-Brennelementen nur geringfügig über 0,1⁵³ steigt.

Aus den errechneten Werten (siehe Abb. 4.51 und Abb. 4.52) zeigt sich, dass je größer die effektive Oberfläche, umso größer die gebildete Menge an Wasserstoffperoxid, welche einen direkten Einfluss auf die Rate hat, mit der die Freisetzung der Radionuklid fortschreitet.

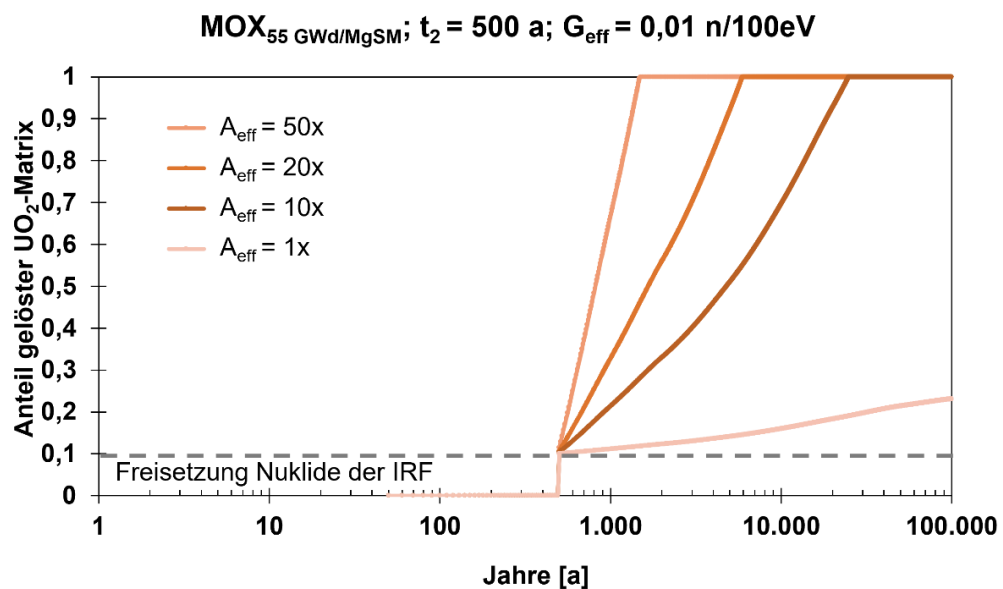


Abb. 4.51 Anteil gelöster UO_2 -Matrix für A_{eff} bei einem Barriereversagen nach 500 Jahren

⁵³ 0,1 ist der Anteil der IRF.

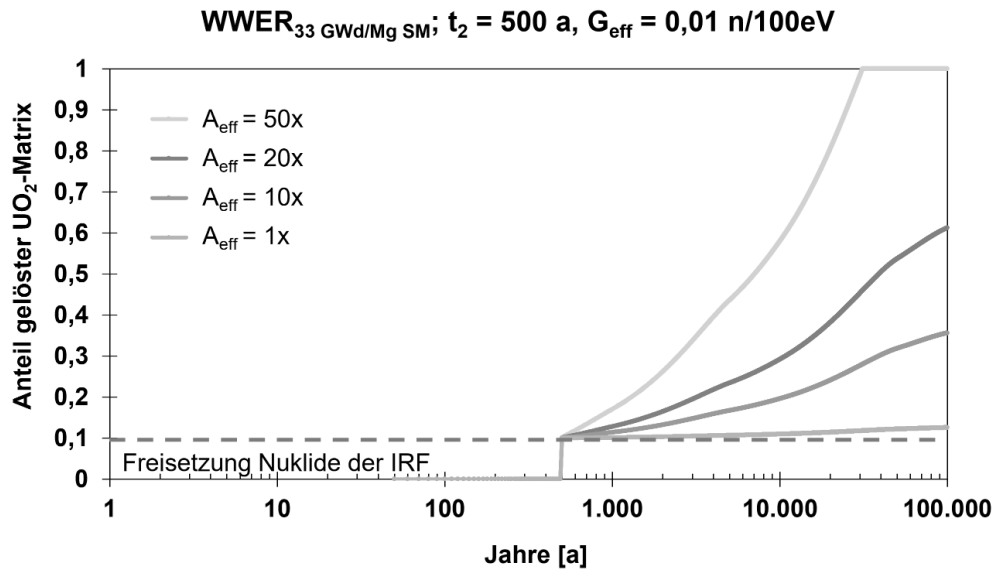


Abb. 4.52 Anteil gelöster UO_2 -Matrix für verschiedene A_{eff} bei einem Barriereversagen nach 500 Jahren

Vergleich zu Forschungs- und Versuchsreaktor-Brennstoffen

Das oben beschriebene Modell für die LWR-Brennstoffe ist prinzipiell für die Forschungs- und Versuchsreaktor gleichen Brennstofftyps anwendbar. Durch die unterschiedliche Bestrahlungshistorie der Forschungs- und Versuchsreaktorbrennstoffe im Vergleich zu den LWR-Brennstoffen, kann durch die häufigen Lastwechsel (durch An- und Abfahren des Reaktors) im Allgemeinen mit einer höheren effektiven Oberfläche der Forschungs- und Versuchsreaktor Brennstoffe gerechnet werden. Durch höhere (Anfangs-) Anreicherungen der Brennstoffe gepaart mit den teilweise signifikant höheren Abbränden (siehe Kapitel 2) ist damit auch eine höhere Alpha-Leistung zu erwarten.

Durch die genannten Unterschiede sind für alle Forschungs- und Versuchsreaktor Brennstoffe, nach diesem Modell, höhere Korrosionsraten über die Zeit zu erwarten. Für eine detailliertere Betrachtung, insbesondere die der Alpha-Leistung, wären konkrete Abbrandrechnungen auf Grundlage von repräsentativen Bestrahlungshistorien der Forschungs- und Versuchsreaktor Brennstoffe erforderlich.

Korrosion in Abhängigkeit der Verfügbarkeit von Wasser

Die Auflösung bzw. Oxidation von Uran(IV) zu Uran(VI) ist in Gl. (4.14) im Unterabschnitt Korrosion beschrieben. Für die Oxidation eines Mols Uran(IV) wird ein Mol Wasserstoffperoxid benötigt. Die zur Verfügung stehende Menge vom Wasserstoffperoxid wird vom Volumenstrom

des Wassers, der strahlenchemischen Ausbeute der Radiolyse sowie der Alpha-Leistung bestimmt.

Die Berechnung des zur Verfügung stehenden Wasserstoffperoxids zu einem bestimmten Zeitpunkt erfolgt nach Gl. (4.19). Der Volumenstrom des Wasserstoffperoxids ist dabei die Ableitung der Gl. (4.19) nach der Zeit. Dabei ist m_{H_2O} die Masse des zuströmenden Fluids (konstant über den Betrachtungszeitraum), D_α die (Alpha-) Dosis und G_{eff} die strahlenchemische Ausbeute des Wasserstoffperoxids. Die Dosis ist von der Alpha-Leistung abhängig und damit eine Funktion der Zeit (siehe Abb. 4.41).

$$n(H_2O_2) = m_{H_2O}(t) \cdot D_\alpha(t) \cdot G_{eff}(H_2O_2) \quad (4.19)$$

Für die vereinfachte Annahme kann die benötigte Menge Wasser/Wasserstoffperoxid aus den verfügbaren Daten zum Brennstoff und -stab und der Molaren Masse (M) der Edukte über Gl. (4.12) und Gl. (4.13) bestimmt werden (siehe Tab. 4.31).

Tab. 4.31 Ausgangswerte und Ergebnis der Wasserkorrosion Brennstoffmatrix

Größe	Symbol	Einheit	Wert
Strahlenchemische Ausbeute H_2O_2	$G_{eff}(H_2O_2)$	1/100 eV g/mol	0,11 1,14E-08
Alpha-Leistung zum Zeitpunkt 500, 1.000, 10.000 Jahre	$Q_{alpha, 500}$ $Q_{alpha, 1.000}$ $Q_{alpha, 10.000}$	J/s	0,3065 0,1699 0,0382
Masse Brennstoff eines Brennstabs	m	g	2.037
Molare Masse von UO_2	M_{UO_2}	g/mol	270
Stoffmenge von UO_2	n_{BS,UO_2}	mol	7,54
Molare Masse von H_2O_2	$M_{H_2O_2}$	g/mol	34
Stoffmenge von H_2O_2	$n_{H_2O_2}$	mol	7,54
Dichte von H_2O_2	$P_{H_2O_2}$	g/m ³	1.450.000
Volumen H_2O_2	V	l	47,6

Die Alpha-Leistung ist, wie eingangs erwähnt, abhängig vom Brennstofftyp und Abbrand und nimmt mit der Zeit ab. Die Produktion von Wasserstoffperoxid ist damit proportional zu Alpha-Leistung. Für die Alpha-Leistung wurden drei unterschiedliche Werte für die jeweiligen Zeitpunkte 500, 1.000 und 10.000 Jahre zur Berechnung verwendet. Für den $G_{eff}(H_2O_2)$ wurde ein konservativer unter Endlagerbedingungen zu erwartender Wert für die Berechnungen ange-

nommen (siehe Abschnitt Modell in Kapitel 4.2.3.1). Die Menge Wasser, die für die Aufsättigung von Bentonit (Kristallin, Ton) und die Menge, die für die Korrosion der metallischen Barrieren⁵⁴ benötigt wird, ist für die Berechnungen nicht berücksichtigt.

Die Voraussetzung für eine Reaktion und eine Materialdegradation unter den angeführten Umständen ist das Vorhandensein des Lösungsmediums. In Kapitel 4.1.3 sind hydrologische Parameter der Endlagerkonzepte beschrieben und dargestellt. Durch die Berechnung des Volumenstroms (Gl. (4.1)) und der hydrologischen Parameter (siehe Tab. 4.2) kann unter Zuhilfenahme der Oberfläche des Endlagerbehälters die Menge Wasser, welche für die darin enthaltenen Brennelemente und Brennstäbe benötigt wird, abgeschätzt werden (siehe Tab. 4.32). Für die relevante Oberfläche werden die Außenabmessungen der Endlagerbehälter des jeweiligen Endlagerkonzepts berücksichtigt und jeweils die maximale Beladung mit Brennelementen angenommen /BIR 16/, /PAT 12/, /BOL 08/. In den Berechnungen wird ein einzelner Behälter im Endlager isoliert betrachtet. Das Endlagerlayout, die benachbarten Behälter und die Behälter in benachbarten Tunneln werden für den zur Verfügung stehenden Volumenstrom nicht berücksichtigt und damit die mögliche Fluid-Verfügbarkeit überschätzt. Die hier abgeschätzten Mengen werden daher als eine konservative Abschätzung angesehen.

Tab. 4.32 Wirtsgesteinsabhängige Berechnung, der für die vollständige Oxidation eines Brennstabes zur Verfügung stehenden Menge Wasser und der hierfür benötigten Dauer (hydrogeologische Daten aus Tab. 4.2)

Endlagerkonzept	Salz	Ton	Bentonit in Ton	Kristallin	Bentonit in Kristallin
Oberfläche Behälter [m ²]	34,684	8,804		19,413	
Anzahl Brennstäbe im Behälter [#]	3.000	1.200		1.200	
$\dot{V}_{\text{Behälter}}$ [l/a]	3,2 bis 1,1E-6	4,6E-3 bis 2,1E-6	4,6E-3 bis 2,1E-6	4,7E10 bis 1,0E-5	2,9E-3 bis 4,3E-9
$\dot{V}_{\text{BS}}$ [l/a]	1,1E-3 bis 3,6E-10	3,9E-6 bis 1,7E-9	1,1E-7 bis 1,2E-14	3,9E+7 bis 8,4E-9	2,4E-6 bis 3,6E-12
$\dot{n}_{\text{BS,H}_2\text{O}_2,500}$ [mol/a]	1,2E-4 bis 3,9E-11	4,3E-7 bis 1,9E-10	1,2E-8 bis 1,3E-15	4,3E+6 bis 9,2E-10	2,6E-7 bis 4,0E-13
$\dot{n}_{\text{BS,H}_2\text{O}_2,1000}$ [mol/a]	6,5E-05 bis 2,2E-11	2,4E-07 bis 1,1E-10	6,6E-09 bis 7,2E-16	2,4E+06 bis 5,1E-10	1,5E-07 bis 2,2E-13
$\dot{n}_{\text{BS,H}_2\text{O}_2,1000}$ [mol/a]	1,5E-05 bis 4,9E-12	5,3E-08 bis 2,4E-11	1,5E-09 bis 1,6E-16	5,3E+05 bis 1,1E-10	3,3E-08 bis 4,9E-14
Zeit [a]	6,4E+04 bis 1,5E+12	1,8E+07 bis 3,2E+11	6,3E+08 bis 4,7E+16	1,8E-06 bis 6,6E+10	2,9E+07 bis 1,5E+14

⁵⁴ Die vollständige anaeroben Korrosion des Stahls eines einzigen POLLUX® 10 Behälters von rund 55.500 kg wird mit einem Verbrauch von rund 23.850 kg H₂O angegeben /LAR 13/.

Die Berechnungen in Tab. 4.32 zeigen, dass die Wasserstoffperoxidmenge von ca. 7,54 mol, welche für die vollständige Oxidation und damit zur Auflösung eines Brennstabes benötigt wird, innerhalb von ca. $6,4\text{E}+04$ bis $1,5\text{E}+12$ Jahren in Salz, $6,3\text{E}+08$ bis $4,7\text{E}+16$ Jahren in Ton (mit Bentonit) und $2,9\text{E}+07$ bis $1,5\text{E}+14$ Jahren in Kristallin (mit Bentonit) durch die Radiolyse des aus dem umgebenden Wirtsgestein migrierenden Wassers zur Verfügung stehen könnte.

Bewertung

Zur Ermittlung der Parameter und Berechnung der Korrosionsraten sowie der Dauer der Auflösung der Brennstoffmatrix durch Oxidation wurde ein radiolytisches Modell angewendet. Die Modellannahmen basieren auf der Radiolyse von Wasser durch Alpha-Strahlung und der Bildung von Wasserstoffperoxid sowie der anschließenden Oxidation der Brennstoffmatrix. Die Eingangsparameter sind die Alpha-Leistung der Brennstoffmatrix, die (benetzbare) effektive Oberfläche der Brennstoffmatrix und die effektive strahlenchemische Ausbeute des Wasserstoffperoxids.

Die Alpha-Leistung wurde aus den repräsentativen Abbrandrechnungen (vgl. Kapitel 3), für DWR- UO_2 -Brennelemente mit einem mittleren Abbrand von 67 und 45 GWd/Mg SM, für MOX-Brennelemente mit 55 GWd/Mg SM sowie für WWER-Brennelemente (UO_2 , 33 GWd/Mg SM) übernommen. Die Oberfläche eines Brennstabes ist unbekannt und wurde deshalb als variable Größe als das bis zu 50-fache der idealen Oberfläche betrachtet. Es ist davon auszugehen, dass Brennstoffe mit höherem Abbrand auch höhere Belastungen erfahren haben und somit auch eine größere effektive Oberfläche aufweisen.

Die strahlenchemische Ausbeute als weiterer im Modell signifikanter Parameter, hängt u. a. von der Zusammensetzung des Fluids sowie der Energie der Alpha-Teilchen ab und ist mit einer Bandbreite von 0,001 bis 1 Teilchen pro 100 eV in der Literatur angegeben. Unter Endlagerbedingungen werden aus der Literatur 0,004 bis 0,11 Teilchen pro 100 eV, in Abhängigkeit von der Fluidzusammensetzung, abgeschätzt.

Das Modell zeigt, dass die Auflösung der Brennstoffmatrix und Freisetzung von den drei betrachteten Parameter stark abhängt. Da die Alpha-Leistung als eine abnehmende Funktion der Zeit in die Berechnungen einfließt, ist in diesem Modell ein späteres Versagen der Barrieren vorteilhafter. Eine geringere Alpha-Leistung vermindert die Bildung von Wasserstoffperoxid und somit auch die Korrosionsrate. Nach rund 10.000 Jahren verringert sich durch die abnehmende Alpha-Leistung die Korrosionsrate um rund eine Größenordnung. Die Oberfläche, als zweiter Parameter, ist im Modell mit keiner Zeitabhängigkeit versehen und zeigt eine direkte

Proportionalität zur Korrosionsrate. Eine 10-fache Vergrößerung der initialen Brennstoffoberfläche führt zu rund einer Größenordnung höhere Korrosionsrate, eine 50-fache um rund zwei Größenordnungen. Eine geringere Oberfläche der Brennstoffmatrix ist damit für die Korrosionsrate in gleichem Maße vorteilhaft. Die Variation des dritten Parameters, die effektive strahlenchemische Ausbeute, zeigt eine direkte Proportionalität zur Korrosionsrate und damit eine Variation um drei Größenordnungen zwischen dem kleinsten (0,001 Teilchen pro 100 eV) und dem größten Wert (ein Teilchen pro 100 eV).

Der Parameter Alpha-Leistung der unterschiedlichen Brennstoffe, kann durch die vorangegangene Zwischenlagerung indirekt beeinflusst werden. Eine längere Zwischenlagerdauer führt zu einer leichten Abnahme der Alpha-Aktivität der Brennstoffe und somit zu einer niedrigeren Alpha-Leistung. Jedoch verringert sich die Alpha-Leistung nur langsam und fällt erst nach rund 10.000 Jahren um rund eine Größenordnung ab.

Die Oberfläche der Brennstoffmatrix wird hauptsächlich durch den Betrieb im Reaktor, insbesondere die Bestrahlungsdauer und die Anzahl der Zyklen, bestimmt. Eine Veränderung der Oberfläche ist während der Zwischenlagerung durch Strahlenschädigung (hauptsächlich durch Alpha-Teilchen) möglich, aber nach derzeitigem Kenntnisstand, im Vergleich zu Strahlenschäden im Reaktorbetrieb, nicht signifikant.

Ein Hüllrohrversagen in der Zwischenlagerung und eine damit verbundene instantane Druckentlastung kann zu einer Oberflächenvergrößerung der Brennstoffpellets führen. Weitere Prozesse, die während der Zwischenlagerung zu einer Vergrößerung der Oberfläche führen können, sind nicht bekannt. Die Belastungen beim Transport und bei der Handhabung der Konditionierung bzw. Endlagerung können einen Einfluss auf die Oberfläche haben.

Um die Auswirkungen der einzelnen Parameter auf die Brennstoffkorrosion zu untersuchen, wurde im Modell der Wasserfluss im Endlager als unbegrenzt für alle Prozesse angenommen. In der Realität ist im Endlager die Verfügbarkeit von Wasser jedoch der limitierende Faktor für alle Korrosionsprozesse, insbesondere für die Korrosion der Barrieren und der Inventare. Zur Bewertung des radiolytischen Modells ist eine Abschätzung der Lösungsmittelmenge pro Zeit anhand der hydrologischen Parameter der jeweiligen Wirtsgesteine berechnet worden. Die Zeitdauer, um die benötigte Menge des Wassers an die Brennstoffe zuzuführen (es in Wasserstoffperoxid umzusetzen) und aufzulösen, ist um viele Größenordnungen höher als die mit dem radiolytischen Modell berechnete Korrosionsdauer (siehe Kapitel 4.1.3).

Das Wirtsgestein Salz ist für Fluide impermeabel und entstandene Risse verheilen nach geologisch sehr kurzer Zeit. Deshalb sind die für die Abschätzung benutzten hydrologischen Werte auf geschädigtes Salz bezogen und damit als äußerst konservativ anzusehen. Ebenso sind für die Abschätzung keine benachbarten Behälter (Endlagerlayout) betrachtet worden, welche zu einer signifikanten Verringerung der verfügbaren Wassermenge pro Zeit und Brennstab führen. Die weiteren Bestandteile des Brennstoffes und die zur Mobilisierung/Transport benötigte Menge an Wasser wurden nicht betrachtet.

Einige Kenngrößen wie u. a. der pH-Wert, die Partialdrücke von Wasserstoff und Kohlendioxid im Endlagersystem sowie die exakte chemische Zusammensetzung des migrierenden Fluids werden durch die Zwischenlagerung nicht beeinflusst und daher im Modell nicht bzw. nur indirekt über die strahlenchemische Ausbeute und als – durch die Endlagerkonzepte – vorgegeben betrachtet.

Ebenso wurden sekundäre Prozesse, die im Nachgang der Auflösung der Brennstoffmatrix stattfinden (wie z. B. Fällung von sekundären Phasen, (Ad-)Sorption, Dispersion), nicht betrachtet, weil sie nicht von der Zwischenlagerung abhängen und weil sich die Datenlage unzureichend darstellt. Anzumerken ist jedoch, dass die nachgelagerten Prozesse (nuklidabhängig) zu einer Bindung bzw. Retardation der Radionuklide führen und damit den Transportprozess aus dem Nahfeld heraus unterbinden bzw. verlangsamen können.

4.2.3.2 HTR-Brennstoffe

In Kapitel 4.1.4.2.2 ist der Aufbau und die Zusammensetzung von HTR-Brennelementkugeln beschrieben. Die mit Pyrokohlenstoff (und ggf. zusätzlich Siliciumcarbid) ummantelten Brennstoffpartikel sind in eine Graphitmatrix eingebettet. Folgende Möglichkeiten einer Radionuklidfreisetzung aus HTR-Brennelementkugeln wurden identifiziert /FAC 06/:

- Freisetzung der Aktivierungsprodukte der im Graphit enthaltenen Verunreinigungen und Zerfallsprodukte aus defekten Brennstoffpartikeln⁵⁵
- Austritt und Mobilisierung der Radionuklide aus den Brennstoffpartikeln mit intakter Beschichtung (> 99 %) /NIC 02/ erfolgt nur, wenn die Beschichtung versagt.

⁵⁵ Das Radiotoxizitätsinventar der Graphitmatrix ist allerdings im Vergleich zu den Brennstoffpartikeln vernachlässigbar /FAC 06/.

- Bei Brennstoffpartikeln mit defekter Beschichtung wird davon ausgegangen, dass sich Radionuklide in der (eindringenden) Porenflüssigkeit auflösen können und durch Diffusion an die Oberfläche der Brennelementkugeln migrieren können.

Experimente mit Brennelementkugeln

/KIR 90/ untersucht die Auslaugung intakte und beschädigte Brennstoffpartikeln. Bei intakten Brennstoffpartikeln wurden nur die Verunreinigungen⁵⁶ der Graphitmatrix langsam in die Sole freigesetzt. Freisetzungsraten von $1\text{E}3\text{ Bq/d}$ pro Brennelementkugel wurden nach einem Jahr beobachtet und ein Anteil von weniger als $1\text{E-}4$ des gesamten Cs-137-Inventars wurde nach vier Jahren freigesetzt. Bei beschädigten Brennstoffpartikeln waren die Freisetzungsraten um mehrere Größenordnungen höher /KIR 90/.

Der langfristige Austritt von Cs-137 wurde anhand von Kannen mit 950 AVR-Brennelementen modelliert. Es wurde angenommen, dass ein Anteil von 20 % des Inventars instantan von defekten Brennstoffpartikeln freigesetzt wird und für das restliche Cs-137 kann ein Austrittsanteil von $2\text{E-}9$ /Tag berechnet werden /FAC 98/.

Es wurde gezeigt, dass die Freisetzung von Radionukliden nicht auf der Diffusion durch die Graphitmatrix, sondern einzig auf dem Austritt der Radionuklide aus defekten Brennstoffpartikeln beruht. Ein Austritt aus intakten TRISO-Brennstoffpartikeln wurde in der kurzen Zeitdauer der Studien nicht beobachtet. Der Anteil defekter Brennstoffpartikeln befindet sich zwischen $1\text{E-}4$ und $1\text{E-}5$ und kann sich bis auf $1\text{E-}3$ bei hochbestrahlten Brennelementen belaufen /KIE 13/, /FAC 98/, /ZHA 93/. /NAB 10/ skizzieren in Abb. 4.53 die für die einzelnen Schichten der Kugeln mögliche Penetrations- sowie Mobilisierungsmechanismen.

⁵⁶ Schwermetall-Kontamination (Uranspuren) aus dem Herstellungsprozess der coated particles sowie Anlagerungen aus dem Kühlgas.

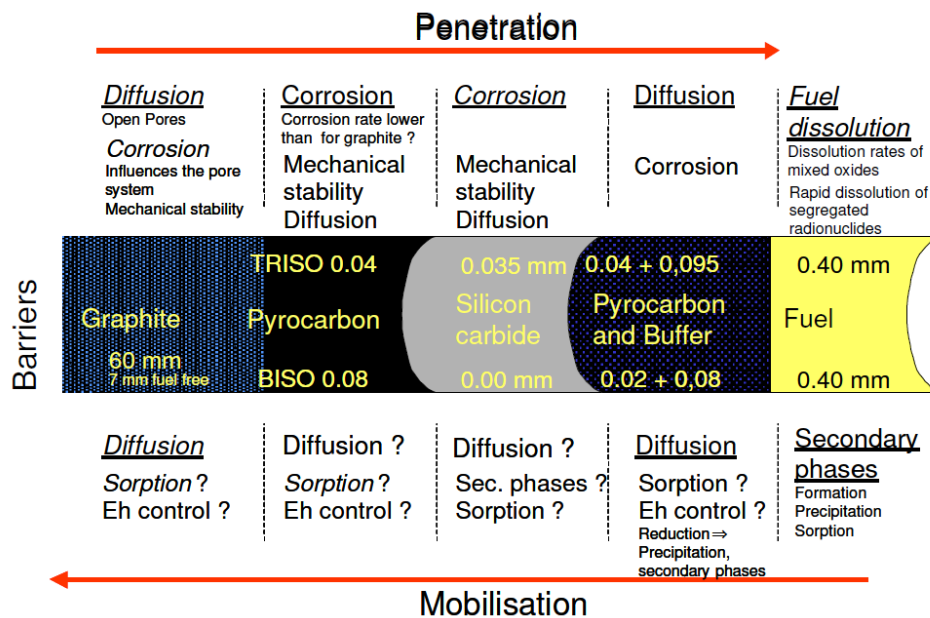


Abb. 4.53 Mobilisierungsmechanismen von Radionukliden aus HTR-BE /NAB 10/

Experimente mit den Bestandteilen von HTR-Brennelementkugeln

Um ein realistisches Modell des Langzeitverhaltens von Brennelementen in verschiedenen Wirtsgesteinen zu entwickeln, wurden die Bestandteile von HTR-Brennelementen einzeln betrachtet /FAC 06/.

Graphitmatrix

Ein bestrahltes AVR-Brennelement kann unter Normalbedingungen etwa 8 ml Lösung aufnehmen. Bei Endlagerbedingungen mit erhöhtem Druck und längeren Kontaktzeiten wird konservativ geschätzt das 23 ml Lösung aufgenommen werden können. Experimente zum Radionuklidtransport in Graphit zeigen, dass der Radionuklidtransport in der wassergefüllten Graphitmatrix hauptsächlich durch Diffusion gesteuert wird. Zusätzlich muss die Adsorption von Nukliden, die von der Partikelgröße abhängig ist, berücksichtigt werden. Bei Diffusionsexperimenten in Salzlösung und Granitwasser mit Graphitscheiben (unbestrahlt, 1 cm dick) wurden Durchbruchzeiten⁵⁷ von einigen Tagen bis zu einem Jahr gemessen /FAC 06/.

Tab. 4.33 fasst die experimentellen Daten von Korrosionsversuchen von pulverförmigem Graphit mit Wasser und Salzlösung jeweils ohne und mit Bestrahlung zusammen. Die Experimente ohne Bestrahlung wurden für zwei Jahre und die Experimente mit Bestrahlung für

⁵⁷ Zeit in der ein Stoff/Ion durch ein Material diffundiert ist.

40 Tage unter Argon-Atmosphäre durchgeführt. Die Korrosionsraten der Versuche ohne Bestrahlung sind geringer als die mit Bestrahlung. Die Korrosionsraten der Versuche mit Wasser sind ähnlich, aber jeweils geringer als die mit Salzlösung. Für eine 0,5 cm dicke Graphitmantelung werden Lebensdauern zwischen 1E6 Jahren in Salzlösung und 1E8 Jahren in Wasser berechnet /FAC 06/.

Tab. 4.33 Experimentelle Daten zu Korrosionsraten und Lebensdauer von Graphit (unter Argon-Atmosphäre, bei 90°C) /FAC 06/

Lösung	Gamma-Bestrahlung	Korrosionsrate in g/m ² /Tag	Lebensdauer in Jahren
Salzlösung	-	1,7E-8	1,4E9
Wasser	-	7,4E-8	3,1E9
Salzlösung	x	1,3E-5	1,8E6
Wasser	x	~ 1E-7	-

Siliciumcarbid und Pyrokohlenstoff

Tab. 4.34 und Tab. 4.35 zeigen die Ergebnisse der Korrosionsexperimente für Pyrokohlenstoff und Siliciumcarbid nach /FAC 06/. Für die Versuche mit Pyrokohlenstoff wurde Material von unbestrahlten Kugeln abgetrennt und gemörsert. Die Korrosionsexperimente wurden analog zu den Versuchen mit Graphit durchgeführt.

Unter Bestrahlung in Salzlösung sind die Pyrokohlenstoff-Korrosionsraten vergleichbar mit den Korrosionsraten von Graphit. In Wasser ist die Korrosionsrate um eine Größenordnung höher als bei Graphit. Unter Annahme einer konstanten Korrosionsrate und eines gleichmäßigen Oberflächenkorrosionsmechanismus wird die Lebensdauer einer 100 µm dicken Pyrokohlenstoff-Schicht auf 1E4 Jahre für Salzlösung und 1E5 Jahre für Wasser geschätzt /FAC 06/.

Tab. 4.34 Experimentelle Daten zu Korrosionsraten und Lebensdauer von Pyrokohlenstoff (unter Argon-Atmosphäre, bei 90°C) /FAC 06/

Lösung	Gamma-Bestrahlung	Korrosionsrate in g/m ² /Tag	Lebensdauer in Jahren
Salzlösung	-	1,4E-8	4,0E7
Salzlösung	x	2,6E-5	2,2E4
Wasser	x	1,3E-6	4,4E5

Die Siliciumcarbid-Schicht dient als strukturelle Unterstützung, um den inneren Gasdruck in dem beschichteten Teilchen zu halten und stellt damit eine Barriere für die gasförmigen und metallischen Spaltprodukte dar. Auslaugungsversuche sagen eine Lebensdauer zwischen 1.000 und 10.000 Jahren für eine 30 µm dicke Schicht voraus. In jedem Fall wird für die Lebensdauer der Siliciumcarbid-Beschichtung ein sicherer Einschluss der Spaltprodukte, die in den ersten 1.000 Jahren zerfallen /NAB 10/, erwartet.

Die Daten für die Korrosionsversuche von Siliciumcarbid in Tab. 4.35 folgen dem bisher beobachteten Trend, je höher die Temperatur desto größer die Korrosionsrate. Die Korrosionsraten der Versuche mit Bestrahlung sind größer als die ohne Bestrahlung.

Tab. 4.35 Experimentelle Daten zu Korrosionsraten und Lebensdauer von Siliciumcarbid (an Luft) /FAC 06/

Lösung	Bestrahlung	Temperatur in °C	Korrosionsrate in g/m ² /Tag	Lebensdauer in Jahren
Granitwasser	-	25	2,03E-6	1,29E5
Granitwasser	x	25	1,39E-6	0,19E6
Granitwasser	-	90	9,64E-6	2,70E3
Granitwasser	x	90	2,81E-5	9,30E3
Q-Lösung	-	25	4,55E-6	5,75E4
Q-Lösung	x	25	4,56E-6	5,73E4
Q-Lösung	-	90	1,68E-5	1,56E4
Q-Lösung	x	90	2,30E-5	1,14E4
Tonwasser pH 9	-	25	4,56E-6	5,73E4
Tonwasser pH 9	x	25	2,83E-6	9,22E4
Tonwasser pH 9	-	90	2,30E-5	1,14E4
Tonwasser pH 9	x	90	8,34E-5	0,31E4

Für den Transport von Radionukliden durch Siliciumcarbid ist die Temperatur einer der wichtigsten bestimmenden Parameter. Je höher die Temperatur im Endlager, desto kürzer der Transport. Es wurde nachgewiesen, dass Lösungsdaten von Siliciumcarbid mit und ohne Einfluss von Spaltprodukten vergleichbar sind /NAB 10/.

Simulierte Endlagerbedingungen im Tongestein (50 °C, 90 °C; synthetisches Tonwasser) ergaben eine hohe Stabilität von Siliciumcarbid und Pyrokohlenstoff unter reduzierenden Bedingungen mit Korrosionsraten von weniger als 5,5E-2 nm/d bis 1,2E-1 nm/d nachgewiesen /AIT 14/.

Brennstoff

Die Brennstoffmatrix selbst wird erst nach einigen Hunderttausend bis Millionen Jahren aufgelöst und hat daher eine wichtige Barrierefunktion für die Endlagerung. Es sind jedoch weitere Untersuchungen erforderlich, um die Wirkung von Radiolyse-Produkten zu quantifizieren /FAC 06/.

Die Analyse des Radionuklid-Inventars von BISO-Brennelementkugeln mit 10 % Abbrand hat gezeigt, dass Cs-137 den Hauptbeitrag zur gesamten Partikelradioaktivität leistet. Die Aktivität ist hauptsächlich innerhalb der Brennelementpartikel und in der Kohlenstoffpufferschicht konzentriert, während die äußere Kohlenstoffschicht nur 0,1 % des gesamten Cs-137 enthält /BUK 12/.

Die Korrosionsraten der Matrix aller Brennstoffe unter reduzierenden Bedingungen weisen darauf hin, dass diese Materialien eine sehr hohe chemische Stabilität gegen Auswaschung besitzen. Die vorliegenden Daten können jedoch noch nicht auf endlagerrelevante Bedingungen hochgerechnet werden, da Radiolyse-Produkte zu einer schnelleren Uranfreisetzung führen könnten. Im Allgemeinen kann festgestellt werden, dass die Lösungsraten sich in der folgenden Reihenfolge verringern: MgCl_2 -Sole > deionisiertes Wasser > NaCl-Sole. Die geschätzte durchschnittliche, normalisierte Auslaugungsrate von Uran in MOX-Brennelementen liegt im Bereich von $1\text{E}10\text{-}5\text{ g/m}^2\text{d}$ ($4\text{E-}8\text{ mol/m}^2\text{d}$). Die normalisierte Rate der Thorium-Auswaschung liegt zwischen $1\text{E-}7$ und $1\text{E-}6\text{ g/m}^2\text{d}$ ($4\text{E-}10$ bis $4\text{E-}9\text{ mol/m}^2\text{d}$) /FAC 06/.

Langzeitig ist in bestrahlten Brennelementen der radioaktive Alpha Zerfall der Actinoiden wichtig. Helium in den Partikelkernen kann über die langen Entsorgungszeiten zu einem signifikanten Druckanstieg innerhalb des beschichteten Partikels führen /NAB 10/. Dies wurde in einem Simulationsmodell untersucht, in dem die Silicium-Schicht um die Brennelemente als ein Druckbehälter simuliert wurde, aus dem bei ausreichender Korrosion das Radionuklidinventar austreten kann. Die Ergebnisse der Sensitivitätsstudie zeigen, dass Korrosionsraten und -dicken der äußeren pyrolytischen Kohlenstoff- und Siliciumcarbidschichten zusammen mit der zeitabhängigen Temperatur des bestrahlten Brennstoffs in der Endlagerumgebung einen signifikanten Einfluss auf die Zeit bis zum Partikelversagen haben. Dabei wurde auch beobachtet, dass die Dicke des Puffers, und somit der Gasdruck, keine signifikante Rolle bei der Zeit bis zum Versagen von TRISO-Partikeln spielen. Auch hier wurde in allen betrachteten Fällen Partikelversagen nach frühestens $1\text{E}5$ Jahren errechnet /PET 11/.

Modell

Auf Grundlage des betrachteten Korrosionsverhaltens der einzelnen Barrieren, kann davon ausgegangen werden, dass der Brennstoff in intakten AVR/THTR-Brennelementkugeln mindestens 100.000 Jahre in den schützenden Schichten von Siliciumcarbid und Pyrokohlenstoff eingeschlossen bleibt. Nach Versagen der Barrieren in den Partikeln und dem Austritt in die Graphitmatrix wird angenommen, dass Radionuklide parallel mit der Graphitkorrosion freigesetzt werden /AKK 13/.

Die Ausfallwahrscheinlichkeit von TRISO-Partikeln ist in Abb 4.54 dargestellt /MCE 12/. Das Weibull-Modell des Versagens spröder Materialien wird verwendet, um die Ausfallwahrscheinlichkeit jeder Beschichtungsschicht zu bestimmen⁵⁸. Die Gesamtausfallwahrscheinlichkeiten von TRISO-Partikeln sowie die Beiträge von jedem der Partikeltypen sind in Abb 4.54 dargestellt. Die Partikel, bei denen die äußere Pyrokarbonschicht ausfällt, setzen die darunter liegenden Siliciumcarbid-Schichten den korrosiven Mitteln aus, wodurch sich deren Ausfallwahrscheinlichkeit erhöht. Die Ausfallwahrscheinlichkeit von Partikel nach 1 Mio. Jahren erreicht $6E-4$.

⁵⁸ Im Endlager nimmt die Spannung der Siliciumcarbid-Schicht durch den Anstieg des Partikelinnendruckes und der Korrosion zu, was zu einer Vorhersage der Wahrscheinlichkeit durch das Weibull-Modell führt, dass einige der Siliciumcarbid-Schichten versagen. Für die Berechnung der Weibull-Wahrscheinlichkeit wird in diesem Fall zunächst Kontakt der Partikel mit Luft und dann mit Wasser angenommen. Andere Szenarien sind in /MCE 12/ erläutert.

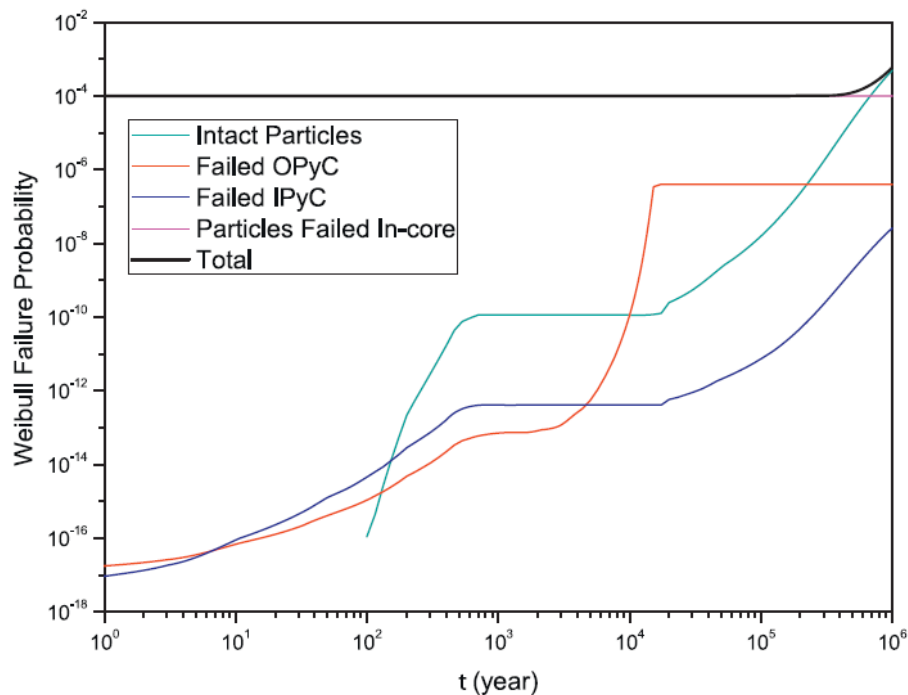


Abb 4.54 Ausfallwahrscheinlichkeit von TRISO-Partikeln und Beschichtungen unter Endlagerbedingungen /MCE 12/

(intakte Partikel, Versagen der äußeren Pyrokarbon-schicht (OPyC), Versagen der inneren Pyrokarbonschicht (IPyC), Partikel die während der Bestrahlung im Reaktor versagen und Gesamtanzahl der versagten Partikel)

Das Verhalten von AVR/THTR-Brennelementkugeln unter Endlagerbedingungen kann nur beschränkt experimentell untersucht werden, da in den Experimenten über wenige Jahre keine Effekte auf intakte Brennelemente festgestellt werden konnten. Basierend auf der Betrachtung der einzelnen Komponenten der Brennelemente und Schichten der darin enthaltene Brennelementpartikel, können isolierte Korrosionsmodelle Einblick auf das Verhalten bei der Endlagerung gewähren. Dies erfolgt durch Modellierungsansätze wie bei /PET 11/ und /MCE 12/. Allerdings wird wiederholt darauf hingewiesen, dass die hier vorgestellten Vorhersagen bestenfalls Hinweise auf das Verhalten der Partikelbeschichtungen geben. Dies ist hauptsächlich bedingt durch die Unsicherheiten über die Eigenschaften bestrahlter Beschichtungen und der Veränderung von Korrosionsraten /PET 11/, /MCE 12/, /FAC 06/.

In /MCE 12/ wurden verfügbare Daten zu mechanischen Eigenschaften von Beschichtungen, Endlagerbedingungen und verfügbaren Korrosionsraten dazu genutzt, das Verhalten von TRISO-Beschichtungen in bestrahlten Brennelementen auszuwerten.

Daten zu mechanischen Eigenschaften bestrahlter Beschichtungen, zur langfristigen Beschichtungskorrosion und Permeabilitätsdaten unter zu erwartenden Endlagerbedingungen für

verschiedene chemische und biologische Korrosions- und Auslaugemittel fehlen. Intakte TRISO- und TRIZO-Beschichtungen verhindern den Austritt der enthaltenen Radionuklide. Die errechneten Ausfallwahrscheinlichkeiten für TRISO-Beschichtungen (siehe Abb 4.54) können verwendet werden, um die Freisetzung von Radionukliden in die Endlagerumgebung vorherzusagen /MCE 12/.

Für die praktische Anwendung in Berechnungen für die Endlagerung wird von einer langfristigen Freisetzung von einem Bruchteil von $2E-9$ pro Tag für HEU-BISO und LEU-TRISO ausgegangen. Das entspricht einer vollständigen Auflösung nach 1,37 Mio. Jahren /KIE 13/.

Bewertung

Modelle für die einzelnen Schichten von Brennelement-Partikeln sowie probabilistische Modelle für Brennelementkugeln zeigen übereinstimmend eine stabile Beschichtung (SiC und PyC) die keine wesentliche Freisetzung von Radionukliden in den ersten 100.000 Jahren der Endlagerung erwarten lassen.

Zum Verhalten von AVR/THTR-Brennelementen im Endlager können folgende Punkte festgehalten werden:

- Die Freisetzung von Radionukliden ist hauptsächlich abhängig von der Anzahl der beschädigten Brennstoffpartikel.
- Typischerweise ist der Anteil der Radionuklide in der Graphitmatrix, die in kurzen Zeiträumen freigesetzt werden können, unerheblich im Vergleich zur Aktivität in den BISO- oder TRISO-Partikeln,
- Bei Korrosionsbetrachtungen dieser Beschichtungen ergeben für einen Durchbruch und einen Austritt von Radionukliden aus den Partikeln ca. 100.000 Jahre.
- Es existieren in erheblichem Umfang Wissenslücken zur Korrosion und zum Barriere-Ver-sagen der einzelnen Schichten der Brennstoffpartikel. Dies ist vor allem bei der Betrachtung von Korrosion unter dem Einfluss von radiolytischen Bedingungen der Fall.

Aufgrund der erheblichen Unsicherheiten in den Modellen und der großen Zeitspanne bis die Korrosion des eigentlichen Brennelements einsetzen kann, wird hier kein analytisches Modell vorgeschlagen. Die größte Relevanz für eine frühe Radionuklidfreisetzung hat die Anzahl der beschädigten Brennstoffpartikel in den Brennelementkugeln. Die getrennte Lagerung von beschädigten Brennelementkugeln ist ein effektiver Ansatz für die Kontrolle der Anzahl von beschädigten BISO-Partikeln (siehe Kapitel 3).

4.2.3.3 U₂Si₃-Al-Dispersionsbrennstoffe

Korrosion

Untersuchungen zum Korrosionsverhalten von aluminiumummantelten, intermetallischen Forschungsreaktorbrennstoffen (UAl_x-Al und U₂Si₃-Al) unter geologischen Tiefenlagerungsbedingungen werden in Deutschland seit den 1990er Jahren insbesondere am Forschungszentrum Jülich durchgeführt. Basierend auf Experimenten aus den 1950er Jahren in destilliertem Wasser und bei erhöhten Temperaturen wurde damals geschlussfolgert, dass sich die allgemeine Korrosion von Uranlegierungen mit hohem Aluminiumgehalt ähnlich zu der von reinem Aluminium verhält und dass siliziumhaltige Uranlegierungen etwas korrosionsbeständiger sind als reines metallisches Uran, insbesondere Legierungen, die mehr als 16 Atom-% Silizium enthalten /WAB 52/. Dies wurde in aktuellen Studien bestätigt /DEI 16/.

Statische Korrosionsexperimente mit unbestrahlten UAl_x-Al-Brennelementen aus dem FRJ-2-Reaktor in verschiedenen Medien (MgCl₂-Lösung, NaCl-Lösung und Granitwasser) zeigten, dass es in MgCl₂-Lösung innerhalb von 500 bis 600 Tagen zu einer vollständigen Korrosion der Brennelemente kam /MAZ 03b/. Die Korrosionsraten in einer NaCl-reichen Lösung und insbesondere im gering mineralisierten Granitwasser waren deutlich geringer ($80\text{E-}3 \text{ g m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ und $2,7\text{E-}3 \text{ g m}^{-2} \text{ d}^{-1}$). Eine Verteilungsanalyse des korrodierten Materials in MgCl₂-Solen zeigte, dass sich mehr als 90 % des aus den korrodierten Brennelementen freigesetzten Urans und Aluminiums in amorphen und kristallinen Sekundärphasen befand. In weiteren Experimenten wurde nachgewiesen, dass die vollständige Auflösung von UAl_x-Al-Brennstoffplatten in MgCl₂-Solen in etwa 100 Tagen und in etwa 370 Tagen in Ton- bzw. Granitwasser erfolgte. Korrosionsraten für die UAl_x-Al-Brennstoffe wurden auf von $2,7\text{E-}3 \text{ g m}^{-2}\text{d}^{-1}$ in Granitwasser und bis zu $10,8\text{E-}3 \text{ g m}^{-2}\text{d}^{-1}$ in Tonwasser in einer MgCl₂-reichen Sole berechnet. Der in Lösung gemessene Bestand der Matrixelemente Uran und Aluminium lag unter 5 %, und der überwiegende Teil (> 95 %) dieser Elemente wurde in den sekundären Korrosionsprodukten zurückgehalten /CUR 05/, /CUR 10/, /CUR 06/, /BRÜ 07/.

Zum Korrosionsverhalten von Uran-Silizium-Brennstoffen in wässriger Umgebung liegen nur sehr wenige Untersuchungen vor. Experimente am Forschungszentrum Jülich mit unbestrahlten U₃Si₂-Al-Brennelemente zeigten, dass sich das Korrosionsverhalten ähnlich zu UAl_x-Al-Brennelementen verhält. Unter identischen Bedingungen wurde eine vollständige Korrosion der Proben innerhalb eines Jahres beobachtet. Die höchsten Korrosionsraten wurden in einer MgCl₂-Lösung ($57,4\text{E-}3 \text{ g m}^{-2}\text{d}^{-1}$) beobachtet. Die Korrosionsraten in Ton- und Granitwasser waren etwa um einen Faktor von 2 bis 3 geringer als in der MgCl₂-Lösung. Die Matrixelemente Uran, Silizium und Aluminium wurden mit weniger als 5 % in Lösung nachgewiesen. Der

Großteil dieser Elemente wurde in den amorphen und kristallinen Phasen zurückgehalten, die während des Korrosionsprozesses gebildet wurden /BRÜ 07/, /CUR 10/, /CUR 06/, /CUR 05/.

Bei ähnlichen Experimenten mit bestrahlten U_3Si_2 -Al-Brennstoffen aus dem FRG-1-Reaktor in Geesthacht konnte ebenso festgestellt werden, dass eine vollständige Korrosion im experimentellen Zeitrahmen von 3,5 Jahren stattfand. Je nach Lösungszusammensetzung bildeten sich verschiedene kristalline und amorphe Korrosionsprodukte, die die Matrixelemente Uran, Silizium und Aluminium sowie viele Radionuklide (z. B. Am, Pu) effektiv zurückhielten, während die Radionuklide wie Cs und Sr vollständig in Lösung freigesetzt wurden /CUR 11/, /CUR 10/, /CUR 15/.

Die Korrosion von Brennelementen auf Aluminiumbasis führt zur Bildung von amorphen und kristallinen Sekundärphasen, die verschiedene Radionuklide sowie die freigesetzten Brennstoffmatrixelemente z. B. durch Sorption, Umfällung oder strukturellem Einbau in neu gebildete Sekundärphasen zurückhalten können. Die Menge und Art der Korrosionsprodukte hängt stark von den Umgebungsbedingungen ab, denen die bestrahlten Brennelemente ausgesetzt sind, sowie von der Art der Brennelemente selbst.

In Korrosionsexperimenten mit bestrahlten UAl_x -Al-Brennelementen in Salzlösung wurde die Bildung teilweise gelartiger Sekundärphasen unter oxidischen Bedingungen beobachtet /FAC 11/, /BRÜ 01/. In statischen Korrosionstests mit unbestrahlten UAl_x -Al-Brennelementproben unter anoxischen Bedingungen in MgCl_2 -reicher Lösung, traten kristalline Sekundärphasen neben einem amorphen Anteil auf /MAZ 03c/. Die anoxische Korrosion unbestrahlter UAl_x -Al-Brennstoffe in NaCl-reichen Lösungen führte zur Bildung von vollständig amorphen Korrosionsprodukten /MAZ 03a/. Mittels Rasterelektronenmikroskopie und Röntgendiffraktion konnten die gebildeten Sekundärphasen bei der anoxischen Korrosion von (unbestrahlten) FR-Brennelementen untersucht werden /CUR 10/, /KLI 10/, /KLI 11/, /NEU 12/. Es wird davon ausgegangen, dass das wieder ausgefällte Uran, das quantitativ in den Korrosionsprodukten zurückgehalten wurde, in den amorphen Phasen möglicherweise als $\text{U}(\text{OH})_4$ enthalten ist /KLI 11/, /KLI 10/, /NEU 12/.

Modell

Untersuchungen an MTR-Brennstoffen erfolgten seit 1990 in erheblichem Umfang vom Helmholtz-Zentrum Jülich. Die betrachteten Vorgänge zur Freisetzung von Radionukliden aus MTR-Brennelementen sind Korrosion von reinem Aluminium und MTR-Brennelementen sowie die

Remobilisierung aus der sekundären Phase (/KIE 13/ und darin zitierte Literatur). Zusammenfassend können folgende Schlüsse gezogen werden /KIE 13/, /FAC 00/:

- In MgCl_2 -reichen Lösungen beträgt die Zeit für eine vollständige Korrosion weniger als 20 Tage und in NaCl -Lösungen wurde eine Korrosionsrate von 10 Gew.-% pro Jahr gemessen.
- In Bezug auf die Endlagerungszeiträume kann von einer sehr schnellen Auflösung der Aluminium-Matrix ausgegangen werden. Dies wird noch weiter durch die Eisenkorrosionsprodukte beeinflusst, welche die Korrosion beschleunigen.
- Eine zweite Al-Phase wird von den Korrosionsprodukten geformt, welche die Zerfallsprodukte und vor allem Actinoide immobilisieren kann. Dieser Effekt ist in Lösungen mit hohem Chloridgehalt besonders ausgeprägt.

Daraus lässt sich schließen, dass es sinnvoll ist, eine sofortige Korrosion von MTR-Brennelementen anzunehmen, sobald ein Lösungsmedium verfügbar ist. Das bedeutet jedoch nicht zwangsläufig, dass alle Radionuklide in Lösung verfügbar sind. Wie in Kapitel 4.2.3 ausgeführt, werden unter anoxischen Bedingungen einige Radionuklide praktisch vollständig in den Korrosionsprodukten zurückgehalten. Es wird angenommen, dass Uran unter den zu erwartenden niedrigen Wasseraustauschraten in einem korrodierten Abfallbehälter in den Korrosionsprodukten als amorphes $\text{U}(\text{OH})_4$ (oder $\text{UO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$) quantitativ zurückgehalten wird.

Bewertung

Zur Korrosion von U_2Si_3 -Al-Brennelementen wurde an dieser Stelle kein analytisches Modell erstellt. Derzeit laufen einige Studien (z. B. VESPA I und II), die das Verhalten langlebiger Radionuklide im Nahfeld eines Endlagers, aber auch die Rückhaltung von Radionukliden in Al-Verbindungen erforschen. Auf Grundlage der Daten könnte zukünftig ein robusteres Modell entwickelt werden.

Für die Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben im Jahr 2013 wurde davon ausgegangen, dass die Aluminiummatrix der BER II- und FRM II-Abfälle innerhalb von 20 Tagen bei Kontakt mit MgCl_2 -reichen Lösungen vollständig korrodiert /LAR 13/, /CUR 15/, /KIE 13/. Wegen der Annahme, dass mit der Korrosion der Aluminiummatrix die darin enthaltenen Radionuklide ebenfalls freigesetzt werden, wurde für die BER II- und FRM II-Abfälle eine Freisetzung innerhalb eines Jahres angenommen /LAR 13/. Entsprechend den oben beschriebenen Erkenntnissen ist nach dem Versagen der Barrieren mit einem teilweisen Rückhalt der

Radionuklide durch Sekundärphasen zu rechnen. Ein robustes Modell, mit dem man die Freisetzung von Radionukliden langfristig modellieren kann, ist aktuell nicht vorhanden.

4.2.3.4 UZrH_x-Brennstoffe

Korrosion

Die Struktur von UZrH_x besteht aus kleinen µm-großen Uraneinschlüssen in einer Zirkoniumhydridmatrix. Folglich muss bei der Korrosion von UZrH_x in Wasser das Korrosionsverhalten von Zirkoniumhydrid und Uran-Einschlüssen gesondert betrachtet werden.

Zirkoniumhydrid verhält sich hinsichtlich der Korrosion wie Zirkoniummetall. Zirkonium ist ein sehr reaktives Metall bei Kontakt mit Wasser. Es verbindet sich jedoch sofort mit dem freigesetzten Sauerstoff zu Zirkoniumdioxid, welches einen festen, isolierenden Film bildet, der der Oberfläche bei pH-Werten von 4 bis 12,5 Korrosionsschutz verleiht. Zirkoniumhydrid, das der Luft ausgesetzt ist, bildet denselben Schutzfilm /GUE 96/.

Die zufällig und fein verteilten Uraneinschlüsse auf der Brennstoffoberfläche lösen sich in Wasser mit einem pH-Wert von acht oder niedriger als dreiwertige Uranionen, bis das gesamte metallische Uran entfernt ist /POU 74/. Dies gilt jedoch nur für die Oberflächeneinschlüsse von Uran im Brennstoff. Die Einschlüsse unter der Oberfläche werden durch die darüber liegende Zirkoniumhydridmatrix vor dem Kontakt mit Wasser geschützt /GUE 96/.

Bewertung

Ein robustes Modell, mit dem man die Freisetzung von Radionukliden modellieren kann, ist aktuell nicht vorhanden. Auch bei einer instantanen Freisetzung der Radionuklide unter Anwesenheit vom Lösungsmedium (vgl. VSG-Bericht) ist, nach den zuvor beschriebenen Prozessen, auch nach dem Versagen der Barrieren, mit einem teilweisen Rückhalt der Radionuklide zu rechnen.

4.3 Zusammenfassung Endlageranalyse

Bezüglich der Recherche, Auswertung und Bewertung zu Korrosion und Korrosionsmodellen wurden HAW-Glas, UO₂/MOX-, HTR/THTR-, U₂Si₃- und UZrH_x-Brennstoff betrachtet. Diese radioaktiven Abfälle wurden bereits im Kapitel 3 , Zwischenlageranalyse, betrachtet und umfasst Brennstoff-Inventare der kommerziellen Reaktoren (LWR, DWR und WWER), der Forschungs- und Versuchsreaktoren (RFR, AVR/THTR, KNK II, FRM II, FR MZ, OH) und die

verglasten radioaktiven Abfälle aus der Wiederaufarbeitung. Für die Bestimmung der Zusammensetzung, insbesondere für die in den jeweiligen Inventartypen enthaltenen Radionuklide zu den betrachteten endlagerrelevanten Zeitpunkten, wurden zerfallskorrigierte Inventare auf Basis der Vorläufigen Sicherheitsanalyse Gorleben /LAR 13/ verwendet.

Als Rahmenbedingungen für die Endlagerung wurden das ehemalige deutsche Konzept für Salzgestein, das Schweizer Konzept für Tongestein und das schwedische Konzept für Kristallgestein gewählt. Als relevante Einflussfaktoren zur Radionuklidmobilisierung wurden insbesondere der Temperaturverlauf, die Fluid-Verfügbarkeit und die Aktivität und davon abhängige Größen herangezogen, und es wurde eine Einordnung dieser Faktoren bzgl. Zwischen- und Endlagerung vorgenommen. Die Betrachtung der Radionuklidmobilisierung bezieht sich auf das Nahfeld und wird für die o. g. radioaktiven Abfälle beschrieben und durch vereinfachte Modelle der Korrosion der jeweiligen Abfallmatrix dargestellt.

Die Behälter, als Teil des Endlagerkonzepts, schließen den radioaktiven Abfall ein und dienen als Barriere gegen einen Zutritt von Fluid aus dem Wirtsgestein. Die Korrosionseigenschaften von eisen- und kupferhaltigen Werkstoffen, welche als Behältermaterialien im schwedischen bzw. im schweizerischen Endlagerkonzept vorgesehen sind bzw. im deutschen Endlagerkonzept für Steinsalz vorgesehen waren, wurden im Zuge einer Literaturrecherche zusammengetragen. Die Korrosionsprozesse lassen sich durch Parameter, wie der Temperatur, dem pH-Wert und durch Strahlenprozesse beeinflussen. Darüber hinaus sind die Korrosionsraten abhängig vom Wirtsgestein und dabei insbesondere von der Zusammensetzung des Fluids und der Anwesenheit von Mikroorganismen. Bei den eisenhaltigen Werkstoffen konnte ein erheblicher Unterschied in den Korrosionsraten von In-situ und Laborversuchen festgestellt werden. Hier spielt der Zutritt bzw. die Menge an Fluid, welche mit der metallischen Oberfläche in Kontakt kommt, eine signifikante Rolle.

Die ursprünglich im deutschen Endlagerkonzept für die Streckenlagerung in Steinsalz vorgesehenen Materialien der POLLUX®-Endlagerbehälter weisen relativ hohe Korrosionsraten auf. Sie korrodieren jedoch gleichmäßig und weisen eine Resistenz gegenüber Lokalkorrosion. Dadurch lässt sich die Behälterlebensdauer abschätzen. Auf Grundlage der in Kapitel 4.2.1 aufgeführten experimentellen Daten, ist zu erwarten, dass eine strukturelle Integrität und Handhabbarkeit der Behälter für mehrere Jahrhunderte bis Jahrtausende gegeben ist, während die in-situ-Daten auf eine deutlich längere Lebensdauer der Behälter hinweisen. Auch bei den Korrosionsraten der Materialien, welche für die Behälterkonzepte KBS-3 in Schweden/Finnland (Kupfer) bzw. für das schweizerische Nagra-Referenzkonzept (Kohlenstoffstahl) vorgesehen sind, ist damit zu rechnen, dass die in den Endlagerkonzepten spezifischen An-

forderungen an die Behälterlebensdauern erfüllt sind. Es sei jedoch erwähnt, dass sich genaue Aussagen bzgl. der absoluten Korrosionsraten anhand der Daten nicht bestimmen lassen.

Die Verglasung von flüssigen hochradioaktiven Abfällen in Form von Borosilikatgläsern führt zu einem wasser- und chemikalienbeständigen Abfallprodukt. Dabei wird die Glasstruktur davon kaum beeinflusst, ob radioaktive Isotope in oxidischer Form eingebunden sind. Der größte Beitrag zur Gesamtaktivität über die betrachtete Zeitspanne wird von Spalt- und Aktivierungsprodukten geleistet. Die Korrosion der Glasmatrix und damit die Freisetzung der Radionuklide im Modell hängt hauptsächlich von der Temperatur sowie der benetzbaren Oberfläche der Glasmatrix ab. Einflüsse aus der Zwischenlagerung ergeben sich indirekt auch für die Temperatur. Die Oberfläche wird hauptsächlich durch den Herstellungsprozess definiert.

Die Zusammensetzung von bestrahlten UO_2 - und MOX-BE wurde vereinfacht als $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ mit weiteren vierwertigen Aktinoidoxiden angenommen. Der größte Beitrag zur Gesamtaktivität wird anfangs von Spalt- und Aktivierungsprodukten geleistet und nach 100.000 Jahren von Zerfallsprodukten. Die Korrosionsprozesse wurden an UO_2 betrachtet.

Das Modell zur Korrosion der Brennstoffmatrix hängt hauptsächlich von der strahlenchemischen Ausbeute und der Alpha-Leistung sowie der benetzbaren Oberfläche des Brennstoffes ab. Einflüsse aus der Zwischenlagerung ergeben sich nur indirekt für die Alpha-Leistung. Die Alpha-Leistung sowie auch die Oberfläche sind hauptsächlich durch den Brennstofftyp und den Abbrand und somit durch die Herstellung und den Betrieb bestimmt.

Die Oberfläche des Brennstoffes kann aufgrund eines Hüllrohrversagens und einer instantanen Druckentlastung während der Zwischenlagerung erhöht werden. Es ist derzeit jedoch nicht davon auszugehen, dass ein systematisches Hüllrohrversagen während der (verlängerten) Zwischenlagerung stattfindet und damit ein signifikanter Einfluss besteht.

Die AVR/THTR-Brennelementkugeln bestehen aus einem Brennstoffpartikel, mehreren Schichten Siliciumcarbid (SiC) und Pyrokohlenstoff (PyC) und sind in Graphit gebettet. Sie werden in intaktem Zustand in Trockenlagerkannen gelagert, und es ist davon auszugehen, dass sie für die Endlagerung in diesem Zustand verbleiben. Der größte Beitrag zur Gesamtaktivität ist stark abhängig vom Typ der Brennelementkugel und dem Reaktor, in dem sie eingesetzt wurden, doch nach 10.000 bis 100.000 Jahren sind Zerfallsprodukte in allen betrachteten Fällen dominierend. Trotz der erheblichen Wissenslücken zu Korrosion und Barriereversagen der einzelnen Schichten unter radiolytischen Bedingungen, stimmen die existierenden Modelle darin überein, dass die Beschichtung (SiC und PyC) sich als so stabil herausgestellt

hat, dass keine wesentliche Freisetzung von Radionukliden in den ersten 100.000 Jahren der Endlagerung erwarten. Daher wurde kein analytisches Modell für AVR/THTR-Brennelementkugeln vorgeschlagen.

Für die weiteren Forschungs- und Versuchsreaktorbrennstoffe gelten ähnliche Überlegungen und Betrachtungen wie für die LWR-Brennstoffe. Aufgrund der höheren Anreicherung und dem häufigeren Lastwechsel sowie den höheren Abbränden der Forschungsreaktorbrennstoffe im Vergleich zu den LWR-Brennstoffen ist die Ausgangslage als ungünstiger anzunehmen. Aufgrund fehlender Datengrundlagen zu repräsentativen Bestrahlungshistorien können hierzu keine konkreten Modelle erstellt werden. Eine Korrosion der Forschungs- und Versuchsreaktorbrennstoffe und damit eine Freisetzung der Radionuklide beginnt erst, wie bei den anderen Inventartypen, bei Kontakt mit einem Fluid nach dem Versagen der Barrieren.

Die Korrosionsmodelle nehmen Wasser im Endlager im Überschuss und als unbegrenzt zur Verfügung stehendes Edukt an. Im Umfeld eines Endlagers ist der Zufluss von Fluid jedoch der geschwindigkeitsbestimmende Faktor der Korrosion der Barrieren und Inventare. Der Fluidzufluss hat damit einen signifikanten Einfluss auf alle untersuchten Parameter (Oberfläche, Aktivität etc.) und demzufolge einen direkten Einfluss auf die über die Modelle entwickelten Korrosionsraten. Zur besseren Einordnung der Geschwindigkeit der Prozesse und Ergebnisse der Berechnungen (Glas- und UO_2 -Korrosion) wurde im Bericht mit Hilfe der wirtsgesteinsspezifischen hydrogeologischen Parameter die Wasserverfügbarkeit abgeschätzt. Anhand der vorliegenden hydrogeologischen Daten ist der Zufluss von Fluid als gering einzuschätzen (vgl. Kapitel 4.1.3), so dass das Modell die Korrosions- und Freisetzungsraten um Größenordnungen überschätzt.

In Folge einer verlängerten Zwischenlagerung kommt würde es neben einer Abnahme der Aktivität auch zu einer Verringerung der Wärmeleistung der abgebrannten Brennelemente bzw. verglasten Abfälle. Aus der verminderten Wärmeleistung ergibt sich bspw. eine Verringerung der Oberflächentemperatur der Behältermaterialien und der radioaktiven Abfälle bei gleichem Endlagerkonzept. Die Abnahme der Aktivität bzw. Verringerung der Wärmeleistung verringern die Korrosionsraten der Endlagerbehältermaterialien sowie der radioaktiven Abfälle. Bezüglich einer Übertragung von Behälterlebensdauern in unterschiedlichen Wirtsgesteinen können nur hinlänglich genaue Aussagen getroffen werden. Ein Einfluss auf die Temperatur und die Aktivität kann durch die Beladung der Endlagerbehälter genommen werden.

Absolute Werte bzgl. der Korrosionsraten hängen stark von den Parametern des Wirtsgesteins ab und müssen in jedem Fall standortabhängig experimentell und theoretisch bestimmt wer-

den. Die standortspezifischen Daten sind u. a. vom Endlagerkonzept (gibt u. a. die Temperatur vor), pH-Wert, Wirtsgestein, von der chemischen Zusammensetzung und der Menge des vorhandenen Fluids sowie vom pH-Wert abhängig. Die Parameter pH-Wert bzw. die Zusammensetzung des Fluids sind durch das Endlagerkonzept und das Wirtsgestein geprägt und beeinflussen somit indirekt die im Kapitel 4 (AP 3) betrachteten Auswirkungen einer veränderten strahlenchemischen Ausbeute. Aus der Literaturrecherche konnte geschlussfolgert werden, dass der Zustand der Inventare im Hinblick auf die vorangegangene Zwischenlagerung, im Sinne dieses Vorhabens, wenig Auswirkung auf die Prozesse hat.

5 Rückkopplung der Ergebnisse und Ableitung von Handlungsoptionen

Bei der *Zwischenlageranalyse* wurden mögliche temperatur-, spannungs- und strahlungsinduzierte Alterungseffekte der Materialien und des Inventars benannt und bewertet sowie vorhandene Wissenslücken aufgeführt (siehe Kapitel 2.2 und Kapitel 3.3). Es wurde ein Zwischenlagerzeitraum von insgesamt 100 Jahren angenommen. Nach derzeitigem Kenntnisstand gibt es keine Hinweise für ein systematisches Versagen der Hüllrohre, der Umschließungen und der Barrieren. Dennoch wurden bei der *Zwischenlageranalyse* hypothetische Szenarien, bei denen aufgrund von Alterungseffekten die Integrität der Umschließung beeinträchtigt werden könnte, beschrieben und diskutiert.

Im Rahmen der *Endlageranalyse* wurden Prozesse, die für die Radionuklidmobilisierung im Endlager relevant sind, benannt und dargestellt (vgl. Kapitel 4.2). Die Priorität lag auf der Identifizierung von Abhängigkeiten aus der Zwischenlagerung auf die Radionuklidfreisetzung im Endlager. Es wurden keine direkten Abhängigkeiten identifiziert.

In der kombinierten Betrachtung der o. g. Ergebnisse werden auf Grundlage der hypothetischen Szenarien aus der *Zwischenlageranalyse* (vgl. Kapitel 3.3) mögliche Handlungsoptionen⁵⁹ bzw. Maßnahmen, die für die Zeit der verlängerten Zwischenlagerung und der Konditionierung der hochradioaktiven Abfälle zur Einlagerung in ein Endlager relevant sein können, in den folgenden Kapiteln beschrieben und diskutiert. Die Handlungsoptionen bzw. Maßnahmen aufgrund möglicher Alterungseffekte sind für alle Inventare tabellarisch zusammengefasst (siehe Kapitel 5.6 und Anhang A.3).

⁵⁹ Bei den hier dargelegten Überlegungen zu möglichen Maßnahmen und Optionen handelt es sich um hypothetische Betrachtungen, da derzeit weder der Standort für ein Endlager in Deutschland, das Wirtsgestein sowie ein Endlagerkonzept noch die Annahmebedingungen festgelegt sind. Es wird daher davon ausgegangen, dass eine Konditionierungsanlage unter Anwendung chemischer, physikalischer oder mechanischer Verfahren mit allen möglichen Zuständen der angelieferten Inventare umgehen muss, um eine endlagerechte Konditionierung der Inventare durchzuführen. Die Referenzfälle für die Endlagerung sind in dem Vorhaben an die Konzepte für Kristallin in Schweden, für Ton in der Schweiz und für Salz das ehemalige Endlagerkonzept in Deutschland angelehnt worden. Im Nachfolgenden sind keine Stör-, Unfall- oder abweichenden Szenarien für den jeweils vorgegebenen Referenzfall und die daraus folgenden Handlungsoptionen betrachtet worden. Bei einer Konditionierung und einer damit einhergehenden Umladung der Inventare sind Handhabungsvorgänge zu unterstellen, aus denen sich höhere Belastungen ergeben, als wenn die Inventare zwischengelagert und nicht bewegt werden. Gleiches gilt für den Transport.

Aufbauend auf dieser tabellarischen Darstellung wurde für alle Inventare eine schematische Darstellung erstellt in welcher

- die Ursachen für mögliche Alterungseffekte,
- die sich daraus ergebenden Konsequenzen,
- mögliche Maßnahmen während der Zwischenlagerung und
- mögliche Maßnahmen der Konditionierung sowie
- die Korrosion des Behälters, der Umschließung und des Inventars als Ursache einer Radionuklidmobilisierung im Endlager

dargestellt sind.

Mögliche Abhängigkeiten und Wechselwirkungen sind in der schematischen Darstellung durch Pfeile symbolisiert.

In Abb. 5.1 ist exemplarisch der allgemeine Aufbau skizziert. Die schematische Darstellung für die verschiedenen Inventare findet sich im Anhang A.3 bis A.8. Die logische Abfolge der Abfallentsorgung beginnt mit der Zwischenlagerung, gefolgt von der Konditionierung und Endlagerung.

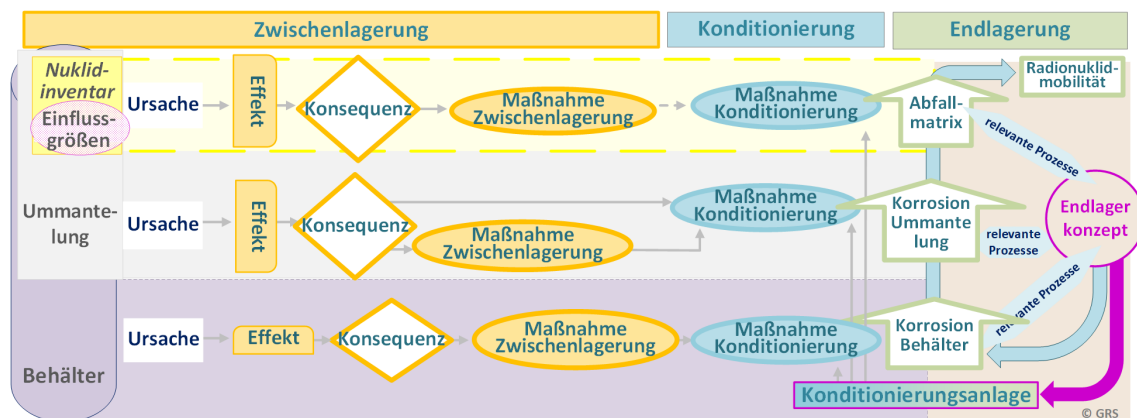


Abb. 5.1 Schematische Darstellung der Zusammenhänge zur Ableitung der Handlungsoptionen bzw. Maßnahmen

Die Inventare mit Umschließung und Behälter (TLB) sind auf der linken Seite gezeigt. Daran schließen sich – von links nach rechts – die Ursachen (z. B. Strahlungseinflüsse), deren Wirkungen (z. B. Alterungseffekte) und die daraus folgenden Konsequenz

an. Darauf folgen mögliche Maßnahmen für die jeweiligen Materialien bzw. das Inventar in der Zwischenlagerung bzw. Konditionierung.

Maßnahmen, die den TLB (siehe Anhang A.3 bis A.8) betreffen, dienen der Sicherheit und der Handhabbarkeit während der Zwischenlagerung. Eine detaillierte Beschreibung und Bewertung der Alterungseffekte (Ursache → Effekt → Konsequenz) und der möglichen Handlungsoptionen bzw. Maßnahmen für die Inventare finden sich im Kapitel 3.3. Ebenso sind dort jeweils die derzeit vorhandenen Wissenslücken adressiert.

Je nach Endlagerkonzept und entsprechend vorgesehenem Endlagerbehälter, ist eine ggf. notwendige Umverpackung des Inventars vom TLB in einen Endlagerbehälter Teil der Konditionierung. Im Rahmen der *Endlageranalyse* wurden drei Endlagerkonzepte als Referenz und Bewertungsgrundlage für die weiteren Analysen definiert (vgl. Kapitel 2.4, Kapitel 4.1 und Kapitel 4.2).

Die Einflussfaktoren für die Radionuklidmobilisierung im Endlager sind u. a. die geochemischen Bedingungen, die Temperatur sowie die Verfügbarkeit des Fluids. Unter der Annahme einer unbegrenzten Verfügbarkeit des Fluids, ist in den schematischen Darstellungen (siehe Abb. 5.1 und Anhang A.3 bis A.8) rechts der Weg des Fluids (in blau) vom Wirtsgestein (Endlagerkonzept) zur äußersten Barriere (bspw. Endlagerbehälter) bis zur innersten Barriere (bspw. Umschließungen) und dem Inventar (bspw. Abfallmatrix) dargestellt.

Die Zeitpunkte für Handlungsoptionen werden nach „Zwischenlagerung“, d. h. vor Ende einer geplanten, verlängerten Zwischenlagerung sowie „Konditionierung“, d. h. für eine Einlagerung in das Endlager, unterschieden.

Nachfolgend werden mögliche Handlungsoptionen bzw. Maßnahmen sowohl während der Zwischenlagerung als auch bei der Konditionierung benannt. Diese ergeben sich aus der kombinierten Betrachtung der Effekte und deren Auswirkungen aus der Zwischenlageranalyse (siehe Kapitel 3) und der Endlageranalyse (siehe Kapitel 4) für die unterschiedlichen Inventartypen (verglaste radioaktive Abfälle, LWR-, WWER-, THTR/AVR-, und FR-Brennelemente).

Die Handlungsoptionen werden hinsichtlich ihrer Auswirkungen auf

- die Mobilität von Radionukliden im Endlager,

- dem Strahlenschutz,
- die Handhabbarkeit der Inventare und
- die Sicherheit der Zwischenlagerung

bewertet. Die Bewertung der Handlungsoptionen erfolgt im Vergleich zu dem vorgegebenen Referenzfall im Zwischenlager ohne Maßnahmen – d. h. die Inventartypen stehen ohne Effektauswirkungen im Zwischenlager, werden nach der verlängerten Zwischenlagerung abtransportiert und in der Konditionierungsanlage in einer heißen Handhabungszelle in einen Endlagerbehälter umgeladen – und den drei Endlagerkonzepten als Referenz und ebenfalls ohne zusätzliche Maßnahmen.

Ein direkter Einfluss einer Handlungsoption (bzw. Maßnahme) von der Zwischenlagerung auf die Radionuklidmobilisierung im Endlager wurde nur für die verglasten radioaktiven Abfälle identifiziert.

5.1 Verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung

Tab. 5.1 listet mögliche Optionen von Maßnahmen für die verglasten radioaktiven Abfälle sowohl während der Zwischenlagerung als auch bei der Konditionierung auf.

Tab. 5.1 Mögliche Maßnahmen für die verglasten radioaktiven Abfälle

Zeitpunkt	Maßnahme
Zwischenlagerung	I. Thermische Behandlung II. Früherer Abtransport
Konditionierung	III. Frühere Anlieferung/Konditionierung IV. Umverpackung/Overpack V. Thermische Behandlung

5.1.1 Maßnahmen während der Zwischenlagerung

I. Thermische Behandlung

Ziel dieser Maßnahme ist es, durch thermisches Aufheizen Glasdefekte und Schäden der Glasmatrix auszuheilen, um die effektive Oberfläche der Glasmatrix zu reduzieren. Dazu muss die Glasmatrix der Kokillen mindestens die Glastransformationstemperatur von rund 502 °C erreichen.

Radionuklidmobilität: Die hierdurch mögliche Verringerung der effektiven Oberfläche der Glasmatrix führt zu einer verringerten Korrosionsgeschwindigkeit beim Kontakt des Glases mit einem Lösungsmedium im Endlager (siehe Kapitel 4.2.2). Eine entsprechend verringerte Korrosionsgeschwindigkeit der Glasmatrix bedingt eine geringere Freisetzungsrates der Radionuklide und damit über den Betrachtungszeitraum eine geringere Radionuklidmobilität.

Strahlenschutz: Eine thermische Behandlung der verglasten radioaktiven Abfälle erfordert zusätzliche Personenhandlungen und damit verbundene Dosisleistungen. Das Ausmaß der Strahlenbelastung ist abhängig von dem Konzept und der Umsetzung dieser Maßnahme.

Handhabbarkeit: Die Maßnahme hat keine Auswirkungen auf die Handhabbarkeit der verglasten radioaktiven Abfälle im Hinblick auf den Transport oder der Konditionierung.

Zwischenlagerung: Für eine thermische Behandlung sind zusätzliche technische Vorkehrungen während der Zwischenlagerung notwendig. Die Sicherheit der Zwischenlagerung bleibt mit dem Referenzfall vergleichbar.

II. Früherer Abtransport

Für diese Maßnahme ist eine bessere Kenntnis des zeitlichen Ablaufes der zu Grunde liegenden physikalischen Prozesse notwendig, da sich hierdurch ggf. der Zeitpunkt für einen möglichen Handlungsbedarf ableiten lässt. Bei dieser Maßnahme wird der Transport zur Konditionierungseinrichtung initiiert, bevor mögliche degradierende Effekte zu einem Integritätsverlust der Umschließung führen können. Dies bedeutet gleichermaßen, dass der Abtransport vor dem anvisierten Ende der verlängerten Zwischenlagerung stattfindet, als auch, dass die Konditionierungsanlage u. U. früher zur Verfügung stehen muss als bei einer planmäßigen verlängerten Zwischenlagerung. Der frühere Abtransport beinhaltet weitere Maßnahmen in der Konditionierungseinrichtung (siehe Maßnahme III).

Radionuklidmobilität: Es ergibt sich keine direkte Auswirkung aus dem früheren Abtransport auf die Radionuklidmobilität im Endlager. Die Korrosionsrate sowie die Radionuklidmobilität im Endlager von verglasten radioaktiven Abfällen können in diesem Fall von den nachgelagerten Konditionierungsmethoden in der Konditionierungsanlage abhängig sein wie z. B. durch eine thermische Behandlung.

Strahlenschutz: Bedingt durch die Halbwertszeit der Radionuklide in den verglasten radioaktiven Abfällen kann die Aktivität beim früheren bzw. vorzeitigen Abtransport an die Konditionierungsanlage im Vergleich zum Referenzfall um einen Faktor von bis zu drei erhöht sein (siehe Kapitel 4.1.4). Dadurch ist die Ortsdosisleistung bei der Handhabung und dem Transport entsprechend höher als beim Referenzfall.

Handhabbarkeit: Aufgrund des Abtransportes bevor mögliche degradierenden Effekte zu einem Integritätsverlust der Umschließung führen können, bleibt die Handhabbarkeit der verglasten radioaktiven Abfälle im Vergleich zum Referenzfall unvermindert erhalten.

Zwischenlagerung: Der frühere Abtransport des Inventars an die Konditionierungsanlage führt dazu, dass während Zwischenlagerzeit keine Abweichungen zum Referenzfall bestehen.

5.1.2 Maßnahmen bei der Konditionierung

III. Frühere Anlieferung/Konditionierung

Die Maßnahme ist eine direkte Konsequenz aus der Zwischenlagerungsmaßnahme „früherer Abtransport“ (vor Auftreten eines möglichen Integrationsverlustes der Kokille). Die Grundannahme besteht darin, dass die Kokillen früher in Endlagerbehälter umgeladen (konditioniert) und in ein Eingangs-/Pufferlager verbracht werden. Eine mögliche Degradation der Kokille könnte dann im Endlagerbehälter eintreten. Als Konsequenz der Maßnahme der früheren Anlieferung in der Konditionierungsanlage würde der beladene Endlagerbehälter bei noch nicht bereitstehendem Endlager deutlich länger als vorgesehen im Puffer-/Eingangslager des Endlagers verweilen, was im Prinzip einer weiteren Zwischenlagerung gleichkäme. Für diesen Fall müsste der Endlagerbehälter für die daraus resultierende verlängerte Puffer-/Zwischenlagerzeit entsprechend (zusätzlich) qualifiziert werden.

Radionuklidmobilität: Die frühere Anlieferung hat keine direkte Auswirkung auf die Radionuklidmobilität. Der möglicherweise eintretende Integritätsverlust der Edelstahlkokille im Endlagerbehälter während der sich anschließenden (verlängerten) Pufferlagerung führt zu einem potenziell früheren Kontakt der Glasmatrix mit dem Lösungsmedium im Endlager und damit einer früher einsetzenden Radionuklidmobilisierung im Vergleich zum Referenzfall.

Strahlenschutz: Bedingt durch die Halbwertszeit der Radionuklide in den verglasten radioaktiven Abfällen ist die Aktivität bei der früheren Anlieferung an die Konditionierungsanlage im Vergleich zum Referenzfall erhöht (siehe Maßnahme II). Dadurch ist auch die Ortsdosisleistung in der Konditionierungsanlage im Vergleich zum Referenzfall höher.

Handhabbarkeit: Aufgrund der Anlieferung bevor mögliche degradierende Effekte zu einem Integritätsverlust der Edelstahlkokille führen, bleibt die Handhabbarkeit im Vergleich mit dem Referenzfall unvermindert erhalten.

IV. Overpack

Ziel der Maßnahme Einbringen der Kokillen in ein Overpack ist es, einem unterstellten Integritätsverlust der Edelstahlkanne entgegenzuwirken (siehe Kapitel 3.1.4) bzw. eine dichte Umschließung für das verglaste radioaktive Inventar (wieder)herzustellen.

Radionuklidmobilität: Das Korrosionsverhalten der Glasmatrix selbst im Endlager wird hierdurch nicht direkt beeinflusst. Durch die Umverpackung in ein Overpack wird jedoch eine zusätzliche Barriere hergestellt, welche im Endlager den möglichen Zeitpunkt des Kontakts der Glasmatrix im Endlagerbehälter mit einem Lösungsmedium verzögert und somit den Beginn der Radionuklidmobilisierung zeitlich nach hinten verschieben kann (siehe Kapitel 4.2.1.1).

Strahlenschutz: Durch das Einbringen in ein Overpack wird eine – im Vergleich zum Referenzfall – längere Handhabungszeit in der Konditionierungsanlage benötigt, und somit ergibt sich eine potenziell höhere Dosisleistung für die Beschäftigten.

Handhabbarkeit: Durch die Maßnahme bleibt die Handhabbarkeit der verglasten radioaktiven Abfälle erhalten bzw. wird wiederhergestellt.

V. Thermische Behandlung

Ziel dieser Maßnahme ist es, durch thermisches Aufheizen Glasdefekte und Schäden der Glasmatrix auszuheilen, um die effektive Oberfläche der Glasmatrix zu reduzieren. Dazu muss die Glasmatrix der Kokillen mindestens die Glastransformationstemperatur von rund 502 °C erreichen (siehe Kapitel 3.3.5).

Radionuklidmobilität: Die durch diese Maßnahme mögliche Verringerung der effektiven Oberfläche der Glasmatrix führt zu einer verringerten Korrosionsgeschwindigkeit beim Kontakt der Glasmatrix mit einem Lösungsmedium (siehe Kapitel 4.2.2). Eine entsprechend verringerte Korrosionsrate der Glasmatrix bedingt eine verringerte Freisetzung der Radionuklide und damit über die Zeit der Endlagerung eine verringerte Radionuklidmobilität.

Strahlenschutz: Eine thermische Behandlung der verglasten radioaktiven Abfälle erfordert Personenhandlungen und damit verbundene zusätzliche Expositionen. Die Strahlenbelastung ist abhängig vom Konzept der Konditionierungsanlage und dessen Umsetzung.

Handhabbarkeit: Die Maßnahme hat keine Auswirkungen auf die Handhabbarkeit der verglasten radioaktiven Abfälle, d. h. der Edelstahlkokille.

5.2 LWR-Brennelemente

In Tab. 5.2 sind mögliche Optionen von Maßnahmen während der Zwischenlagerung und der Konditionierung der Brennelemente aus Leichtwasserreaktoren gelistet.

Tab. 5.2 Mögliche Maßnahmen für die Brennelemente aus Leichtwasserreaktoren

Zeitpunkt	Maßnahme
Zwischenlagerung	I. Aufheizen II. Früherer Abtransport III. Schonendere Prozedur bei Abfertigung
Konditionierung	IV. Frühere Anlieferung/Konditionierung V. Verkapselung betroffener Brennelemente VI. Transport- und Lagerbehälter als Endlagerbehälter VII. Aufheizen/Abschrecken

5.2.1 Maßnahmen während der Zwischenlagerung

I. Aufheizen

Diese Maßnahme zielt darauf ab, ein Unterschreiten der Sprödbruchübergangstemperatur (siehe Kapitel 3.3.1) zu vermeiden. Das Aufheizen des Behälters kann z. B. durch eine Manipulation der Wärmeabfuhr oder durch aktive Maßnahmen, wie das Aufbringen

eines Heizmantels, erreicht werden. Grundvoraussetzung ist die Kenntnis der Sprödbruchübergangstemperatur für das eingelagerte Material und des zeitlichen Verlaufs der Temperatur im Behälter.

Radionuklidmobilität: Durch die Maßnahme bleiben die Eigenschaften des Referenzfalls erhalten. Es liegen keine bekannten Auswirkungen auf die Radionuklidmobilität im Endlager vor.

Strahlenschutz: Die Manipulation der Wärmeabfuhr geht mit zusätzlichen Personalhandlungen am oder in der Peripherie des Behälters einher, wodurch eine höhere Kollektivdosis der Mitarbeiter gegenüber dem Referenzfall zu erwarten ist.

Handhabbarkeit: Durch die Maßnahme bleiben die mechanischen Eigenschaften und folglich die Handhabbarkeit der Brennelemente entsprechend dem Referenzfall unvermindert erhalten.

Zwischenlagerung: Durch die Maßnahme des Aufheizens zur Verhinderung der Unterschreitung der Sprödbruchübergangstemperatur bleiben die Eigenschaften des Referenzfalls erhalten. Für die Durchführung der Maßnahme im Rahmen der laufenden Zwischenlagerung bedarf es aber entsprechender zusätzlicher technischer Vorkehrungen.

II. Früherer Abtransport

Bei dieser Maßnahme wird der Transport der LWR-Brennelemente zur Konditionierungseinrichtung initiiert, bevor mögliche degradierende Effekte zu einem Integritätsverlust der Umschließung (Dichtung, Hüllrohr) führen können. Dies bedeutet gleichermaßen, dass der Abtransport vor dem anvisierten Ende der verlängerten Zwischenlagerung stattfindet als auch, dass die Konditionierungsanlage u. U. früher zur Verfügung stehen muss als bei einer planmäßigen verlängerten Zwischenlagerung. Der frühere Abtransport beinhaltet weitere Maßnahmen in der Konditionierungseinrichtung.

Radionuklidmobilität: Es ergibt sich keine direkte Auswirkung aus dem früheren Abtransport auf die Radionuklidmobilität im Endlager. Die Korrosionsrate sowie die Radionuklidmobilität im Endlager sind in diesem Fall – wie auch im Referenzkonzept und bei Anwendung der gleichen Methoden – von den nachgelagerten Verfahren in der Konditionierungsanlage abhängig.

Strahlenschutz: Bedingt durch die Halbwertszeit der Radionuklide in den bestrahlten Brennelementen kann die Aktivität beim vorzeitigen Abtransport an die Konditionierungsanlage im Vergleich zum Referenzfall um einen Faktor von bis zu drei erhöht sein (siehe Kapitel 3.1). Dadurch ist die Ortsdosisleistung bei der Handhabung und dem Transport entsprechend höher.

Handhabbarkeit: Aufgrund des Abtransportes bevor degradierende Effekte zu einem Integritätsverlust der Umschließung führen, bleibt die Handhabbarkeit im Vergleich mit dem Referenzfall unvermindert erhalten.

Zwischenlagerung: Der frühere Abtransport der LWR-Brennelemente an die Konditionierungsanlage führt dazu, dass über die durchgeführte Zwischenlagerzeit keine Abweichungen zum Referenzfall bestehen.

III. Schonendere Prozedur bei Abfertigung

Diese Maßnahme sieht vor, für noch abzufertigende LWR-Brennelemente und zugehörige Behälter schonendere Prozeduren anzuwenden, bei denen die Temperaturen und folglich die Innendrucke/Umfangsspannungen zu keiner signifikanten Ausbildung radialer Hydride führen (siehe Kapitel 3.1.1), das Trocknungskriterium aber dennoch erfüllt werden kann.

Radionuklidmobilität: Durch die Maßnahme bleiben die Eigenschaften des Referenzfalls erhalten. Es liegen keine bekannten Auswirkungen auf die Radionuklidmobilität im Endlager vor.

Strahlenschutz: Unter Umständen ist es möglich, dass angepasste Abfertigungsprozeduren mit mehr oder längeren Personalhandlungen verbunden sind. In diesem Falle wäre mit einer höheren Kollektivdosis des abfertigenden Personals zu rechnen.

Handhabbarkeit: Durch die Maßnahme bleiben die mechanischen Eigenschaften und folglich die Handhabbarkeit der Brennelemente entsprechend dem Referenzfall unvermindert erhalten.

Zwischenlagerung: Durch die Anwendung schonenderer Abfertigungsprozeduren bleiben die Eigenschaften gegenüber dem Referenzfall unverändert. Gegenüber einer Abfertigung, bei der es zu einer signifikanten Ausbildung radialer Hydride kommt, ist bei der

Anwendung schonenderer Abfertigungsprozeduren eine Zwischenlagerung möglich, ohne dass die Versprödung durch radiale Hydride ggf. einen zeitlich limitierenden Faktor (im Hinblick auf einen notwendigen Handlungsbedarf für die nachfolgend angedachten Entsorgungsschritte) darstellt.

5.2.2 Maßnahmen bei der Konditionierung

IV. Frühere Anlieferung/Konditionierung

Die Maßnahme ist eine direkte Konsequenz aus der Zwischenlagerungsmaßnahme früherer Abtransport (aus der Zwischenlagerung) der LWR-Brennelemente, bevor mögliche degradierende Effekte zu einem Integritätsverlust der Umschließung führen können (siehe Kapitel 3.1.1 und Kapitel 4.2.1.3). Die Grundannahme besteht darin, dass die Brennelemente in einen Endlagerbehälter verpackt (konditioniert) und in ein Eingangs-/Pufferlager verbracht werden. Als Konsequenz der Maßnahme der früheren Anlieferung in der Konditionierungsanlage würde der beladene Endlagerbehälter bei noch nicht bereitstehendem Endlager deutlich länger als vorgesehen im Puffer-/Eingangslager des Endlagers verweilen, was im Prinzip einer weiteren Zwischenlagerung gleichkommt. Eine mögliche Degradation der Hüllrohre könnte dann im Endlagerbehälter fort-schreiten.

Radionuklidmobilität: Die frühere Anlieferung hat keine direkte Auswirkung auf die Radionuklidmobilität. Der mögliche (vorzeitige) Integritätsverlust der Hüllrohre im Endlagerbehälter während der Puffer-/Zwischenlagerung würde im Endlager zu einem potenziell früheren Kontakt des Brennstoffes mit dem Lösungsmedium und damit einer früher ein-setzenden Radionuklidmobilisierung im Vergleich zum Referenzfall führen.

Strahlenschutz: Bedingt durch die Halbwertszeit der Radionuklide in den bestrahlten Brennelementen ist die Aktivität bei der früheren Anlieferung an die Konditionierungsanlage im Vergleich zum Referenzfall erhöht (siehe Maßnahme II.). Dadurch ist auch die Ortsdosisleistung in der Konditionierungsanlage im Vergleich zum Referenzfall höher.

Handhabbarkeit: Aufgrund der Anlieferung bevor die degradierenden Effekte zu einem Integritätsverlust der Umschließung führen, bleibt die Handhabbarkeit im Vergleich mit dem Referenzfall unvermindert erhalten.

V. Verkapselung betroffener Brennelemente

Diese Maßnahme beinhaltet eine Verkapselung der geschädigten LWR-Brennelemente/Brennstäbe (siehe Kapitel 3.2.1) und die damit verbundene (Wieder)Herstellung einer dichten Umschließung des radioaktiven Inventars.

Radionuklidmobilität: Das Korrosionsverhalten der Brennstoffmatrix im Endlager wird hierdurch nicht direkt beeinflusst. Durch die Verkapselung der betroffenen Brennelemente bzw. Brennstäbe wird jedoch eine neue Barriere hergestellt, welche den möglichen Zeitpunkt des Kontakts der Brennstoffmatrix mit einem Lösungsmedium im Endlager verzögert und somit den Beginn der Radionuklidmobilisierung zeitlich nach hinten verschiebt (siehe Kapitel 4.2.1.1 und 4.2.1.3).

Strahlenschutz: Durch die Verkapselung der Brennelemente bzw. Brennstäbe wird eine – im Vergleich zum Referenzfall – längere Handhabungszeit in der Konditionierungsanlage benötigt. Folglich ergibt sich eine potenziell höhere Kollektivdosis für die Beschäftigten.

Handhabbarkeit: Die Handhabbarkeit der Inventare bleibt mit dieser Maßnahme erhalten bzw. wird wiederhergestellt.

VI. Transport- und Lagerbehälter als Endlagerbehälter

Wenn unter hypothetischen Umständen nach der Zwischenlagerung der LWR-Brennelemente eine Vermeidung bzw. Minimierung von Handhabungsvorgängen vonnöten sein sollte, kann der TLB als Endlagerbehälter verwendet werden (siehe Kapitel 3.3).

Radionuklidmobilität: Das Korrosionsverhalten der Brennstoffmatrix im Endlager wird hierdurch nicht direkt beeinflusst. Durch eine mögliche Konditionierung (ggf. Verfüllung oder Beschichtung) des TLB kann das Radionuklidmobilitätsverhalten beeinflusst und/oder eine zusätzliche Barriere hergestellt werden. Eine neue (bzw. durch die Verwendung eines vom Referenzendlagerkonzepts abweichenden Behälters veränderte) Barriere kann den möglichen Zeitpunkt des Kontakts der Brennstoffmatrix mit einem Lösungsmedium im Endlager und damit den Korrosionsbeginn ggf. verzögern (bzw. verändern).

Strahlenschutz: Ein Verbleib der LWR-Brennelemente im TLB erfordert im Vergleich zum Referenzfall in geringerem oder ähnlich hohem Umfang Personenhandlungen und damit verbundene Expositionen.

Handhabbarkeit: Mit der Maßnahme verbleiben die LWR-Brennelemente im Behälter und müssen nicht, wie bei einer Entladung, bewegt und gehandhabt werden. Es existieren daher keine Anforderungen an die Handhabbarkeit.

VII. Aufheizen/Abschrecken

Diese Maßnahme zielt darauf ab, potenziell durch radiale Hydride versprödete, aber noch intakte LWR-Brennelemente, in der Konditionierungsanlage thermischen Randbedingungen auszusetzen, so dass bei den anschließenden Handhabungsmaßnahmen kein sprödes Verhalten auftritt. Es besteht zum einen die Möglichkeit eine Handhabungstemperatur in der Anlage einzustellen, die oberhalb der Sprödbruchübergangstemperatur liegt (siehe Kapitel 3.3.1). Zum anderen könnte mithilfe technischer Vorkehrungen ein Verfahren zum gesteuerten Aufheizen und Abkühlen der Brennelemente implementiert werden, welches dem Zweck dient, die radialen Hydride durch Erhitzen wieder in Lösung übergehen zu lassen und durch ein definiertes Abkühlen die Hydridmorphologie im gewünschten Maße zu beeinflussen, so dass auch bei Raumtemperatur kein sprödes Verhalten der Hüllrohre vorliegt.

Radionuklidmobilität: Durch die Maßnahme bleiben die Eigenschaften des Referenzfalls erhalten. Es liegen keine bekannten Auswirkungen auf die Korrosionsgeschwindigkeit im Endlager vor.

Strahlenschutz: Bei der Anwendung einer thermischen Prozedur auf die Brennelemente bzw. Brennstäbe wird eine – im Vergleich zum Referenzfall – längere Handhabungszeit bzw. Verweilzeit in der Konditionierungsanlage notwendig. Folglich ergibt sich eine potenziell höhere Kollektivdosis für die Beschäftigten. Wird die Maßnahme verfolgt, dass die Handhabungstemperatur in der Anlage künstlich oberhalb der Sprödbruchtemperatur (vgl. Kapitel 2.2.1) gehalten wird, so besteht die Möglichkeit, dass keine längere Verweildauer der Brennelemente in der Anlage nötig ist und somit auch die Strahlenbelastung im Vergleich zum Referenzfall nicht zunimmt.

Handhabbarkeit: Durch die Maßnahmen wird die Handhabbarkeit der Brennelemente entsprechend dem Niveau des Referenzfalls erhalten bzw. wiederhergestellt.

5.3 WWER-Brennelemente

In Tab. 5.3 sind mögliche Optionen von Maßnahmen sowohl während der Zwischenlagerung als auch bei der Konditionierung der WWER-Brennelemente gelistet.

Tab. 5.3 Mögliche Maßnahmen für die WWER-Brennelemente

Zeitpunkt	Maßnahme
Zwischenlagerung	I. Früherer Abtransport
Konditionierung	II. Frühere Anlieferung/Konditionierung III. Verkapselung betroffener Brennelemente

5.3.1 Maßnahmen bei der Zwischenlagerung

I. Früherer Abtransport

Bei dieser Maßnahme wird der Transport zur Konditionierungseinrichtung initiiert, bevor die für die WWER-Brennelemente relevanten degradierenden Effekte zum Tragen kommen (siehe Kapitel 3.2.2). Dies bedeutet gleichermaßen, dass der Abtransport vor dem anvisierten Ende der verlängerten Zwischenlagerung stattfindet als auch, dass die Konditionierungsanlage u. U. früher zur Verfügung stehen muss als bei einer planmäßigen verlängerten Zwischenlagerung. Der frühere Abtransport beinhaltet weitere Maßnahmen in der Konditionierungseinrichtung.

Radionuklidmobilität: Es ergibt sich keine direkte Auswirkung aus dem früheren Abtransport auf die Radionuklidmobilität im Endlager. Die Korrosionsrate sowie die Radionuklidmobilität im Endlager sind von den nachgelagerten Maßnahmen zur Konditionierung abhängig.

Strahlenschutz: Bedingt durch die Halbwertszeit der Radionuklide in den bestrahlten WWER-Brennelementen kann die Aktivität beim vorzeitigen Abtransport an die Konditionierungsanlage im Vergleich zum Referenzfall um rund einen Faktor von vier erhöht (siehe Kapitel 3.1.2). Dadurch ist die Strahlenbelastung bei der Handhabung und dem Transport entsprechend höher.

Handhabbarkeit: Aufgrund des Abtransportes bevor degradierende Effekte zum Tragen kommen, bleibt die Handhabbarkeit im Vergleich mit dem Referenzfall unvermindert erhalten.

Zwischenlagerung: Der frühere Abtransport des Inventars an die Konditionierungsanlage führt dazu, dass während der Zwischenlagerung keine Abweichungen zum Referenzfall entstehen.

5.3.2 Maßnahmen bei der Konditionierung

II. Frühere Anlieferung/Konditionierung

Die Maßnahme ist eine direkte Konsequenz aus der Zwischenlagerungsmaßnahme früherer Abtransport (aus der Zwischenlagerung), bevor mögliche degradierende Effekte in Erscheinung treten. Die Grundannahme besteht darin, dass die WWER-Brennelemente in ein Endlagerbehälter verpackt (ggf. konditioniert) und in ein Eingangs-/Pufferlager verbracht werden. Als Konsequenz der Maßnahme der früheren Anlieferung in der Konditionierungsanlage würde der beladene Endlagerbehälter bei noch nicht bereitstehendem Endlager deutlich länger als vorgesehen im Puffer-/Eingangslager des Endlagers verweilen, was im Prinzip einer weiteren Zwischenlagerung gleichkommt. Eine mögliche Degradation könnte dann im Endlagerbehälter fortschreiten.

Radionuklidmobilität: Die frühere Anlieferung hat keine direkte Auswirkung auf die Radionuklidmobilität. Der mögliche (vorzeitige) Integritätsverlust der Hüllrohre im Endlagerbehälter während der Puffer-/Zwischenlagerung würde im Endlager zu einem potenziell früheren Kontakt des Brennstoffes mit dem Lösungsmedium und damit einer früher einsetzenden Radionuklidmobilisierung im Vergleich zum Referenzfall führen.

Strahlenschutz: Bedingt durch die Halbwertszeit der Radionuklide in den bestrahlten Brennelementen ist die Aktivität bei der früheren Anlieferung an die Konditionierungsanlage im Vergleich zum Referenzfall erhöht (siehe Maßnahme I.). Dadurch ist auch die Ortsdosisleistung in der Konditionierungsanlage im Vergleich zum Referenzfall höher.

Handhabbarkeit: Aufgrund der Anlieferung bevor die degradierenden Effekte zum Tragen kommen, bleibt die Handhabbarkeit im Vergleich mit dem Referenzfall unvermindert erhalten.

III. Verkapselung betroffener Brennelemente

Diese Maßnahme beinhaltet eine Verkapselung der geschädigten Brennelemente des Typs WWER (siehe Kapitel 3.2.2) und die damit verbundene (Wieder)Herstellung einer dichten Umschließung des radioaktiven Inventars.

Radionuklidmobilität: Das Korrosionsverhalten der Brennstoffmatrix im Endlager wird hierdurch nicht direkt beeinflusst. Durch die Verkapselung der betroffenen Brennelemente wird eine neue Barriere hergestellt (siehe Kapitel 4.2.1.3), welche den möglichen Zeitpunkt des Kontakts der Brennstoffmatrix mit einem Lösungsmedium im Endlager verzögert und somit den Beginn der Radionuklidmobilisierung zeitlich nach hinten verschiebt.

Strahlenschutz: Durch die Verkapselung der Brennelemente bzw. Brennstäbe wird eine – im Vergleich zum Referenzfall – längere Handhabungszeit in der Konditionierungsanlage benötigt. Folglich ergibt sich eine potenziell höhere Kollektivdosis für die Beschäftigten.

Handhabbarkeit: Die Handhabbarkeit der Inventare bleibt mit dieser Maßnahme erhalten bzw. wird wiederhergestellt.

5.4 THTR/AVR-Brennelemente

In Tab. 5.4 sind mögliche Optionen von Maßnahmen sowohl während der Zwischenlagerung als auch bei der Konditionierung der AVR/THTR-Brennelementkugeln gelistet. Im Rahmen dieses Vorhabens sind keine Optionen von Maßnahmen identifiziert worden, die während der Zwischenlagerung ergriffen werden könnten, um den Effekten (siehe Kapitel 3.2.3) entgegenzuwirken.

Tab. 5.4 Mögliche Maßnahmen für die AVR/THTR-Brennelementkugeln

Zeitpunkt	Maßnahme
Zwischenlagerung	Keine Maßnahmen identifiziert
Konditionierung	I. Verschweißen der Kannen II. Umverpackung/Overpack

5.4.1 Maßnahmen bei der Konditionierung

I. Verschweißen der Kannen

Diese Maßnahme beinhaltet das Verschweißen der bisher nicht verschweißten THTR/AVR-Edelstahlkannen.

Radionuklidmobilität: Das Korrosionsverhalten der Brennelementkugeln im Endlager wird hierdurch nicht beeinflusst. Durch das Verschweißen der Edelstahlkannen wird der potenzielle Schwachpunkt der bestehenden Barriere verbessert und möglicherweise der Zeitpunkt des Kontakts der Brennelementkugeln mit einem Lösungsmedium im Endlager verzögert.

Strahlenschutz: Durch das Verschweißen der Edelstahlkannen wird eine – im Vergleich zum Referenzfall – längere Handhabungszeit in der Konditionierungsanlage benötigt, und somit ergibt sich eine potenziell höhere Kollektivdosis für die Beschäftigten.

Handhabbarkeit: Die Maßnahme hat keine Auswirkungen auf die Handhabbarkeit der THTR/AVR-Brennelementkugeln im Vergleich zum Referenzfall.

II. Umverpackung/Overpack

Ziel der Maßnahme *Umverpackung* – Herausholen der THTR/AVR-Brennelementkugeln aus der Edelstahlkanne und erneute Verpackung – bzw. *Overpack* – Einbringen der Edelstahlkanne in eine neue Umhüllung – ist die (Wieder-)Herstellung einer dichten Umschließung (vgl. Kapitel 3.2.3) des radioaktiven Inventars.

Radionuklidmobilität: Das Korrosionsverhalten der THTR/AVR-Brennelementkugeln im Endlager wird hierdurch nicht beeinflusst. Durch die Umverpackung oder ein Overpack wird eine neue Barriere hergestellt, welche den möglichen Zeitpunkt des Kontakts der THTR/AVR-Brennelementkugeln mit einem Lösungsmedium im Endlager verzögert und somit den Beginn der Radionuklidmobilisierung zeitlich nach hinten verschieben kann (siehe Kapitel 4.2.1.1 und 4.2.3.2).

Strahlenschutz: Durch die Umverpackung der THTR/AVR-Brennelementkugeln oder das Einbringen in ein Overpack wird eine – im Vergleich zum Referenzfall – längere Hand-

habungszeit in der Konditionierungsanlage benötigt, und somit ergibt sich eine potenziell höhere Kollektivdosis für die Beschäftigten.

Handhabbarkeit: Die Handhabbarkeit der THTR/AVR-Brennelementkugeln bleibt mit dieser Maßnahme erhalten bzw. wird wiederhergestellt.

5.5 Forschungsreaktor-Brennelemente

Die Tab. 5.5 listet mögliche Maßnahmen sowohl während der Zwischenlagerung als auch bei der Konditionierung der Forschungsreaktor-Brennelemente auf. Im Rahmen dieses Vorhabens sind keine Optionen von Maßnahmen identifiziert worden, die während der Zwischenlagerung ergriffen werden könnten, um den Effekten (siehe Kapitel 3.2.4) entgegenzuwirken.

Tab. 5.5 Mögliche Maßnahmen für die Forschungsreaktor-Brennelemente für unterschiedliche Zeitpunkte (Zwischenlagerung, Konditionierung)

Zeitpunkt	Maßnahme
Zwischenlagerung	Keine Maßnahmen identifiziert
Konditionierung	I. Verkapselung der Brennelemente II. Transport- und Lagerbehälter als Endlagerbehälter

5.5.1 Maßnahmen bei der Konditionierung

I. Verkapselung der Brennelemente

Ziel der Maßnahme – Verkapselung von Forschungsreaktor-Brennelementen – ist die (Wieder-)Herstellung einer dichten Umschließung des radioaktiven Inventars.

Radionuklidmobilität: Das Korrosionsverhalten der Brennstoffmatrix im Endlager wird hierdurch nicht direkt beeinflusst. Durch die Verkapselung der Forschungsreaktor-Brennelemente wird eine neue Barriere hergestellt, welche den möglichen Zeitpunkt des Kontakts der Brennstoffmatrix mit einem Lösungsmedium im Endlager verzögert und somit den Beginn der Radionuklidmobilisierung zeitlich nach hinten verschieben kann (siehe Kapitel 4.2.3.3 und 4.2.3.4).

Strahlenschutz: Durch die Verkapselung der Forschungsreaktor-Brennelemente wird eine – im Vergleich zum Referenzfall – längere Handhabungszeit in der Konditionierungsanlage benötigt, und somit ergibt sich eine potenziell höhere Kollektivdosis für die Beschäftigten.

Handhabbarkeit: Die Handhabbarkeit der Forschungsreaktor-Brennelemente bleibt mit dieser Maßnahme erhalten bzw. wird wiederhergestellt.

II. Transport- und Lagerbehälter als Endlagerbehälter

Wenn unter hypothetischen Umständen nach der Zwischenlagerung eine Vermeidung bzw. Minimierung von Handhabungsvorgängen vonnöten sein sollte, ist eine mögliche Option die Verwendung des TLB als Endlagerbehälter.

Radionuklidmobilität: Das Korrosionsverhalten der Brennstoffmatrix im Endlager wird hierdurch nicht beeinflusst. Durch eine mögliche Konditionierung (ggf. Verfüllung oder Beschichtung) des TLB kann das Radionuklidmobilitätsverhalten beeinflusst werden und/oder eine zusätzliche Barriere hergestellt werden. Eine neue Barriere kann den möglichen Zeitpunkt des Kontakts der Brennstoffmatrix mit einem Lösungsmedium im Endlager verzögern.

Strahlenschutz: Ein Verbleib der Forschungsreaktor-Brennelemente im TLB erfordert im Vergleich zum Referenzfall in geringerem oder ähnlich hohem Umfang Personenhandlungen und damit verbundene Expositionen. Die Strahlenbelastung ist abhängig von dem spezifischen Konzept der Konditionierung und dessen Umsetzung.

Handhabbarkeit: Mit dieser Maßnahme verbleiben die Forschungsreaktor-Brennelemente im Behälter und müssen nicht, wie bei einer Entladung, bewegt und gehandhabt werden. Es resultieren daher keine Folgen für die Handhabbarkeit.

5.6 Tabellarische Zusammenfassung

In Tab. 5.6 sind alle Handlungsoptionen sowie die Bewertung hinsichtlich der Auswirkungen auf die Radionuklidmobilität im Endlager, den Strahlenschutz, die Handhabbarkeit der Inventare und auf die Sicherheit der Zwischenlagerung zusammengefasst.

Tab. 5.6 Handlungsoptionen und deren Auswirkung auf die Radionuklidmobilität, den Strahlenschutz, Handhabung der Inventare sowie die Sicherheit der Zwischenlagerung

	Handlungsoption(en)	Inventar(e)	Radionuklidmobilität	Strahlenschutz	Handhabbarkeit	Sicherheit der Zwischenlagerung
Zwischenlagerung	Thermische Behandlung	Verglaste rad. Abfälle	wird verringert	ggf. erhöhte (Kollektiv-) Dosis	keine Auswirkung	bleibt unverändert
	Abtransport	Verglaste rad. Abfälle, LWR-BE, WWER-BE	keine Auswirkung	erhöhte Dosisleistung/ (Kollektiv-) Dosis	bleibt erhalten	bleibt unverändert
	Aufheizen	LWR-BE	keine Auswirkung	ggf. erhöhte (Kollektiv-) Dosis	bleibt erhalten	bleibt unverändert
	Schonendere Behandlung	LWR-BE	keine Auswirkung	ggf. erhöhte (Kollektiv-) Dosis	bleibt erhalten	bleibt unverändert
Konditionierung	Antransport/Konditionierung	Verglaste rad. Abfälle, LWR-BE, WWER-BE	keine Auswirkung/ggf. früher	erhöhte Dosisleistung/ (Kollektiv-) Dosis	bleibt erhalten	-
	Overpack	Verglaste rad. Abfälle	wird verzögert	ggf. erhöhte (Kollektiv-) Dosis	Wiederherstellung	-
	Umverpacken/Overpack	AVR/THTR-BEK	unverändert/wird verzögert	ggf. erhöhte (Kollektiv-) Dosis	Wiederherstellung	-
	Thermische Behandlung	Verglaste rad. Abfälle	wird verringert	ggf. erhöhte (Kollektiv-) Dosis	keine Auswirkung	-
	Verkapselung der Brennelemente	LWR-BE, WWER-BE, FR-BE	wird verzögert	ggf. erhöhte (Kollektiv-) Dosis	Wiederherstellung	-
	Aufheizen/Abschrecken	LWR-BE	keine Auswirkung	ggf. erhöhte (Kollektiv-) Dosis	Wiederherstellung	-
	Zwischenlagerbehälter als Endlagerbehälter	LWR-BE, FR-BE	unverändert/ggf. verzögert	ggf. niedrigere (Kollektiv-) Dosis	wird vermieden	-
	Verschweißen der Kannen	AVR/THTR-BEK	unverändert/ggf. verzögert	ggf. erhöhte (Kollektiv-) Dosis	Wiederherstellung	-

6 Zusammenfassung und Bewertung

Die durchgeführte *Zwischenlageranalyse* zeigt, dass über alle Inventargruppen hinweg keine unzulässigen Effekte und keine markanten negativen Einflüsse auf das Inventar- und Materialverhalten während einer verlängerten Zwischenlagerung über den betrachteten Zeitraum von 100 Jahren, der als mögliche verlängerte Zwischenlagerdauer gesehen wird. Nach derzeitigem Stand von Wissenschaft und Technik gibt es keine Hinweise für ein systematisches Versagen von Hüllrohren, Umschließungen oder Barrieren der betrachteten Brennstoffe. Dennoch wurden im Rahmen der Zwischenlageranalyse Wissenslücken identifiziert, die sich auf die einzelnen Inventargruppen beziehen und vielfältig sind. Die Wissenslücken umfassen materialwissenschaftliche Aspekte sowie konzeptionelle und technische Aspekte.

Die identifizierten Handlungsoptionen bzw. Maßnahmen während der Zwischenlagerung umfassen:

- die thermische Behandlung der Glaskokillen zur Manipulation der inneren Oberfläche,
- das Aufheizen der LWR-Brennelemente, damit diese nicht die Sprödbruchtemperatur unterschreiten,
- den früheren Abtransport verschiedener Inventartypen bevor mögliche Degradationen auftreten, sowie
- die schonenderen Abfertigungsprozeduren für noch zu beladene LWR-Brennelementbehälter, um die Ausbildung radialer Hydride zu minimieren.

Die thermische Behandlung der Glaskokillen erscheint die einzige mögliche Maßnahme in der Zwischenlagerung, um eine Radionuklidmobilität im Endlager über eine Änderung der Korrosionsgeschwindigkeit der Glaskokillen zu beeinflussen. Es stellt sich jedoch die Frage nach der technischen Machbarkeit bzw. dem Verhältnis von Aufwand und Nutzen. Da die Gläser eine Kerntemperatur von 502 °C erreichen müssten, ist das Aufheizen bzw. die Isolation der Behälteraußenseite bzgl. der Machbarkeit zu untersuchen, da die sich hier einstellenden Temperaturen die übrigen Behälterkomponenten, insbesondere die Moderatorstäbe, in Mitleidenenschaft ziehen könnten. Alle weiteren in Frage kommenden Möglichkeiten die Glaskokillen aufzuheizen, würden das Öffnen und die Handhabung der Kokillen nach sich ziehen. Für diese Handhabungsschritte sind die Zwischenlager derzeit nicht ausgelegt bzw. vorgesehen, so dass umfangreiche Modifikationen notwendig wären. Die Auswirkungen auf die Anlage und die radiologischen Konsequenzen für die Mitarbeiter müssten mit dem erzielten Sicherheitsgewinn in der Endlagerung abgewogen werden.

Das Aufheizen der Brennelemente bzw. die Manipulation der Wärmeabfuhr über Heizmatten oder eine Isolation der Behälter zum Erhalt eines bestimmten Temperaturniveaus stellen demgegenüber realistischere Handlungsoptionen dar. Allerdings sollten gesicherte Erkenntnisse über das Wasserstoffverhalten in LWR-Brennelementen vorliegen, aus denen hervorgeht, dass mit abnehmenden Temperaturen Versprödungserscheinungen zu erwarten sind, welche die Handhabung erschweren. Die konkrete technische Umsetzung in Verbindung mit den zusätzlichen radiologischen Auswirkungen wäre noch abschließend zu bewerten.

Die Handlungsoption einer schonenderen Abfertigungsprozedur sieht vor, für noch abzufertigende LWR-Brennelemente und zugehörige Behälter schonendere Prozeduren anzuwenden. Dabei ist sicherzustellen, dass die Temperaturen und folglich die Innendrucke/Umfangsspannungen zu keiner signifikanten Ausbildung radialer Hydride führen, während das Trocknungskriterium dennoch erfüllt werden kann. Diese Maßnahme ist noch hypothetisch, denn sie bedarf ebenfalls gesicherter Erkenntnisse über das Wasserstoffverhalten in den Brennstabhüllrohren der LWR-Brennelemente. Es lässt sich gegenwärtig nicht abschätzen, wann die gewünschten Erkenntnisse in ausreichendem Umfang vorliegen werden. In der Zwischenzeit werden weiterhin Behälterbeladungen vorgenommen, um die Nasslager zu entleeren und um die notwendigen Rückbauschritte der abgeschalteten Kernkraftwerke vornehmen zu können. Neben der Klärung der technischen Machbarkeit dieser Maßnahme ist diese Maßnahme allenfalls nur für einen kleineren Teil der LWR-Brennelemente noch anwendbar.

Die Handlungsoption des früheren Abtransports/der früheren Anlieferung verschiedener Inventartypen an die Konditionierungseinrichtung bevor relevante degradierende Effekte zum Tragen kommen, gewährleistet die Handhabbarkeit der Inventare. Sie ist aus rein transporttechnischer Sicht mit keinem Mehraufwand und nur mit geringen zusätzlichen radiologischen Auswirkungen verbunden (verglichen zu einem späteren Transport). Die Maßnahme erscheint daher praktikabel in Bezug auf die Handhabbarkeit und die Sicherheit bei der Zwischenlagerung. Aus der Perspektive des gesamten Entsorgungspfades und der damit einhergehenden Schritte und Ablaufplanungen ist es ein nicht unerheblicher Sachverhalt, wenn der Abtransport vor dem anvisierten Ende der verlängerten Zwischenlagerung stattfinden muss. In diesem Fall muss vorausschauend eine Konditionierungsanlage errichtet werden und bereits zu einem früheren Zeitpunkt zur Verfügung stehen als bei einer planmäßigen verlängerten Zwischenlagerung. Ein weiterer zu beachtender Aspekt ist, dass der beladene Endlagerbehälter bei noch nicht bereitstehendem Endlager deutlich länger als vorgesehen in einem Pufferlager der Konditionierungsanlage oder einem Eingangslager des Endlagers verweilen muss. Dies würde einer weiteren Zwischenlagerung entsprechen. Entsprechende Anforderungen an eine Zwischenlagerung der beladenen Endlagerbehälter müssten dahingehend entwickelt und abgestimmt werden.

In der Konditionierungsanlage besteht ebenfalls die Option, die Eigenschaften der Glaskokillen und somit das Korrosionsverhalten im Endlager durch eine thermische Behandlung zu beeinflussen. Ausgehend von der Auslegung einer Konditionierungsanlage als heiße Zelle, bestehen aus verfahrenstechnischer Sicht deutlich bessere Voraussetzungen, die Behälter zu öffnen und die Glaskokillen zu erhitzen, weshalb die Maßnahme bevorzugt in der Konditionierungsanlage durchgeführt werden sollte, als während der Zwischenlagerung selbst. Der zusätzliche technische Aufwand und die radiologischen Konsequenzen sollten vorab dem Sicherheitsgewinn in der Endlagerung gegenübergestellt werden.

Eine weitere Maßnahme, die nur für eine Konditionierungsanlage zugeschnitten ist, da sie die Behälteröffnung erfordert, ist das Aufheizen/Abschrecken der LWR-Brennelemente im Behälter, mit dem Ziel, die versprödenden Auswirkungen radialer Hydride vor Ort zu negieren und eine weitere Handhabung in der Anlage zu erlauben. Grundsätzlich muss geklärt werden, ob solche Maßnahmen überhaupt notwendig wären. Dazu ist wiederum die besagte Kenntnis über das Wasserstoffverhalten zu erweitern. In Anbetracht des zeitlichen Rahmens, der bis zu einer endlagergerechten Konditionierung vorgesehen ist und der gegebenen Sicherheit der Zwischenlagerung, erscheint es aber realistisch, diese Wissenslücken in der Zwischenzeit schließen und eine konkrete technische Machbarkeit prüfen zu können.

Andere Handlungsoptionen in der Konditionierung sind vorrangig Maßnahmen, die bei degradierten Umschließungen wieder eine intakte, dichte Barriere herstellen. Je nach Inventartyp kommen eine Umverpackung, die Nutzung eines Overpacks, die Verkapselung oder das Verschweißen infrage. Gegenüber dem Umladen ungestörter Inventare in die Endlagerbehälter müssen erweiterte technische Vorkehrungen vorgehalten und in der Auslegung der Anlage berücksichtigt werden. Hinsichtlich der technischen Machbarkeit erscheint die Option grundsätzlich durchführbar. Die Varianten des Overpacks und der Verkapselung sind im Hinblick auf das Design der potenzieller Endlagerbehälter eher ungünstig. Durch die abweichenden Geometrien zu den intakten Inventaren müssen anders dimensionierte Aufnahmesysteme im Behälterinnenraum bedacht werden. Im Hinblick auf eine Radionuklidmobilisierung im Endlager lassen neue bzw. intakte Barrieren eine Verringerung der Mobilisierung erwarten, da eine zusätzliche Barriere den möglichen Kontaktzeitpunkt von Abfallmatrix mit Lösungsmedium verzögern kann. Dies resultiert in einem späteren Beginn der Korrosion der Abfallmatrix und einer entsprechend verzögerten Freisetzung bzw. Mobilisierung von Radionukliden. Aufgrund der Vielzahl an Einflussparametern kann dieser Effekt jedoch im Rahmen dieses Vorhabens nicht exakt quantifiziert und lediglich qualitativ eingeschätzt werden.

Wenn unter hypothetischen Umständen eine Vermeidung bzw. Minimierung von Handhabungsvorgängen in der Konditionierungsanlage erforderlich sein sollte, kann eine Option sein,

den TLB als Endlagerbehälter zu verwenden. In Bezug auf die Ergebnisse der Zwischenlageranalyse ist diese Option lediglich für LWR- und Forschungsreaktor-Brennelemente zu berücksichtigen. Unter radiologischen Gesichtspunkten ist diese Handlungsoption vorteilhaft, da die Brennelemente nicht aus dem Behälter entladen und während Handhabung und Transport weiterhin durch den Behälter abgeschirmt werden. In einschlägigen Fachgremien und Expertengruppen wurde dieses Konzept bereits diskutiert, im Rahmen dieses Vorhabens wurde es jedoch nicht als Endlagerkonzept weiterverfolgt.

Im Rahmen der Zwischenlageranalyse wurde eine weitere Handlungsoption identifiziert, die jedoch über die betrachteten Referenzendlagerkonzepte hinausgeht und daher nicht im Detail weiterverfolgt werden konnte. Die Option, in der Konditionierungsanlage zielgerichtet mechanische, chemische oder physikalische Verfahren (wie z. B. eine Aufbereitung) anzuwenden, zielt darauf ab, die Inventare in eine Form und einen Zustand zu überführen, welche den Annahmebedingungen eines zukünftigen Endlagers entsprechen. Unter Berücksichtigung der Aspekte der ergebnisoffenen Endlagersuche sowie der kontinuierlichen Weiterentwicklung wissenschaftlicher und technischer Erkenntnisse ist eine Fortführung der konzeptionellen Überlegungen empfehlenswert. Dies umfasst eine Untersuchung potenzieller Verfahrensoptionen und Endlagerkonzepte, welche anschließend einer Bewertung im Kontext bereits bestehender Konzepte unterzogen werden sollten.

Unter Berücksichtigung des derzeitigen Kenntnisstands kann die Sicherheit der Zwischenlagerung auch bei einer verlängerten Zwischenlagerung für 100 Jahre als gegeben betrachtet werden. Es wurden keine zwingenden Maßnahmen zur Aufrechterhaltung der Sicherheit während dieser Phase identifiziert, jedoch ist dies in einem anstehenden Genehmigungsverfahren nachzuweisen.

Es hat sich jedoch gezeigt, dass die rückbezüglichen Auswirkungen des Endlagerkonzepts auf die vorausgehenden Entsorgungsschritte in den Planungen eine wesentliche Berücksichtigung finden sollten. Der Endlagerstandort, das konkrete Endlagerkonzept sowie insbesondere die dazugehörigen Annahmebedingungen definieren die grundlegenden Anforderungen an die Konditionierung der Inventare. In Konsequenz dessen ergeben sich Anforderungen an die Konditionierungsanlage, welche vorgelagerte Maßnahmen erforderlich machen können, jedoch nicht müssen. Ohne das Vorhandensein konkreter Annahmebedingungen können die dargelegten Handlungsoptionen und damit einhergehenden Verfahren lediglich als theoretischer Natur kategorisiert werden, wobei eine Bewertung hinsichtlich Plausibilität und Umsetzbarkeit nur begrenzt möglich ist.

Sobald ein Endlagerkonzept sowie die daraus resultierenden Rahmenbedingungen für die endlagergerechte Konditionierung vorliegen, sollte auf Basis des zukünftigen Stands von Wissenschaft und Technik eine erneute Betrachtung der Handlungsoptionen erfolgen. Insofern stellt die erstmalig kombinierte Betrachtung von Zwischenlagerung und Endlagerung mit Fokus auf die Minimierung einer Radionuklidmobilisierung im Endlager im Rahmen dieses Vorhabens einen ersten Schritt in diese Richtung dar.

Literaturverzeichnis

- /2021/ Finck, N., Morelová, N., Cakir-Wuttke P., Polly R., Schild D.: KORSO - Korrosions- und Sorptionsprozesse an Stahloberflächen bei hohen Temperaturen und Drücken im anaeroben salinaren Milieu, Abschlussbericht Teilprojekt B. Institut für Nukleare Entsorgung (INE), 2021.
- /ADL 04/ Adler Flitton, M. K., Bishop, C. W., Delwiche, M. E., Yoder, T. S.: Long term corrosion/degradation test: six year results, Report INEEL/EXT-04-02335. Idaho National Engineering and Environmental Laboratory, 2004.
- /AGE 15/ Agence Nationale pour la Gestion des Déchets Radioactifs (ANDRA): The research programme on argillaceous rock in France, Current status, future research needs. Präsentation, ESK-Workshop on German radioactive waste disposal research, 20. Januar 2015.
- /AGE 16/ Agence Nationale pour la Gestion des Déchets Radioactifs (ANDRA) (Hrsg.): Safety Options Report, Post-Closure Part, (DOS-AF). 466 S., 2016.
- /AHN 99/ Ahn, T. M., Cragolino, G. A., Chan, K. S., Sridhar, N.: Scientific Bases for Cladding Credit as a Barrier to Radionuclide Release at the Proposed Yucca Mountain Repository. Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXIII, Nr. 556, S. 525–533, 1999.
- /AHN 13/ Ahn, T., Jung, H., Shukla, P. K., Tipton, E. L., Das, K., He, X., Enziger, R. E.: Extended Storage and Transportation: Evaluation of Drying Adequacy, ADAMS Accession No. ML13169A039. Hrsg.: Center for Nuclear Waste Regulatory Analyses, 2013.
- /AIT 14/ Ait Chaou, A., Abdelouas, A., Karakurt, G., Grambow, B.: Aqueous alteration of VHTR fuels particles under simulated geological conditions. Journal of Nuclear Materials, Bd. 448, Nr. 1-3, S. 206–216, DOI 10.1016/j.jnucmat.2014.01.049, 2014.
- /AKE 02/ AkEnd - Arbeitskreis Auswahlverfahren Endlagerstandorte (Hrsg.): Auswahlverfahren für Endlagerstandorte: Empfehlungen des AkEnd. Köln, 2002.

- /AKK 13/ v.d. Akker, B. P., Ahn, J.: Performance Assessment for Geological Disposal of Graphite Waste Containing TRISO Particles. Nuclear Technology, Bd. 181, Nr. 3, S. 408–426, DOI 10.13182/NT11-103, 2013.
- /ALD 94a/ Alder, J. C., McGinnes, D. F.: Model Radioactive Waste Inventory for Swiss Waste Disposal Projects, Volume 1, Main report. Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), Nagra Technischer Bericht, NTB 93-21, 78 S.: Wettingen, Juni 1994.
- /ALD 94b/ Alder, J. C., McGinnes, D. F.: Model Radioactive Waste Inventory for Swiss Waste Disposal Projects, Volume 2, Database. Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), Nagra Technischer Bericht, NTB 93-21, 908 S.: Wettingen, Juni 1994.
- /ALF 20a/ Alfarra, A., Bertrams, N., Bollingerfehr, W., Eickemeier, R., Flügge, J., Frenzel, B., Maßmann, J., Mayer, K.-M., Mönig, J., Mrugalla, S., Müller-Hoeppe, N., Reinhold, K., Rübel, A., Schubarth-Engelschall, N., et al.: Grundlagen zur Bewertung eines Endlagersystems in einer Tongesteinsformation größerer Mächtigkeit, RESUS. GRS-571, 186 S., ISBN 978-3-947685-57-8, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, 2020.
- /ALF 20b/ Alfarra, A., Bertrams, N., Bollingerfehr, W., Eickemeier, R., Flügge, J., Liu, W., Frenzel, B., Maßmann, J., Mayer, K.-M., Mönig, J., Mrugalla, S., Müller-Hoeppe, N., Reinhold, K., Rübel, A., et al.: Grundlagen zur Bewertung eines Endlagersystems in einer Tongesteinsformation geringerer Mächtigkeit, RESUS. GRS-572, 186 S., ISBN 978-3-947685-58-5, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, 2020.
- /ALF 20c/ Alfarra, A., Bertrams, N., Bollingerfehr, W., Eickemeier, R., Flügge, J., Frenzel, B., Maßmann, J., Mayer, K.-M., Mönig, J., Mrugalla, S., Müller-Hoeppe, N., Reinhold, K., Rübel, A., Schubarth-Engelschall, N., et al.: Grundlagen zur Bewertung eines Endlagersystems in einer Tongesteinsformation geringerer Mächtigkeit bei einer höheren Auslegungstemperatur, RESUS. GRS-573, 186 S., ISBN 978-3-947685-59-2, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, 2020.

- /ALF 20d/ Alfarrá, A., Becker, D.-A., Bertrams, N., Bollingerfehr, W., Eickemeier, R., Flügge, J., Frenzel, B., Maßmann, J., Mayer, K.-M., Mönig, J., Mrugalla, S., Müller-Hoeppe, N., Reinhold, K., Rübel, A., et al.: Grundlagen zur Bewertung eines Endlagersystems in einer Kristallinsgesteinsformation mit einer überlagernden Tonformation, RESUS. GRS-576, 186 S., ISBN 978-3-947685-62-2, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, 2020.
- /ALL 61/ Allen, A.: The radiation chemistry of water and aqueous solutions. Van Nostrand: Princeton N.J, 1961.
- /AND 79/ Anderson, M. P.: Using Models to Simulate the Movement of Contaminants through Groundwater Flow Systems. Chemical Rubber Corporation, Boca Raton, FL, CRC Critical Reviews in Environmental Control, 1979.
- /ANT 85/ Antonini, M., Merlini, A. E., Thornley, R. F.: EXAFS structures of technetium in glasses prepared under different redox conditions. Journal of Non-Crystalline Solids, Bd. 71, Nr. 1-3, S. 219–225, DOI 10.1016/0022-3093(85)90290-X, 1985.
- /ARC 06/ Arcos, D., Grandia, F., Domènech, C.: Geochemical evolution of the near field of a KBS-3 repository. Hrsg.: Svensk Kärnbränslehantering AB, Technical Report, TR-06-16, September 2006.
- /AUT 03/ Autio, J., Hjerpe, T., Siitari-Kauppi, M.: Porosity, Diffusivity and Permeability of EDZ in Crystalline Rock and Effect on the Migration in a KBS-3 Type repository. European Commission cluster conference and workshop on Impact of the excavation disturbed or damaged zone (EDZ) on the performance of radioactive waste geological repositories, S. 149–155, 2003.
- /BAE 14/ Baeyens, B., Thoenen, T., Bradbury, M. H., Marques Fernandes, M.: Sorption Data Bases for Argillaceous Rocks and Bentonite for the Provisional Safety Analyses for SGT-E2. Hrsg.: NAGRA, Technischer Bericht, 12-04, 122 S.: Wetingen / Schweiz, 2014.

- /BAR 18/ Barrera, O., Bombac, D., Chen, Y., Daff, T. D., Galindo-Nava, E., Gong, P., Haley, D., Horton, R., Katzarov, I., Kermode, J. R., Liverani, C., Stopher, M., Sweeney, F.: Understanding and mitigating hydrogen embrittlement of steels: a review of experimental, modelling and design progress from atomistic to continuum. *Journal of materials science*, Bd. 53, Nr. 9, S. 6251–6290, DOI 10.1007/s10853-017-1978-5#Sec2, 2018.
- /BAR 20/ Bartos, O., Hummelsheim, K.: Entsorgung abgebrannter Brennelemente aus den Kernkraftwerken in der Bundesrepublik Deutschland, Ergebnisse der Länderrumfrage zum Stichtag 31.12.2019. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, 2020.
- /BAS 16/ Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung (BASE): Sicherheitsbericht für Bauarten von Versandstücken zur Beförderung radioaktiver Stoffe, Übersetzung des European PDSR Guide ISSUE 3 (Dezember 2014), Technischer Leitfaden. Salzgitter, 20. September 2016.
- /BAS 20/ Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung (BASE): 6. Änderungs- genehmigung zur Aufbewahrung von Kernbrennstoffen im Standort-Zwischenlager in Gundremmingen der BGZ Gesellschaft für Zwischenlagerung mbH. Erreichbar unter https://www.base.bund.de/SharedDocs/Downloads/BASE/DE/genuehmigungsunterlagen/zwischenlager-dezentral/krb-szl-6-aend.pdf?__blob=publicationFile&v=2, Stand vom 1. Oktober 2020.
- /BAU 00/ Baudoin, P., Gay, D., Certes, C., Serres, C., Alonso, J., Lührmann, L., Martens, K.-H., Dodd, D., Marivout, J., Vieno, T.: Spent fuel disposal Performance Assessment (SPA Project), Final Report. Hrsg.: European Commission (EC), European Union's European Atomic Energy Community's (Euratom), EUR 19132 EN, 114 S.: Luxembourg, 1. Januar 2000.
- /BAY 15/ Bayerischer Landtag: Abgebrannte Brennelemente des Forschungsreaktors FRM II. Schriftliche Anfrage und Antwort, Drucksache 17/7172, 24. Juli 2015.

- /BEC 20a/ Becker, D.-A., Bertrams, N., Bollingerfehr, W., Eickemeier, R., Flügge, J., Frenzel, B., Maßmann, J., Mayer, K.-M., Mönig, J., Mrugalla, S., Müller-Hoepe, N., Reinhold, K., Rübel, A., Schubarth-Engelschall, N., et al.: Grundlagen zur Bewertung eines Endlagersystems in einer Kristallingesteinsformation mit einer überlagernden Salzformation (K2), Ergebnisse aus dem Vorhaben RESUS, ENTWURF. BGE TECHNOLOGY GmbH, Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR), Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, 160 S.
- /BEC 04/ Bechthold, W., Smailos E., Heusermann, S., Bollingerfehr, W., Bazargan, B., Rothfuchs, T., Kamlot, P., Grupa, J., Olivella, S., Hansen, F. D.: Backfilling and Sealing of Underground Repositories for Radioactive Waste in Salt, BAMBUS-II Project. Hrsg.: European Commission (EC), 2004.
- /BEC 20b/ Becker, D.-A., Bertrams, N., Bollingerfehr, W., Eickemeier, R., Flügge, J., Frenzel, B., Maßmann, J., Mayer, K.-M., Mönig, J., Mrugalla, S., Müller-Hoepe, N., Reinhold, K., Rübel, A., Schubarth-Engelschall, N., et al.: Grundlagen zur Bewertung eines Endlagersystems in einer Kristallinsgesteinsformation mit mehreren einschlusswirksamen Gebirgsbereichen, RESUS. GRS-574, 186 S., ISBN 978-3-947685-60-8, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, 2020.
- /BEC 20c/ Becker, D.-A., Bertrams, N., Bollingerfehr, W., Frenzel, B., Krumpholz, M., Maßmann, J., Mayer, K.-M., Mönig, J., Müller-Hoepe, N., Reinhold, K., Rübel, A., Schubarth-Engelschall, N., Simo, E. K., Thiedau, J., Weber, J. R., Wolf, J.: Grundlagen zur Bewertung eines Endlagersystems in einer Kristallinsgesteinsformation mit Einschluss der Radionuklide durch technische und geotechnische Barrieren, RESUS. GRS-577, 186 S., ISBN 978-3-947685-63-9, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, 2020.
- /BER 20a/ Bertrams, N., Bollingerfehr, W., Eickemeier, R., Fahland, S., Flügge, J., Frenzel, B., Hammer, J., Kindlein, J., Liu, W., Maßmann, J., Mayer, K.-M., Mönig, J., Mrugalla, S., Müller-Hoepe, N., et al.: Grundlagen zur Bewertung eines Endlagersystems in flach lagernden Salzformationen, RESUS. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-568, 192 S., ISBN 978-3-947685-54-7: Köln, 2020.

- /BER 20b/ Bertrams, N., Bollingerfehr, W., Eickemeier, R., Fahland, S., Flügge, J., Frenzel, B., Hammer, J., Kindlein, J., Liu, W., Maßmann, J., Mayer, K.-M., Mönig, J., Mrugalla, S., Müller-Hoeppe, N., et al.: Grundlagen zur Bewertung eines Endlagersystems in steil lagernden Salzformationen, RESUS. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-569, 192 S., ISBN 978-3-947685-55-4: Köln, 2020.
- /BER 20c/ Bertrams, N., Bollingerfehr, W., Eickemeier, R., Fahland, S., Flügge, J., Frenzel, B., Hammer, J., Kindlein, J., Liu, W., Maßmann, J., Mayer, K.-M., Mönig, J., Mrugalla, S., Müller-Hoeppe, N., et al.: Grundlagen zur Bewertung eines Endlagersystems in flach lagernden Salzformationen bei einer höheren Auslegungstemperatur, RESUS. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-570, 192 S., ISBN 978-3-947685-56-1: Köln, 2020.
- /BEU 12/ Beuth, T., Bracke, G., Buhmann, D., Dresbach, C., Keller, S., Krone, J., Lommerzhelm, A., Mönig, J., Mrugalla, S., Rübel, A., Wolf, J.: Szenarienentwicklung, Methodik und Anwendung, Bericht zum Arbeitspaket 8, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben. Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR), DBE TECHNOLOGY GmbH (DBETEC), Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-284, 239 S., ISBN 978-3-939355-60-1, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 2012.
- /BFS 93/ Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Aufbewahrungsgenehmigung vom 17.06.1993 ET 3.1 - 2.4 nach § 6 Atomgesetz, für die Aufbewahrung von bestrahlten AVR-Brennelementen im AVR Behälterlager der Forschungszentrum Jülich GmbH. 17. Juni 1993.
- /BFS 97/ Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Sicherheitstechnische Bewertung des Zwischenlagers für abgebrannten Brennstoff der Energiewerke Nord GmbH für die Zeit bis einschließlich 2005, erstellt von der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit und TÜV Hannover/Sachsen-Anhalt im Auftrag des BFS, Dezember 1997. 1997.

- /BFS 99/ Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Aufbewahrungsgenehmigung für das Transportbehälterlager des Zwischenlagers Nord in Rubenow vom 05. November 1999. Erreichbar unter https://www.base.bund.de/SharedDocs/Downloads/BASE/DE/genehmigungsunterlagen/zwischenlager-zentral/zln-grundg.pdf;jsessionid=55F4B617F3BA4CE451F861662CE37240.1_cid365?__blob=publicationFile&v=1, Stand vom 11.1999.
- /BFS 02/ Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) (Hrsg.): Auswahlverfahren für Endlagerstandorte, Empfehlungen des AkEnd, Abschlussbericht. Arbeitskreis Auswahlverfahren Endlagerstandorte (AkEnd), 260 S.: Köln, Dezember 2002.
- /BFS 07/ Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Zulassungsschein D/4214/B(U)F-96 (Rev. 10) für ein Versandstückmuster des Typs B(U) für spaltbare radioaktive Stoffe (Transport- und Lagerbehälter CASTOR THTR/AVR). 27. März 2007.
- /BFS 16a/ Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Regelungsgehalt der Aufbewahrungsgenehmigung vom 07.11.1997 in der Fassung der 8. Änderungsgenehmigung vom 21.07.2016 für das Transportbehälterlager Ahaus. 2016.
- /BFS 16b/ Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Regelungsgehalt der Aufbewahrungsgenehmigung vom 07.11.1997 in der Fassung der 7. Änderungsgenehmigung vom 08.02.2016 für das Transportbehälterlager Ahaus (Nicht-amtliche Lesefassung). 2016.
- /BGE 20/ BGE - Bundesgesellschaft für Endlagerung: Referenzdatensätze zur Anwendung der geowissenschaftlichen Abwägungskriterien im Rahmen von § 13 StandAG, Grundlagen. 1. September 2020.
- /BGE 22a/ BGE - Bundesgesellschaft für Endlagerung: BGE tritt in die Diskussion über den Zeitplan bei der Endlagersuche ein, 11. November 2022: Die BGE hat erste zeitliche Abschätzungen zum weiteren Verfahren der Standortauswahl zusammengetragen und diskutiert diese jetzt mit dem BMUV und dem BASE. Erreichbar unter <https://www.bge.de/de/aktuelles/meldungen-und-pressemitteilungen/meldung/news/2022/11/bge-tritt-in-die-diskussion-ueber-den-zeitplan-bei-der-endlagersuche-ein/>, Stand von 2022.

- /BGE 22b/ BGE - Bundesgesellschaft für Endlagerung: Eigenschaften und Potential stratiformer Salz-Formationen für die Endlagerung hochradioaktiver Abfälle. 2022.
- /BIL 13a/ Billone, M. C., Liu, Y.: Ductile-to-Brittle Transition Temperatures for High-Burnup PWR Cladding Alloys. U.S. NWTRB Winter Meeting, Argonne National Laboratory, erreichbar unter <https://www.nwtrb.gov/docs/default-source/meetings/2013/november/billone.pdf?sfvrsn=7>, abgerufen am 16. September 2020.
- /BIL 13b/ Billone, M., Burtseva, T., Han, Z., Liu, Y.: Embrittlement and DBTT of High-Burnup PWR Fuel Cladding Alloys, Used Fuel Disposition Campaign. Argonne National Laboratory, ANL-13/16, FCRD-UFD-2013-000401, 65 S., 30. September 2013.
- /BIL 16/ Billone, M. C., Burtseva, T.: Effects of Lower Drying-Storage Temperature on the Ductility of High-Burnup PWR Cladding, Used Fuel Disposition Campaign. Argonne National Laboratory, ANL 16/16, FCRD-UFD-2016-000065, 30. August 2016.
- /BIR 16/ Birgersson, L.: The barriers in the KBS-3 repository in Forsmark. Hrsg.: Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB), Public Report, Januar 2016.
- /BMU 10a/ Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU): Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle. 22 S.: Bonn, 30. September 2010.
- /BMU 10b/ BMU - Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU): Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle. Hrsg.: BMU, 2010.
- /BMU 20/ Verordnung über Sicherheitsanforderungen und vorläufige Sicherheitsuntersuchungen für die Endlagerung hochradioaktiver Abfälle (Endlagersicherheitsanforderungsverordnung - EndLSiAnfV) vom 6. Oktober 2020 (BGBl. I S. 2094).

- /BMV 19/ Bundesamt für Verkehr und digitale Infrastruktur (BMVI): Richtlinie für das Verfahren der Bauart-Zulassung von Versandstücken zur Beförderung radioaktiver Stoffe, von radioaktiven Stoffen in besonderer Form, von gering dispergierbaren radioaktiven Stoffen und von freigestellten spaltbaren Stoffen - R 003 -, Richtlinie R 003. VkBli. 2004, VkBli. Heft 18, 17. September 2019.
- /BOL 08/ Bollingerfehr, W., Filbert, W., Pöhler, M., Tholen, M., Wehrmann, J.: Konzeptionelle Endlagerplanung und Zusammenstellung des endzulagernden Inventars, Überprüfung und Bewertung des Instrumentariums für eine sicherheitliche Bewertung von Endlagern für HAW (Projekt ISIBEL), Arbeitspaket AP 1.2. Hrsg.: DBE Technology GmbH, FKZ 02 E 10065: Peine, April 2008.
- /BOL 11a/ Bollingerfehr, W., Herklotz, M., Herzog, C., Jobmann, M., Lommerzheim, A., Weiß, E., Wolf, J., Ziegenhagen, J., Hammer, J., Sönke, J., Mingerzahn, G.: Entwicklung und Umsetzung von technischen Konzepten für Endlager in tiefen geologischen Formationen in unterschiedlichen Wirtsgesteinen (EUGENIA), Synthesebericht, FKZ 02 E 10346. DBE TECHNOLOGY GmbH (DBETEC), Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR), TEC-29-2008-AB, 183 S.: Peine, November 2011.
- /BOL 11b/ Bollingerfehr, W., Filbert, W., Lerch, C., Tholen, M.: Endlagerkonzepte, Bericht zum Arbeitspaket 5, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben. DBE TECHNOLOGY GmbH (DBETEC), GRS-272, 187 S., ISBN 978-3-939355-48-9, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 2011.
- /BOL 12/ Bollingerfehr, W., Filbert, W., Dörr, S., Herold, P., Lerch, C., Burgwinkel, P., Charlier, F., Thomauske, B., Bracke, G., Kilger, R.: Endlagerauslegung und -optimierung, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben, Bericht zum Arbeitspaket 6. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-281, 285 S.: Köln, 2012.
- /BOL 14/ Bollingerfehr, W., Herold, P., Dörr, S., Filbert, W.: Auswirkungen der Sicherheitsanforderung Rückholbarkeit auf existierende Einlagerungskonzepte und Anforderungen an neue Konzepte, Abschlussbericht, BMWi-Vorhaben, FKZ 02E11112. DBE TECHNOLOGY GmbH (DBETEC), TEC-21-2013-AB, 140 S.: Peine, Februar 2014.

- /BOL 17/ Bollingerfehr, W., Buhmann, D., Dörr, S., Filbert, W., Gehrke, A., Heemann, U., Keller, S., Krone, J., Lommerzheim, A., Mönig, J., Mrugalla, S., Müller-Hoeppe, N., Rübel, A., Weber, J. R., Wolf, J.: Evaluation of methods and tools to develop safety concepts and to demonstrate safety for an HLW repository in salt (KOMTESSA), Final Report, FKZ 02E10719 & 02E10729. DBE TECHNOLOGY GmbH (DBETEC), TEC-03-2017-AB, 256 S.: Peine, März 2017.
- /BOS 17/ Bossart, P., Bernier, F., Birkholzer, J., Bruggeman, C., Connolly, P., Dewonck, S., Fukaya, M., Herfort, M., Jensen, M., Matray, J.-M., C, a. J., Moeri, A., Oyama, T.: Mont Terri rock laboratory, 20 years of research: introduction, site characteristics and overview of experiments. Swiss Journal of Geosciences, Nr. 110, S. 3–22, 2017.
- /BOT 13/ Botsch W., Smalian S., Hinterding P., Völzke H., Wolff D, Kasperek E.: Dual Purpose Cask Safety Evaluation - Expertise in Dry Storage, Paper 180, PATRAM 2013. San Francisco, USA, August 2013.
- /BRÜ 01/ Brücher, H., Curtius, H., Fachinger, J.: R&D for back-end options for irradiated research reactor fuel in Germany. Präsentation, Transactions 5th Topical Meeting on Research Reactor Fuel Management: Aachen, Germany, 1. - 3. April 2001.
- /BRÜ 07/ Brücher, H., Curtius, H.: Investigations into the behaviour of research reactor fuel elements in repository relevant aquatic phases. Präsentation, Transactions 11th International Topical Meeting Research Reactor Fuel Management (RRFM) and Meeting of the International Group on Reactor Research (IGORR): Lyon, France, 11. - 15. März 2007.
- /BUH 08/ Buhmann, D., Mönig, J., Wolf, J. W.: Untersuchung zur Ermittlung und Bewertung von Freisetzungsszenarien, Teilbericht zum Projekt ISIBEL: Überprüfung und Bewertung des Instrumentariums für eine sicherheitliche Bewertung von Endlagern für HAW. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-233, 115 S., ISBN 978-3-939355-07-6: Köln, 2008.
- /BUK 12/ Bukaemskiy, A., Fachinger, J., Bosbach, D.: Physical properties and leaching behaviour of spent fuel BISO coated particles. Progress in Nuclear Energy, Bd. 57, S. 161–164, 2012.

- /BUN 97/ Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Statusbericht über die Rossendorfer Forschungsreaktoren, KT-IB-54, Interne KT-Berichte. 1997.
- /BUN 05/ Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Bundesamt für Strahlenschutz, Zulassungsschein D/4315/B(U)F-85 (Rev. 6) für ein Versandstückmuster des Typs B(U) für spaltbare radioaktive Stoffe (Transport- und Lagerbehälter CASTOR MTR 2). 18. Oktober 2005.
- /BUN 10/ Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): 7. Änderungsgenehmigung, zur Aufbewahrungsgenehmigung vom 05.11.1999 für das Transportbehälterlager des Zwischenlagers Nord (ZLN) in Rubenow, Az.: SE-1.3 - 85375 18. 30. April 2010.
- /BUN 16/ Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Stand der Genehmigungsverfahren, Informationen zum AVR-Behälterlager bei Jülich. Nukleare Entsorgung, Stand vom 21. Juli 2016, erreichbar unter <http://www.bfs.de/DE/themen/ne/zwischenlager/dezentral/genehmigung/kkj.html>, abgerufen am 7. Oktober 2016.
- /BUN 18/ Bundesanzeiger: Otto Hahn. 2018.
- /BUR 81/ Burns, W. G., Sims, H. E.: Effect of radiation type in water radiolysis. J. Chem. Soc., Faraday Trans. 1, Bd. 77, Nr. 11, S. 2803, DOI 10.1039/f19817702803, 1981.
- /CAR 97/ Carbol, P., Engkvist, I.: Compilation of radionuclide sorption coefficients for performance assessment. SKB Rapport, R-97-13, 77 S.: Sweden, 1997.
- /CHE 18/ Chernyayeva, T. P., Grytsyna, V. M., Krasnorutskyy, V. S., Redkina, A. P., Petelguzov, I. A., Slabospitskaya, Y. A.: Effects of Zr-1% Nb fuel rod cladding temperature and stressed conditions on hydride orientation. Problem of Atomic Science and Technology, Nr. 1, S. 189–202, 2018.
- /CHO 13/ Choppin, G., Liljenzin, J.-O., Rydberg, J., Ekberg, C.: Chapter 8 - Radiation Effects on Matter. In: Choppin, G., Liljenzin, J.-O., Rydberg, J., Ekberg, C., RYDBERG, J. (Hrsg.): Radiochemistry and nuclear chemistry. 4. Aufl., S. 209–237, ISBN 978-0-12-405897-2, DOI 10.1016/B978-0-12-405897-2.00008-2, Elsevier Science: Amsterdam, 2013.

- /CHR 98/ Christensen, H., Sunder, S.: Current State of Knowledge in Radiolysis Effects on Spent Fuel Corrosion, Studsvik Report. 47 S., 1998.
- /CHU 00/ Chung H. M: Hydride-Related Degradation of Spent-Fuel Cladding Under Repository Conditions. Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXIII, Nr. 608, S. 17–22, 2000.
- /CHW 01/ Chwaszczewski, S., Czajkowski, W., Borek-Kruszewska, E., Matysiak, T., Madry, M.: Management and Physical Assessment of the Spent Fuel from Research Reactors in Poland, 5th International Topical Meeting on Research Reactor Fuel Management, Aachen, Germany. 1507-5478, 87-88, 2001.
- /COG 86/ COGEMA (Hrsg.): Specifications of Vitrified Residues Produced from Reprocessing at UP2 or UP3-A La Hague Plants. Branche Retraitement, Second Series, Juli 1986.
- /COG 03/ COGEMA: BOOKLET CSD-C, Note Technique NT/0083 48/SQY/01.007 Rev. 03, Pièces jointes: Document à utiliser avec: Modification(s) de la présente révision: Addition of a section about safety-criticality and minor corrections. 13. Oktober 2003.
- /CRA 01/ Cragnolino, G. A., Brossia, C. S., Dunn D. S., Greene C. A.: General and Localized Corrosion of Zircaloy Under High-Level Radioactive Waste Disposal Conditions. 10th National Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors, 2001.
- /CUR 02/ Curti, E., Wersin, P.: Assessment of porewater chemistry in the bentonite backfill for the Swiss SF / HLW repository. Hrsg.: NAGRA, Nagra Technischer Bericht, 02-09: Wettingen / Switzerland, 2002.
- /CUR 05/ Curtius, H., Brücher, H.: R&D for the final disposal of irradiated research reactor fuel elements. Präsentation, 9th International Topical Meeting on Research Reactor Fuel Management: Budapest, Hungary, 10. - 13. April 2005.
- /CUR 06/ Curtius, H., Kaiser, G., Paparigas, Z., Ufer, K., Müller, E., Enge, R., Brücher, H.: Untersuchungen zum Verhalten von Forschungsreaktor-Brennelementen (FR-BE) in den Wirtsgesteinsformationswässern möglicher Endlager. Berichte des Forschungszentrums Jülich, Nr. 4237, 2006.

- /CUR 10/ Curtius, H., Kaiser, G., Paparigas, Z., Hansen, B., Neumann, A., Klinkenberg, M., Müller, E., Brücher, H., Bosbach, D.: Wechselwirkung mobilisierter Radionuklide mit sekundären Phasen in endlagerrelevanten Formationswässern. Berichte des Forschungszentrums Jülich, Nr. 4333, 2010.
- /CUR 11/ Curtius, H., Kaiser, G., Müller, E., Bosbach, D.: Radionuclide release from research reactor spent fuel. Journal of Nuclear Materials, Nr. 416, S. 211–215, 2011.
- /CUR 15/ Curtius, H., Bosbach, D., . Deissmann, G.: Corrosion of spent fuel from research and prototype reactors under conditions relevant to geological disposal. Präsentation, Key Topics in Deep Geological Disposal: Conference Report, KIT Scientific Reports, 2015.
- /DAV 00/ Davis, J. R.: Corrosion: Understanding the basics. Asm International, 2000.
- /DBE 08/ DBE Technology GmbH: Untersuchungen zur direkten Endlagerung von Transport- und Lagerbehältern (TLB), AP2: Aspekte zur Beurteilung der Notwendigkeit von Anpassungsmaßnahmen an die TLB für die Endlagerung. Peine, 2008.
- /DBE 11/ DBE Technology GmbH: Status quo der Lagerung ausgedienter Brennelemente aus stillgelegten/rückgebauten deutschen Forschungsreaktoren und Strategie (Lösungsansatz) zu deren künftigen Behandlung/Lagerung, LABRADOR Abschlussbericht, FKZ 02 S 8679. Dezember 2011.
- /DEI 16/ Deissman, G., Haneke, K., Andre F., Wiegers. R.: Corrosion behaviour of spent research reactor Fuel under OPERA repository conditions. Nr. OPERA-PU-IBR511B, 2016.
- /DEU 11/ Deutscher Bundestag, 17. Wahlperiode: Antwort der Bundesregierung auf die Kleine Anfrage der Abgeordneten Dorothee Menzner, Dr. Barbara Höll, Herbert Behrens, weiterer Abgeordneter und der Fraktion DIE LINKE. – Drucksache 17/6525 –, Forschungsreaktor BER-II. 17. Aufl., 25. Juli 2011.
- /DJA 14/ Djambazov, P.: Theoretische und experimentelle Untersuchungen der Frühstadien bei der wässrigen Korrosion von Silicatgläsern. Dissertation, 91 S., Rheinisch-Westfälische Technische Hochschule Aachen, 2014.

- /DOE 12a/ U.S. Department of Energy: Gap Analysis to Support Extended Storage of Used Nuclear Fuel Rev. 0, FCRD-USED-2011-000136 Rev. 0 PNNL-20509. 31. Januar 2012.
- /DOE 12b/ U.S. Department of Energy: Review of Used Nuclear Fuel Storage and Transportation Technical Gap Analyses, Used fuel disposition campaign. FCRD-USED-2012-000215, 31. Juli 2012.
- /DOE 19/ U.S. Nuclear Regulatory Commission: Managing Aging Processes In Storage (MAPS) Report, NUREG-2214. März 2019.
- /DOR 19/ Dores D. R. S, Souza L. C, Giehl J. M., Ludwig V., Z.M. Da Costa: Blucher Proceedings X Encontro Científico de Física Aplicada Effect of thermal treatment on morphological properties of borosilicates glass doped with silver. 2019.
- /DÖR 12/ Dörr, S., Bollingerfehr, W., Filbert, W., Tholen, M.: In das Endlager eingebrachte Inventare an Metallen, Organika und weiteren Stoffen, Memo im Arbeitspaket 5, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben. DBE TECHNOLOGY GmbH (DBETEC), 65 S.: Peine, Oktober 2012.
- /DRO 15/ Droste B., Komann S., Wille F., Probst U.: Consideration of aging mechanism influence on Transport safety of dual purpose casks for spent fuel or HLW. Hrsg.: Packaging Transport Storage and Security of Radioactive Material, DOI 10.1179/1746510914Y.0000000070, Juni 2015.
- /DRU 19/ Druyts, F., Caes, S.: Corrosion of metals in category B&C waste, A review of literature data. Hrsg.: Studiecentrum voor Kernenergie - SCK CEN: Belgium, 2019.
- /DUG 77/ Duguid, J., Lee, R.: Flow in Fractured Porous Media. Water Resources Research, Bd. 13, Nr. 3, 1977.
- /EDE 15/ Edenhofer, B., Joritz, D., Rink, M., Voges, K.: Carburizing of steels. In: Thermochemical Surface Engineering of Steels. S. 485–553, ISBN 9780857095923, DOI 10.1533/9780857096524.3.485, Elsevier, 2015.

- /ELL 10/ Ellinger, A., Geupel, S., Gewehr, K., Gmal, B., Hannstein, V., Hummelsheim, K., Kilger, R., Wagner, M., Schmidt, G.: Sicherheitstechnische Aspekte der langfristigen Zwischenlagerung von bestrahlten Brennelementen und verglastem HAW, Abschlussbericht zum Vorhaben 3607R02599. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, Öko-Institut e.V., GRS-A-3597, 423 S., April 2010.
- /ENG 95/ Engelmann, H.-J., Biurrun, E., Hubert, R., Pohler, M.: Direkte Endlagerung ausgedienter Brennelemente DEAB (02 E 8371), Untersuchung zur Rückholbarkeit von eingelagertem Kernmaterial in der Nachbetriebsphase eines Endlagers. Hrsg.: Deutsche Gesellschaft zum Bau und Betrieb von Endlagern für Abfallstoffe mbH (DBE), DEAB T 57, 76 S.: Peine, Februar 1995.
- /ENS 09/ Eidgenössisches Nuklearsicherheitsinspektorat (ENSI): Spezifische Auslegungsgrundsätze für geologische Tiefenlager und Anforderungen an den Sicherheitsnachweis., Richtlinie für die schweizerischen Kernanlagen. Richtlinie für die schweizerischen Kernanlagen, G03/d, 21 S.: Brugg, April 2009.
- /ENS 10/ Eidgenössisches Nuklearsicherheitsinspektorat (ENSI): Sicherheitstechnisches Gutachten zum Vorschlag geologischer Standortgebiete, Sachplan geologische Tiefenlager, Etappe 1. ENSI, 33/070, 196 S.: Brugg, Januar 2010.
- /ENS 12/ Eidgenössisches Nuklearsicherheitsinspektorat (ENSI): Geologisches Tiefenlager, Radioaktive Abfälle sicher entsorgen. 36 S.: Brugg, Schweiz, 2012.
- /ENS 17/ Eidgenössisches Nuklearsicherheitsinspektorat (ENSI) (Hrsg.): Sicherheitstechnisches Gutachten zum Vorschlag der in Etappe 3 SGT weiter zu untersuchenden geologischen Standortgebiete, Sachplan geologische Tiefenlager Etappe 2. ENSI, 33/540, 286 S.: Brugg, Schweiz, April 2017.
- /ESK 13/ Entsorgungskommission (ESK): Leitlinien für die trockene Zwischenlagerung bestrahlter Brennelemente und Wärme entwickelnder radioaktiver Abfälle in Behältern (Revidierte Fassung vom 10.06.2013), Empfehlung. RSK/ESK Geschäftsstelle beim Bundesamt für Strahlenschutz, 40 S., 2013.

- /ESK 14/ Entsorgungskommission (ESK): ESK-Leitlinien zur Durchführung von periodischen Sicherheitsüberprüfungen und zum technischen Alterungsmanagement für Zwischenlager für bestrahlte Brennelemente und Wärme entwickelnde radioaktive Abfälle, EMPFEHLUNG. Entsorgungskommission, ESK, 11 S., 2014.
- /ESK 15/ Entsorgungskommission (ESK): Diskussionspapier zur verlängerten Zwischenlagerung bestrahlter Brennelemente und sonstiger Wärme entwickelnder radioaktiver Abfälle. Diskussionspapier der Entsorgungskommission, 24 S., 29. Oktober 2015.
- /ESK 19/ Entsorgungskommission (ESK): Sicherheitskonzeptionelle Anforderungen an das Barrierensystem eines Endlagers für hoch radioaktive Abfälle und deren Umsetzbarkeit. Stellungnahme der Entsorgungskommission, 33 S.: Bonn, 21. Februar 2019.
- /ESK 21/ Entsorgungskommission (ESK): Diskussionspapier zur Kontroverse um die Verwendung kupferbeschichteter Behälter für die Endlagerung hochradioaktiver Abfälle. 16. April 2021.
- /ESK 23/ Entsorgungskommission (ESK): Verlängerte Zwischenlagerung bestrahlter Brennelemente und sonstiger hochradioaktiver Abfälle in Abhängigkeit von der Auswahl des Endlagerstandorts. Erreichbar unter https://www.entsorgungskommission.de/sites/default/files/reports/ESK_Positionspapier_verlaengerte_ZL_40plus_ESK105_23032023.pdf, abgerufen am 31. Oktober 2023.
- /EUR 20/ European Union's Horizon 2020: DISCO - Modern Spent Fuel Dissolution and Chemistry in Failed Container Conditions. Erreichbar unter <https://www.disco-h2020.eu/Home/Objectives>, Stand von 2020.
- /EVE 80/ Evenson, D. E., Dettinger, M. D.: Dispersive Processes in Models of Regional Radionuclide Migration. University of California, Lawrence Livermore Laboratory, 1980.
- /EWN 20/ EWN GmbH: CASTOREN bei EWN, Bauarten und Inventare. Erreichbar unter https://www.ewn-gmbh.de/fileadmin/user_upload/EWN/Projekte/ESTRAL/Dokumente/Castoren_bei_EWN_Web.pdf, abgerufen am 15. August 2023.

- /FAC 98/ Fachinger, J., Brücher H., Duwe R.: R&D on Intermediate Storage and Final Disposal of Spent HTR Fuel. Nr. IAEA-TECDOC-1043., 1998.
- /FAC 00/ Fachinger, J., Curtius, H.: Long term behavior of direct disposed MTR fuel elements in saline brines. Applied Minerology in Research, Economy, Technology, Ecology and Culture, S. 531–534, 2000.
- /FAC 06/ Fachinger, J., Exter, M. den, Grambow, B., Holgersson, S., Landesman, C., Titov, M., Podruhzina, T.: Behaviour of spent HTR fuel elements in aquatic phases of repository host rock formations. Nuclear Engineering and Design, Bd. 236, Nr. 5-6, S. 543–554, DOI 10.1016/j.nucengdes.2005.11.023, 2006.
- /FAC 11/ Fachinger, J., Curtius, H.: Long term behavior of direct disposed MTR fuel elements in saline brines, in: Rammlmaier D, Mederer J, Oberthür T, Heimann RB, Pentinghaus H (eds). In: GRS - Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) (Hrsg.): Microbial Processes for Longterm Performance of Radioactive Waste Repositories in Clays, GRS-291. GRS, 2011.
- /FAß 17a/ Faß, T., Bracke, G., Hartwig-Thurat, E., Krischer, A., Lambers, L., Larue, P.-J., Uhlmann, S., Weyand, T.: Anforderungen an aktuelle Endlagerkonzepte für unterschiedliche Wirtsgesteinsformationen, Abschlussbericht zum Vorhaben 3616E03200. GRS-471, 74 S., ISBN 978-3-946607-54-0, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Köln, August 2017.
- /FAß 17b/ Faß, T.: Endlagerkonzepte im Kristallin (Schweden), Anforderungen an aktuelle Endlagerkonzepte für unterschiedliche Wirtsgesteinsformationen, Bericht zum Arbeitspaket 1. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-471 Anhang 4, 44 S.: Köln, August 2017.
- /FIS 13/ Fischer-Appelt, K., Baltes, B., Buhmann, D., Larue, P.-J., Mönig, J.: Synthesebericht für die VSG, Bericht zum Arbeitspaket 13, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben. GRS-290, 424 S., ISBN 978-3-939355-66-3, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 2013.
- /FOU 17/ Fournier, M., Gin, S., Frugier, P., Mercado-Depierre, S.: Contribution of zeolite-seeded experiments to the understanding of resumption of glass alteration. npj Materials Degradation, Bd. 1, Nr. 1, DOI 10.1038/s41529-017-0018-x, 2017.

- /FOU / Fournier, M., Gin, S. Frugier, P: Resumption of nuclear glass alteration: State of the art. Journal of Nuclear Materials. In: Journal of Nuclear Materials. Nr. 448, S. 348–363.
- /FRA 90/ Fraker, A. C., Harris J. S.: Corrosion Behavior of Zirconium Alloy Nuclear Fuel Cladding. Scientific Basis for Nuclear Waste Management XIII, Nr. 176, S. 549–556, 1990.
- /FRA 18/ Frankel, G. S., Vienna, J. D., Lian, J., Scully, J. R., Gin, S., Ryan, J. V., Wang, J., Kim, S. H., Windl, W., Du, J.: A comparative review of the aqueous corrosion of glasses, crystalline ceramics, and metals. npj Materials Degradation, Bd. 2, Nr. 1, DOI 10.1038/s41529-018-0037-2, 2018.
- /FRU 08/ Frugier, P., Gin, S., Minet, Y., Chave, T., Bonin, B., Godon, N., Lartigue, J.-E., Jollivet, P., Ayral, A., Windt, L. de, Santarini, G.: SON68 nuclear glass dissolution kinetics: Current state of knowledge and basis of the new GRAAL model, Journal of Nuclear Materials, 380(1-3), 8-21. DOI 10.1016/J.JNUCMAT.2008.06.044, 2008.
- /FUJ 99/ Fujisawa, R., Kurashige, T., Inagaki, Y. and Senoo, M.: Gas generation behavior of transuranic waste under disposal conditions. Materials Research Society Symposium Proceedings, Nr. 556, S. 1199–1206, 1999.
- /FZJ 98/ FZJ - Forschungszentrum Jülich: Wasserstoffbildung durch Metallkorrosion, JÜL - 3495. Jülich, 1998.
- /FZJ 99/ FZJ - Forschungszentrum Jülich: Referenzkonzept zur direkten Endlagerung von abgebrannten HTR-Brennelementen in CASTOR THTR/AVR Transport- und Lagerbehältern, Abschlussbericht, JÜL-3734. Jülich, 1999.
- /FZJ 11/ Forschungszentrum Jülich GmbH (FZJ): Verbleib der AVR-Brennelementkugeln, Pressemitteilung. Jülich, April 2011.
- /GES 95/ Gesellschaft für Nuklear-Behälter (GNB): Antragsunterlagen für den Transport- und Lagerbehälter CASTOR MTR 2 im Genehmigungsverfahren nach § 6 AtG für das Transportbehälterlager Ahaus, GNB B 86/95 und GNB B 68/98. 1995.

- /GES 11/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Abfallspezifikation und Mengengerüst, Basis Ausstieg aus der Kernenergienutzung (Juli 2011) Bericht zum Arbeitspaket 3; GRS 278, Vorläufige Sicherheitsanalyse Gorleben. Juli 2011.
- /GES 20/ Gesellschaft für Nuklear-Service mbH (GNS): Darstellung der getroffenen Entsorgungsmaßnahmen für die nach Deutschland rückzuführenden radioaktiven Abfälle aus der Wiederaufarbeitung bestrahlter Brennelemente in den Anlagen der Orano in La Hague (F) und der NDA in Sellafield (UK), Stand 31.12.2019. GNS B 038/2020, 30. Januar 2020.
- /GES 98/ Gesellschaft für Nuklear Service mbH (GNS), Brennelement-Zwischenlager Ahaus GmbH (BZA): Präzisierung der Antrags- und Spezifikationswerte für den CASTOR MTR 2 und die VKTA-Inventare, Schreiben GNS an BfS Salzgitter vom 13.07.1998. 1998.
- /GIE 94/ Gies, H., Gresner, H., Herbert, H.-J., Jockwer, N., Mittelstädt, R., Mö-nig, J. & Nadler, F.: Das HAW-Projekt Versuchseinlagerung hochradioaktiver Strahlenquellen im Salzbergwerk Asse. Stoffbestand und Petrophysik des Steinsalzes im HAW-Feld (Asse, 800-m-Sohle)., GSF-Bericht 94/16. Hrsg.: Gesellschaft für Strahlenforschung, Institut für Tieflagerung Neuherberg, 1994.
- /GIN 13/ Gin, S., Abdelouas, A., Criscenti, L. J., Ebert, W. L., Ferrand, K., Geisler, T., Harrison, M. T., Inagaki, Y., Mitsui, S., Mueller, K. T., Marra, J. C., Pantano, C. G., Pierce, E. M., Ryan, J. V., et al.: An international initiative on long-term behavior of high-level nuclear waste glass. *Materials Today*, Bd. 16, Nr. 6, S. 243–248, DOI 10.1016/j.mattod.2013.06.008, 2013.
- /GIN 16/ Gin, S., Neill, L., Fournier, M., Frugier, P., Ducasse, T., Tribet, M., Abdelouas, A., Parruzot, B., Neeway, J., Wall, N.: The controversial role of inter-diffusion in glass alteration. *Chemical Geology*, Bd. 440, S. 115–123, DOI 10.1016/j.chemgeo.2016.07.014, 2016.
- /GKS 81/ GKSS-Forschungszentrum Geesthacht GmbH: NS OTTO-OAHN, Erstes deutsches Kernenergieschiff, GKSS 81/E/20. 1981.

- /GNS 06/ Gesellschaft für Nuklear-Service mbH (GNS): Technische Annahmebedingungen für die Einlagerung von Transport und Lagerbehältern CASTOR V/19 ab Seriennummer 06 im Zwischenlager Kernkraftwerk Brokdorf (ZL-KBR). BEP 03-0149, 13. Dezember 2006.
- /GRA 96/ Grambow, B., Loida, A., Dressler, P., Geckeis, H., Gago, J., Casas, I., Pablo, J. de, Gimenez, J., Torrero, M. E.: Long-term safety of radioactive waste disposal: chemical reaction of fabricated and high burnup spent UO_2 fuel with saline brines. Final report, FKZA 5702. DOI 10.5445/IR/270039233, Karlsruhe, 1996.
- /GRA 97/ Grambow, B.: HAW-Glas: Auslaugverhalten und Freisetzung von Radionukliden, Statusbericht 1997. Hrsg.: Forschungszentrum Karlsruhe, 1997.
- /GRA 98/ Grambow, B., Loida, A., Smailos, E.: Long-Term Stability of Spent Nuclear Fuel Waste Packages in Gorleben Salt Repository Environments. Nuclear Technology, Bd. 121, Nr. 2, S. 174–188, DOI 10.13182/NT98-A2830, 1998.
- /GRA 06a/ Grambow, B.: Nuclear Waste Glasses - How Durable? Elements, Bd. 2, Nr. 6, S. 357–364, DOI 10.2113/gselements.2.6.357, 2006.
- /GRA 06b/ Graffunder, I., Vallentin, R., Drawe, A., Schreiner, P., Brauer, D.: Rückholung und Zwischenlagerung der Kernbrennstoffe aus der kompakten natriumgekühlten Kernreaktoranlage KNK II (Karlsruhe). In: Deutsches Atomforum e.V. (DAtF), Kerntechnische Gesellschaft e.V.: Jahrestagung Kerntechnik 2006, Annual Meeting on Nuclear Technology 2006. Aachen, 16. - 18. Mai 2006, S. 637–640, Inforum GmbH, Mai 2006.
- /GRE 19/ Grelle, T., Probst, U., Wolff, D., Jaunich, M., Völzke, H.: Investigation on the long-term Behaviour of Metal Seals for Dual Purpose Casks, PATRAM 2019. New Orleans, USA, August 2019.
- /GRS 99/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Sicherheitstechnische Analyse zur gemeinsamen Lagerung von CASTOR-Behältern mit unbestrahlten SNR-300 Brennelementen und CASTOR-Behältern mit abgebrannten HTR- und LWR-Brennelementen. Mai 1999.

- /GRS 11/ GRS - Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) (Hrsg.): Microbial Processes for Longterm Performance of Radioactive Waste Repositories in Clays, GRS-291. GRS, 2011.
- /GRS 13/ Navarro, M.: Die vereinfachte Berechnung der Konvergenzrate salzgrusverfüllter Hohlräume im Steinsalz. Hrsg.: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS -307, 2013.
- /GRS 19/ Bracke, G., Hartwig-Thurat, E., Larue, J., Meleshyn, A., Weyand, T.: Untersuchungen zu den "maximalen physikalisch möglichen Temperaturen" gemäß § 27 StandAG im Hinblick auf die Grenztemperatur an der Außenfläche von Abfallbehältern. Hrsg.: Bundesamt für kerntechnische Entsorgungssicherheit (BfE), Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, urn:nbn:de:0221-2019111520402 / BfE-RESFOR-003/19 / GRS-A-3948, 321 S.: Köln, Januar 2019.
- /GUE 96/ Guenther, R. J., et al.: Initial Evaluation of Dry Storage Issues for Spent Nuclear Fuels in Wet Storage at the Idaho Chemical Processing Plant. Idaho National Engineering and Environmental Laboratory, 1996.
- /GUO 20/ Guo, X., Gin, S., Liu, H., Ngo, D., Luo, J., Kim, S. H., Mohanty, C., Vienna, J. D., Ryan, J. V., Frankel, G. S.: Near-field corrosion interactions between glass and corrosion resistant alloys. npj Materials Degradation, Bd. 4, Nr. 1, DOI 10.1038/s41529-020-0114-1, 2020.
- /HAN 17/ Hanson, B., Alsaed, H.: Extended Storage and Transportation Gap Analysis Update – 5 Year Delta, SFWST Annual Group Meeting, UNLV. 23. Mai 2017.
- /HAN 19/ Hanson, B.: International Multi-Modal Surrogate Spent Nuclear Fuel Transportation Test: The SNF Transportation Test Triathlon. U.S. Department of Energy, AEATechnical Meeting Technical and Operational Issues Related to the Transportation of High-Burnup and Irradiated Mixed Oxide Fuels and the Transportability of Long-Term Stored Spent Fuel: Vienna, Austria, 24. September 2019.
- /HAR 14/ Harrison, M., T. (Hrsg.): Vitrification of High Level Waste in the UK. 2nd International Summer School on Nuclear Glass Wasteform SumGLASS 2013, Birmingham, 2014.

- /HEL 11/ Helmut, F., Eberhard, T.: Fuel Management in EWN. Präsentation, EWN GmbH, 2011.
- /HER 08/ Herzog, C.: Entwicklung und Umsetzung von technischen Konzepten für geologische Endlager in allen Wirtsgesteinen - EUGENIA -, AP 1+2 - Zusammenstellung internationaler Konzepte zur Endlagerung in tiefen Gesteinsformationen und zugehöriger Sicherheitskonzepte. DBE TECHNOLOGY GmbH (DBETEC), TEC-26-2008-AP, 70 S.: Peine, September 2008.
- /HER 20/ Herold C., Pérez T., Völzke H., Wolff D.: FuE-Verbundvorhaben KoBrA, Anforderungen und Konzepte für Behälter zur Endlagerung von Wärme entwickelnden radioaktiven Abfällen und ausgedienten Brennelementen in Steinsalz, Tonstein und Kristallingestein. Hrsg.: BAM, BAM 3.4/3205-2, 2020.
- /HES 86/ Hesse U., Denk W., Deitenbeck H.: OREST- eine direkte Kopplung von HAMMER und ORIGEN zur Abbrandsimulation von LWR-Brennstoffen, GRS 063. 1986.
- /HES 94/ Hesse U.: OREST-Rechnungen für ein WWER-440-Brennelement, GRS-A-2121. Januar 1994.
- /HOL 00/ Holz, M., Heil, S. R., Sacco, A.: Temperature-dependent self-diffusion coefficients of water and six selected molecular liquids for calibration in accurate 1H NMR PFG measurements. Physical Chemistry Chemical Physics, Bd. 2, S. 4740–4742, DOI 10.1039/b005319h, 2000.
- /HÜG 19/ Hüggenberg, R.: Behälterspezifische Bewertung der verlängerten Zwischenlagerung und des Abtransports nach der verlängerten Zwischenlagerung aus Sicht der GNS, BGZ-Fachworkshop Zwischenlagerung/Berlin. 22. Oktober 2019.
- /HUM 15/ Hummelsheim, K., Rowold, F., Kilger, R., Geupel, S., Völzke, H., Wolff, D., Neles, J., Spieth-Achnich, A.: Sicherheitstechnische Fragen der längerfristigen Zwischenlagerung bestrahlter Brennelemente und verglaster hochradioaktiver Abfälle, Abschlussbericht des Vorhabens 3612R03300. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, Öko-Institut e.V., GRS- A- 3824, 281 S., September 2015.

- /HUM 18/ Hummelsheim, K., Rowold, F., Neles, J., Spieth-Achtnich, A., Völzke, H., Spykman, G.: Neue Entwicklungen bei der längerfristigen trockenen Zwischenlagerung von abgebrannten Brennelementen und verglasten hochaktiven Abfällen, Abschlussbericht zum Vorhaben 4615E03310 im Auftrag des BMUB. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, Öko-Institut e.V., Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung (BAM), TÜV NORD, GRS-A-3942, September 2018.
- /HUM 20/ Hummelsheim, K., Kaufholz, P., Peters, E.: Plutonium - Erzeugung, Verarbeitung, Verwertung, Arbeitsbericht. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, 2020.
- /HZB 21/ Daniels, N., Deissmann, G., Modolo, G., Bosbach, D., Kate, S. P., Schlenz, L., Welzel, S.: Konzeptstudie zur Entsorgung von aktiviertem Beryllium aus Forschungsreaktoren (KONEKT). Forschungszentrum Jülich GmbH (FZJ), Helmholtz-Zentrum Berlin für Materialien und Energie GmbH, 2021.
- /IAE 03/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Corrosion of research reactor aluminium clad spent fuel in water. Technical Reports Series No. 418, 209 S: Vienna, 2003.
- /IAE 04/ International Atomic Energy Agency (IAEA): WWER-440 fuel rod experiments under simulated dry storage conditions. IAEA-TECDOC, Bd. 1385, 73 S., International Atomic Energy Agency: Vienna, 2004.
- /IAE 07/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Spent fuel and high level waste: chemical durability and performance under simulated repository conditions, Results of a coordinated research project 1998-2004; additional information. IAEA-TECDOC Companion CD, Bd. 1563, 1 CD-ROM, ISBN 978-92-0-106007-5, IAEA: Vienna, 2007.
- /IAE 12/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Storage of Spent Nuclear Fuel, Specific Safety Guide No. SSG-15. Wien, 2012.
- /IAE 13/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Methodology for a Safety Case of a Dual Purpose Cask for Storage and Transport of Spent Fuel, Report of WASSC/TRANSSC joint working group 2011-2013, Draft. 2013.

- /IAE 18/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Regulations for the Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material, Specific Safety Requirements No. SSR-6 (Rev. 1). Hrsg.: Marketing and Sales Unit, Publishing Section International Atomic Energy Agency, 2018. Aufl., 190 S.: Wien, Juni 2018.
- /IAE 19/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Demonstrating Performance of Spent Fuel and Related Storage System Components during Very Long Term Storage, IAEA-TECDOC-1878, Final Report of a Coordinated Research Project. Wien, 2019.
- /IAEA/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Behaviour of Spent Power Reactor Fuel during Storage - Extracts from the Final Reports of Coordinated Research Projects on Behaviour of Spent Fuel Assemblies in Storage (BEFAST I-III) and Spent Fuel Performance Assessment and Research (SPAR I-III) - 1981-2014, IAEA-TECDOC-1862. IAEA TECDOC Series, v. 1862, 129 S., ISBN 9789201003195, International Atomic Energy Agency: Vienna, Austria, 2019.
- /ILG 14/ Ilgen A., Bryan C., TeichMcGoldrick S., Hardin E.: DPC Materials and Corrosion Environments, Fuel Cycle Research and Development. Hrsg.: Sandia National Laboratories, U.S. Department of Energy, 2014.
- /INS 12/ Institut für Kernchemie: Der Forschungsreaktor TRIGA Mainz, Eine intensive Neutronenquelle für Forschung und Ausbildung. Johannes Gutenberg Universität Mainz, März 2012.
- /INS 17/ Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire: RAPPORT IRSN N° 2017-00013 - Projet de stockage Cigéo - Examen du Dossier d'Options de Sûreté - TOME 1. 243 S., 2017.
- /INT 09/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Good Practices for Qualification of High Density Low Enriched Uranium Research Reactor Fuels, No. NF-T-5.2. Nuclear Energy Series, 85 S.: Vienna, Austria, 2009.
- /ISS 13/ Issard, H., Garcia, J.: Safety of long-term interim dry storage of used nuclear fuel, PATRAM 2013. San Francisco, USA, 18. - 23. August 2013.

- /JAH 16/ Jahn, S., Mrugalla, S., Stark, L.: Methodik und Anwendungsbezug eines Sicherheits- und Nachweiskonzeptes für ein HAW-Endlager im Tonstein, Endlagerstandortmodell SÜD (AnSichT) Zusammenstellung von Gesteinseigenschaften für den Langzeitsicherheitsnachweis. Karlsruher Institut für Technologie (KIT): Karlsruhe, 2016.
- /JAN 17/ Jantzen, C. M., Trivelpiece, C. L., Crawford, C. L., Pareizs, J. M., Pickett, J. B.: Accelerated Leach Testing of Glass (ALTGLASS): II. Mineralization of hydrogels by leachate strong bases. International Journal of Applied Glass Science, Bd. 8, Nr. 1, S. 84–96, DOI 10.1111/ijag.12264, 2017.
- /JAP 00/ Japan Nuclear Cycle Development: H12: project to establish the scientific and technical basis for HLW, Repository Design and Engineering Technology Supporting report 2. Ibaraki, 2000.
- /JAU 20/ Jaunich M.: Overview of metal seal tests performed at BAM and implications for extended interim storage, Vortrag SEDS-Workshop. Präsentation, BAM, Juni 2020.
- /JÉG 05/ Jégou, C., Muzeau, B., Broudic, V., Peugeot, S., Poulesquen, A., Roudil, D.: Effect of External Gamma Irradiation on Dissolution of the UO₂ Matrix. MRS Proceedings, Bd. 824, DOI 10.1557/PROC-824-CC9.5, 2005.
- /JEN 19/ Jülicher Entsorgungsgesellschaft für Nuklearanlagen (JEN): Alles zu den AVR-Brennelementen. Erreichbar unter <https://www.jen-juelich.de/projekte/avr-brennelemente/fragen-antworten/>, abgerufen am 23. September 2019.
- /JOB 16/ Jobmann, M., Burlaka, V., Meleshyn, A., Rübel, A.: Spezifische Prozessanalysen, Projekt ANSICHT, Arbeitsbericht. DBE TECHNOLOGY GmbH (DBETEC), TEC-13-2016-B, 85 S.: Peine, 4. Juli 2016.
- /JOH 88/ Johnson, L. and Shoesmith, D. W.: Radioactive waste forms for the future, Spent Fuel. Hrsg.: Lutze, W., Ewing, R., 778 S., ISBN 0444871047, North-Holland: Amsterdam, 1988.
- /JOH 97/ Johnson, L. H., Tait, J. C.: Release of segregated nuclides from spent fuel, Technical Report SKB 97-18. 29 S., 1997.

- /JOH 00/ Johnson, L. H., Smith, P. H.: The Interaction of Radiolysis Products and Canister Corrosion Products and the Implications for Spent Fuel Dissolution and Radionuclide Transport in a Repository for Spent Fuel. Hrsg.: NAGRA, Nagra Technischer Bericht, 00-04: Wettingen / Switzerland, 2000.
- /JOH 02/ Johnson, L., Schneider, J., Zuidema, P., Gribi, P., Mayer, G., Smith, P.: Project Opalinus Clay - Safety Report, Demonstration of disposal feasibility for spent fuel, vitrified high-level waste and longlived intermediate-level waste (Entsorgungsnachweis). Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), Nagra Technischer Bericht, NTB 02-05, 360 S.: Wettingen, 1. Dezember 2002.
- /JOH 05/ Johnson, L., Ferry, C., Poinssot, C., Lovera, P.: Spent fuel radionuclide source-term model for assessing spent fuel performance in geological disposal. Part I, Assessment of the instant release fraction. Journal of Nuclear Materials, Bd. 346, S. 10, 2005.
- /JOH 14/ Johnson, L.: A model for radionuclide release from spent UO₂ and MOX fuel. Hrsg.: NAGRA, Arbeitsbericht, NAB 13-37, 26 S.: Wettingen, Switzerland, 2014.
- /JUJ 20/ Juutilainen, P., Hautajärvi, A., Karvonen, T., Karvonen, S.: Applicability of KBS-3 concept for vitrified waste disposal. Hrsg.: AINS - Civil Engineering, Technical Assistance, ID 85402, 2020.
- /KAR 13/ Karlsruher Institut für Technologie (KIT): Radionuclide source term for irradiated fuel form prototype, research and education reactors, for waste forms with negligible heat generation and for uranium tails. KIT Scientific Reports, Bd. 7635, KIT-SR-7635, 79 S., ISBN 9783866449640, KIT Scientific Publishing: Karlsruhe, 2013.
- /KEE 05/ Keesmann, S. M.: Modellrechnungen zur Langzeitsicherheit von Endlagern in Salz- und Granitformationen. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit, GRS-Bericht, Bd. 206, GRS-206, 75 S., ISBN 3-931995-73-9, GRS: Köln, Garching b. München, Berlin, Braunschweig, 2005.
- /KER 19/ Kerntechnische Entsorgung Karlsruhe GmbH (KTE): Projekte: Natriumgekühlte Kernreaktoranlage. Erreichbar unter <https://www.kte-karlsruhe.de/projekte/natriumgekuehlte-kernreaktoranlage/>, abgerufen am 30. Oktober 2019.

- /KFA 87/ Kernforschungsanlage Jülich GmbH (KFA) (Hrsg.): F&E-Arbeiten zur Zwischenlagerung von HTR-Brennelementen. Statusseminar Hochtemperaturreaktorbrennstoffkreislauf, Jülich, 1987.
- /KfK 90/ KfK - Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH: Corrosion Testing of Selected Packaging Materials for Disposal of High-Level Waste Glass in Rock Salt Formations,, KfK 4723. Karlsruhe, 1990.
- /KfK 92/ Smailos, E., Schwarzkopf, W., Gago J.A. and Azkarate I.: Corrosion Studies on Selected Packaging Materials for Disposal of Heat- Generating Radioactive Wastes in Rock-Salt Formations, Report KfK 5011. Hrsg.: Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, 1992.
- /KfK 93/ KfK - Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH: General Corrosion and Stress Corrosion Cracking Studies on Carbon Steels for Application in Nuclear Waste Disposal Containers, KfK 5166. Karlsruhe, 1993.
- /KIE 01/ Kienzler, B., Loida, A.: Endlagerrelevante Eigenschaften von hochradioaktiven Abfallprodukte - Charakterisierung und Bewertung - Empfehlungen des Arbeitskreises HAW-Produkte. Forschungszentrum Karlsruhe - Institut für Nukleare Entsorgung (FZK-INE), FZKA 6651, 114 S., 2001.
- /KIE 12/ Kienzler, B., Altmaier, M., Bube, C., Metz, V.: Radionuclide Source Term for HLW Glass, Spent Nuclear Fuel, and Compacted Hulls and End Pieces (CSD-C Waste). KIT Scientific Reports, KIT-SR 7624, 92 S., ISBN 978-3-86644-907-7, Karlsruher Institut für Technologie - Institut für Nukleare Entsorgung (KIT-INE): Karlsruhe, 2012.
- /KIE 13/ Kienzler, B., Altmaier, M., Bube, C., Metz, V.: Source Term for Irradiated Fuel from Prototype, Research and Education Reactors, for Waste Forms with Negligible Heat Producing Waste Forms and for Uranium Tails. Karlsruher Institut für Technologie - Institut für Nukleare Entsorgung (KIT-INE), KIT Scientific Reports, KIT-SR 7635, ISBN 978-3-86644-964-0: Karlsruhe, 2013.
- /KIE 17a/ Kienzler, B., Duro, L., Lemmens, K., Metz, V., Pablo, J. d., Valls, A., Wegen, D. H., Johnson, L., Spahiu, K.: Summary of the Euratom Collaborative Project FIRST-Nuclides and Conclusions for the Safety Case. Nuclear Technology, Bd. 198, Nr. 3, S. 260–276, DOI 10.1080/00295450.2017.1326271, 2017.

- /KIE 17b/ Kienzler, B.: F&E-Arbeiten zur Korrosion von Endlager-Behälterwerkstoffen im INE. KIT Scientific Reports, Bd. 7729, 29 S., KIT Scientific Publishing: Karlsruhe, 2017.
- /KIN 00/ King F., K. M.: The copper container corrosion model used in AECL's second case study, Nuclear Waste Management Division report no. 06819-REP-01200-10041- R00. Kanada, 2000.
- /KIN 08/ King, F.: Corrosion of carbon steel under anaerobic conditions in a repository for SF and HLW in Opalinus Clay. Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), Nagra Technischer Bericht, NTB 08-12, 44 S.: Wettlingen, Oktober 2008.
- /KIN 11/ King, F., and C. Padovani: Review of the corrosion performance of selected canister materials for disposal of UK HLW and/or spent fuel. Corrosion engineering, science and technology, Nr. 46, S. 82–90, 2011.
- /KIN 18/ Kindlein, J., Buhmann, D., Mönig, J., Spießl, S., Wolf, J.: Bewertung der Wirksamkeit des Radionuklideinschlusses für ein Endlager in flach lagernden Salzformationen, Ergebnisse aus dem Vorhaben KOSINA. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-Bericht, GRS-496, 75 S., ISBN 978-3-946607-81-6, April 2018.
- /L. H. Johnson, F. King 2003/L. H. Johnson, F. King: Canister Options for the Disposal of Spent Fuel. Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), Nagra Technischer Bericht, NTB 02-11, 47 S.: Wettlingen, April 2003.
- /KIR 90/ Kirch N., Brinkmann H.U., Brücher P.H.: Storage and Final Disposal of Spent HTR Fuel in the Federal Republic of Germany. Nuclear Engineering and Design, Nr. 121, S. 241–248, 1990.
- /KLI 80/ Klingsberg, C., Duguid, J.: Status of Technology for Isolating High-Level Radioactive Waste in Geologic Repositories. U.S. Department of Energy, Technical Information, 1980.

- /KLI 10/ Klinkenberg, M., Curtius, H., Neumann, A., Bosbach, D.: Corrosion of research reactor fuel elements in Mont Terri clay pore water - treatment, preparation and identification of secondary phases. Präsentation, Clays in natural & engineered barriers for radioactive waste confinement, 4th International Meeting: Nantes, France, März 2010.
- /KLI 11/ Klinkenberg, M., Curtius, H., Neumann, A., Bosbach, D.: Corrosion of research reactor fuel elements in Mont Terri clay pore water. Präsentation, Euroclay 2011: Antalya, Turkey, 26. Juni 2011.
- /KOC 12/ Kock, I., Eickemeier, R., Frieling, G., Heusermann, S., Knauth, M., Minkley, W., Navarro, M., Nipp, H.-K., Vogel, P.: Integritätsanalyse der geologischen Barriere, Bericht zum Arbeitspaket 9.1, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-286, 301 S., ISBN 978-3-939355-62-5: Köln, 2012.
- /KÖM 18/ Kömmling, A., Ehe, K., Wolff, D., Jaunich, M.: Effect of high-dose gamma irradiation on (U)HMWPE neutron shielding materials. Nr. 142, S. 29–33, DOI 10.1016/j.radphyschem.2017.02.014, 2018.
- /KRI 21/ Krishnamurthy, A., Michaelis, V. K., Kroeker, S.: Network Formation in Borosilicate Glasses with Aluminum or Gallium: Implications for Nepheline Crystallization. The Journal of Physical Chemistry C, Bd. 125, Nr. 16, S. 8815–8824, DOI 10.1021/acs.jpcc.1c01262, 2021.
- /KRU 04/ Krumbach H., Duwe R., Rödiger M.: Handling and behaviour of AVR fuel elements for interim storage, Hotlab Plenary Meeting 2004, September 6th-8th, Halden, Norway. Forschungszentrum Jülich, September 2004.
- /KUP 00/ Kupfer, A.: Radiochemische Korrosionsuntersuchungen an Urandioxid und Cladding-Materialien von Kernbrennstoffen in praxisrelevanten Salzlaugen als Beitrag zur direkten Endlagerung. Dissertation, Freie Universität Berlin, 2000.
- /KUR 99/ Kurashige, T. (Hrsg.): Gas generation behaviour of Zircaloy-4 under waste disposal conditions. 7th International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation: Japan, 1999.

- /KUR 04/ Kursten, B., Smailos, E., Azkarate, I., Werme, L., Smart, N.R., Santarini, G.: COBECOMA. State-of-the-art document on the Corrosion behaviour of container materials, Final Report. Hrsg.: European Commission (EC), 2004.
- /LAN 00/ Landtag Mecklenburg-Vorpommern: 3. Wahlperiode, Drucksache 3/1416; Unterrichtung durch die Landesregierung. 11. Juli 2000.
- /LAN 09/ Landolt, D., Davenport, A., Payer, J., Shoesmith, D. W.: A Review of Materials and Corrosion Issues Regarding Canisters for Disposal of Spent Fuel and High-level Waste in Opalinus Clay. Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), Nagra Technischer Bericht, NTB 09-02, 57 S.: Wettlingen, Januar 2009.
- /LAN 98/ Lange, F., Pfeffer, W., Pretzsch, G., Schrödl, E., Urbahn, H.: Potentielle Strahlenexpositionen durch die Freisetzung radioaktiver Stoffe aufgrund der Einwirkung Dritter auf einen Transport- und Lagerbehälter CASTOR MTR 2 im TBL Ahaus, beladen mit Forschungsreaktor Brennelementen aus VKTA Rossendorf. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-A 2550, 60 S., September 1998.
- /LAR 13/ Larue, P.-J., Baltes, 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 17/ Larue, P.-J., Lambers, L.: Endlagerkonzept im Salzgestein (Deutschland), Anforderungen an aktuelle Endlagerkonzepte für unterschiedliche Wirtsgesteinsformationen, Bericht zum Arbeitspaket 1. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-471 Anhang 5, 31 S.: Köln, August 2017.
- /LEB 09/ Leber, A., Hoffmann, D.: Berechnungsmethoden für den Nachweis der Hüllrohrintegrität bei der trockenen Zwischenlagerung von Brennelementen in CASTOR-V Behältern. WTI Wissenschaftlich-Technische Ingenieurberatung GmbH, Jülich, Jahrestagung Kerntechnik, 12.-14. Mai 2009, Dresden, 7 S., Mai 2019.

- /Lenci et al. 2020/ Lenci, G., Broussard, J.: High-Burnup Used Fuel Dry Storage System Thermal Modeling Benchmark, Round Robin Results. Dominion Engineering, Inc., Electric Power Research Institute (EPRI), Nr. 3002013124, 1. April 2020.
- /LER 92/ Leroy, P., Jacquet-Francillon, N., Runge, S.: HLW immobilization in glass: industrial operation and product quality. Waste Management Conference Las Vegas, 1992.
- /LOI 99/ Loida, A., B. Grambow, M. Kelm: Abgebrannter LWR-Kernbrennstoff: Auslaugverhalten und Freisetzung von Radionukliden, Abschlußbericht BfS-Projekt 9G213532100. (FZK-INE 009/99), 1999.
- /LOU 16/ Lousada, C., Soroka, I., Yagodzinsky, Y., Tarakina, N., Todoshchenko, O., Hänninen, H., Korzhavyi, Pavel, J.: Gamma radiation induces hydrogen absorption by copper in water. Scientific Reports, Nr. 6, S. 1–8, 2016.
- /LÜH 00/ Lührmann, L., Noseck, U., Storck, R.: Spent Fuel Performance Assessment (SPA) for a hypothetical repository in crystalline formations in Germany, BMWi-FKZ 02E8855. Hrsg.: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-Bericht, Nr. 154, 180 S.: Braunschweig, Juli 2000.
- /LUT 93/ Lutze, W.: Verglasung von toxischen, insbesondere hochradioaktiven Abfällen. Kernforschungszentrum: Karlsruhe, 1993.
- /MÄD 09/ Mäder, U.: Arbeitsbericht NAB 09-14, Reference pore water for Opalinus Clay and "Brown Dogger" for the provisional safety-analysis in the framework of the sectoral plan -interim results (SGT-ZE). Hrsg.: Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), RWI, Institute of Geological Science, University of Bern, 2009.
- /MAL 89/ Malow, G. (Hrsg.): Thermal and radiation effects in the range of the glass transition temperature T_g . ISBN 0-931837-97-9, Materials Research Society: United States, 1989.
- /MAN 00/ Manzel, R., Walker, C. T.: Spaltgasfreisetzung und Pelletrand bei hohen Abbränden. Hrsg.: Fachtagung der KTG-Fachgruppe „Brennelemente und Kernbauteile“, Forschungszentrum Karlsruhe, 29. Februar - 1. März 2000.

- /MAN 16/ Manca D.: Gas Transport and related Chemo-Hydro-Mechanical Response of Sand Bentonite Mixture, Technical Report 16-07. EPFL, Lausanne: Wettingen, 2016.
- /MAR 04/ Marschall, P., Croisé, J., Schlickenrieder, L., Boisson, J.-Y., Vogel, P. & Yamamoto, S: Synthesis of hydrogeological investigations at the Mont Terri site (phases 1 to 5). Mont Terri Project - Hydrogeological Synthesis, Osmotic Flow. Reports of the FOWG, Geology Series No. 6. Federal Office for Water and Geology. ISBN 3906723704: Bern, 2004.
- /MAZ 03a/ Mazeina, L.: Investigation of the corrosion behaviour of U-Al material test reactor fuel elements in repository-relevant solutions and characterisation of the secondary phases formed. Berichte des Forschungszentrums Jülich, Nr. 4063, 2003.
- /MAZ 03b/ Mazeina, L., Curtius, H., Fachinger, J., Odoj, R.: Characterisation of secondary products of uranium aluminium material test reactor fuel element corrosion in repository-relevant brine. Journal of Nuclear Materials, Nr. 323, S. 1–7, 2003.
- /MAZ 03c/ Mazeina, L., Curtius, H., Fachinger, J.: Formation of hydrotalcite-like compounds during corrosion experiments on MTR-FE-Al cladding. Clay Miner, Nr. 38, S. 35–40, 2003.
- /MCC 14/ McConnell, P. E., Wauneka, R., Saltzstein, S. J., Sorenson, K. B.: Normal Conditions of Transport Truck Test of a Surrogate Fuel Assembly, FCRD-UFD-2014-000066 Rev. 0.1. Hrsg.: Sandia National Laboratories (SNL), 165 S., DOI 10.2172/1166645, August 2014.
- /MCC 18/ McConnell, P. E., Ross, S., Grey, C. A., Uncapher, W. L., Arviso, M., Garmendia, R., Fernandez Perez, I., Palacio, A., Calleja, G., Garrido, D., Rodriguez Casas, A., Gonzalez Garcia, L., Chilton, L. W., Ammerman, D., et al.: Rail-Cask Tests: Normal-Conditionsof- Transport Tests of Surrogate PWR Fuel Assemblies in an ENSA ENUN 32P Cask. Sandia National Laboratories (SNL), DOI 10.2172/1418119, 16. Januar 2018.
- /MCE 12/ McEachern, D. W., Wu, W., Venneri, F.: Performance of PyC, SiC, ZrC coatings in the geologic repository. Nuclear Engineering and Design, Bd. 251, S. 102–110, DOI 10.1016/j.nucengdes.2011.10.065, 2012.

- /MCG 02/ McGinnes, D. F.: Model Radioactive Waste Inventory for Reprocessing Waste and Spent Fuel. Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), Nagra Technischer Bericht, NTB 01-01, 42 S.: Wettingen, Dezember 2002.
- /MIC 83/ Michalske, T. A., Freiman, S. W.: A Molecular Mechanism for Stress Corrosion in Vitreous Silica. Journal of the American Ceramic Society, 1983.
- /MON 18/ Montgomery, R., Bevard, B. B., Morris, R. N., Goddard Jr., J. S., Smith, S. K., Hu, J., Beale, J., Yoon, B.: Sister Rod Nondestructive Examination Final Report. Oak Ridge National Laboratory, DOI 10.2172/1465039, 21. Dezember 2018.
- /MÖN 12/ Mönig, J., Buhmann, D., Rübel, A., Wolf, J., Baltes, B., Fischer-Appelt, K.: Sicherheits- und Nachweiskonzept, Bericht zum Arbeitspaket 4, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben. GRS-277, 79 S., ISBN 978-3-939355-53-3, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Braunschweig, 2012.
- /MÖN 20/ Mönig, J., Bertrams, N., Bollingerfehr, W., Fahland, S., Frenzel, B., Maßmann, J., Müller-Hoepe, N., Reinhold, K., Rübel, A., Schubarth-Engelschall, N., Simo, E. K., Thiedau, J., Weber, J. R., Wolf, J.: RESUS - Empfehlungen zur sicherheitsgerichteten Anwendung der geowissenschaftlichen Abwägungskriterien des StandAG, Synthesebericht. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-567, 192 S., ISBN 978-3-947685-53-0: Köln, 2020.
- /NAB 10/ Nabielek, H., van der Menwe, H., Fachinger, J., Verfondern, K., Lensa, W. von, Grambow, B., Visser-Tynova, E. de: Ceramic Coated Particles for Safe Operation in HTRs and in Long-Term Storage. In: Ceramic Engineering and Science Proceedings - January 2010. S. 193–202, DOI 10.1002/9780470584002.ch17.
- /NAG 84/ Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA): Inventar und Charakterisierung der radioaktiven Abfälle in der Schweiz. Nagra Technischer Bericht, NTB 84-47, 29 S.: Baden, Dezember 1984.
- /NAG 01/ NAGRA: Sondierbohrung Benken Untersuchungsbericht, Technischer Bericht 00-01. Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle. Wettingen, 2001.

- /NAG 02a/ Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA): Projekt Opalinuston - Synthese der geowissenschaftlichen Untersuchungsergebnisse, Entsorgungsnachweis für abgebrannte Brennelemente, verglaste hochaktive sowie langlebige mittelaktive Abfälle. Hrsg.: NAGRA, Technischer Bericht, 02-03, 714 S.: Wettingen / Schweiz, 2002.
- /NAG 02b/ NAGRA (Hrsg.): Project Opalinus Clay - Safety Report, Demonstration of disposal feasibility for SF, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level waste (Entsorgungsnachweis). Nagra Technischer Bericht, 02-05: Wettingen / Switzerland, 2002.
- /NAG 03/ Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA): Projekt Opalinuston, Entsorgungsnachweis für abgebrannte Brennelemente, verglaste hochaktive Abfälle sowie langlebige mittelaktive Abfälle, Zusammenfassender Überblick. 2. Aufl., 21 S.: Wettingen, Januar 2003.
- /NAG 08/ Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA): Modellhaftes Inventar für radioaktive Materialien, MIRAM 08. Nagra Technischer Bericht, NTB 08-06, 33 S.: Wettingen, Juli 2008.
- /NAG 09/ Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA): Alternatives Ausbaukonzept ("Liner concept") für BE/HAA-Lagerstollen, Standortunabhängige Grundlagen Anlagen und Betrieb SGT-ZE / SUG 2.3. Nagra Arbeitsbericht, NAB 09-07, 37 S.: Wettingen, November 2009.
- /NAG 13/ Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA): Standortunabhängige Betrachtungen zur Sicherheit und zum Schutz des Grundwassers, Grundlagen zur Beurteilung der grundsätzlichen Bewilligungsfähigkeit einer Oberflächenanlage für ein geologisches Tiefenlager. Nagra Technischer Bericht, NTB 13-01, 82 S.: Wettingen, August 2013.
- /NAG 14/ Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA): SGT Etappe 2: Vorschlag weiter zu untersuchender geologischer Standortgebiete mit zugehörigen Standortarealen für die Oberflächenanlage, Charakteristische Dosisintervalle und Unterlagen zur Bewertung der Barrierensysteme. Nagra Technischer Bericht, NTB 14-03: Wettingen, Dezember 2014.

- /NAG 15/ Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA): Abfallinventare und Mengen. 2 S., Stand vom 31. Dezember 2015, erreichbar unter http://www.nagra.ch/display.cfm/id/102037/disp_type/display/filename/Abfallzahlen2011.pdf, 2015.
- /NAG 16a/ Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA): Prüfung der Lager- und Barrierenkonzepte, ENSI-Nachforderung zum Indikator "Tiefenlage im Hinblick auf bautechnische Machbarkeit" in SGT Etappe 2. Nagra Arbeitsbericht, NAB 16-42, 65 S.: Wettingen, Juli 2016.
- /NAG 16b/ Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA): The Nagra Research, Development and Demonstration (RD&D) Plan for the Disposal of Radioactive Waste in Switzerland. Nagra Technischer Bericht, NTB 16-02, 277 S.: Wettingen, Dezember 2016.
- /NAG 17/ Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA): Mengen und Herkunft radioaktiver Abfälle für die geologische Tiefenlagerung. Nagra Broschüre, 6 S.: Wettingen, März 2017.
- /NEE 18/ Neeft, E.: Carbon-14 Source Term - CAST, Final overview of CAST (D7.23) Version 2. Hrsg.: Europäische Kommission, 44 S., 2018.
- /NER 83/ Neretnieks, I.: The Impact of Alpha-Radiolysis on the Release of Radionuclides from Spent Fuel in a Geologic Repository. MRS Online Proceedings Library (OPL), Bd. 26, DOI 10.1557/PROC-26-1009, 1983.
- /NEU 12/ Neuman, A.: Bildung von sekundären Phasen bei tiefengeologischer Endlagerung von Forschungsreaktor-Brennelementen – Struktur- und Phasenanalyse. Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Energie & Umwelt, Nr. 153, 2012.
- /NIC 02/ Nickel, H., Nabielek, H., Pott, G., Mehner, A.: Long time experience with the development of HTR fuel elements in Germany. Nuclear Engineering and Design, Bd. 217, Nr. 1, S. 141–151, DOI 10.1016/S0029-5493(02)00128-0, 2002.

- /NIE 99/ Niephaus D.: Referenzkonzept zur direkten Endlagerung von abgebrannten HTR-Brennelementen in CASTOR THTR/AVR Transport- und Lagerbehältern, Berichte des Forschungszentrums Jülich 3734. Hrsg.: Forschungszentrum Jülich, November 1999.
- /NIT 73/ Nitzki, V., Matzke, H.: Stopping Power of 1-9-MeV He⁺⁺ Ions in U O₂, (U, Pu) O₂, and Th O₂. Physical Review B, Bd. 8, Nr. 5, S. 1894–1900, DOI 10.1103/PhysRevB.8.1894, 1973.
- /NOL 02/ Nold, A. L., Zuidema, P., Blümling, P., Maurer, P. E., Sitz, P.: Konzept für die Anlage und den Betrieb eines geologischen Tiefenlagers, Entsorgungsnachweis für abgebrannte Brennelemente, verglaste hochaktive sowie langlebige mittelaktive Abfälle, Projekt Opalinuston. Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), Nagra Technischer Bericht, NTB 02-02, 150 S.: Wettlingen, 1. Dezember 2002.
- /OJO 07/ Ojovan, M. I., Batyukhnova, O. G.: Glasses of Nuclear Waste Immobilization. Hrsg.: Waste management Symposia, 2007.
- /PAN 07/ Pan, Y.-M., Chan, K. S., Riha, D. S.: Probabilistic-Micromechanical Methodology for Assessing Zirconium Alloy Cladding Failure. Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXX, Nr. 985, S. 105–110, 2007.
- /PAS 07/ B. Pastina and P. Hella: POSIVA: Expected evolution of a spent nuclear fuel repository at Olkiluoto, Report no. 2006-05. Finland, 2007.
- /PAT 12/ Patel, R., Punshon, C., Nicholas, J., Bastid, P., Zhou, R., Schneider, C., Bagshaw, N., Howse, D., Hutchinson, E., Asano, R., King, F.: Canister Design Concepts for Disposal of Spent Fuel and High Level Waste. Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), Nagra Technischer Bericht, NTB 12-06, 157 S.: Wettlingen, 1. Januar 2012.
- /PEA 91/ Peach, C. J.: Influence of deformation on the fluid transport properties of salt rocks, Dissertation. Dissertation: Rijksuniversiteit te Utrecht, 1991.
- /PEA 02/ Pearson, F. J.: Benken reference water chemistry. Hrsg.: NAGRA, Nagra Internal Report: Wettlingen / Switzerland, 2002.

- /PEI 11/ Peiffer, F., McStocker, B., Gründler, D., Ewig, F., Thomauske, B., Havenith, A., Kettler, J.: Abfallspezifikation und Mengengerüst. Basis Ausstieg aus der Kernenergienutzung (Juli 2011), Bericht zum Arbeitspaket 3, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben. GRS-278, 89 S., ISBN 978-3-939355-54-0, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 2011.
- /PEI 12/ Peiffer, F., McStocker, B.: Einschätzung betrieblicher Machbarkeit von Endlagerkonzepten, Bericht zum Arbeitspaket 12, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben. GRS-279, 37 S., ISBN 978-3-939355-55-7, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 2012.
- /PER 19/ Peridis, M., Sentuc, N.-F., Sonnenkalb, M., Stewering, J., Stuke, M.: Analysis of 3-dimensional temperature fields of loaded dry storage casks, Proceedings of the 19th International Symposium on the Packaging and Transportation of Radioactive Materials PATRAM 2019; August 4-9, 2019, New Orleans, LA, USA. 2019.
- /PET 11/ Peterson, J. L., Dunzik-Gougar, M. L.: Modeling spent TRISO fuel for geological disposal: corrosion and failure under oxidizing conditions in the presence of water. Progress in Nuclear Energy, Bd. 53, Nr. 3, S. 278–284, DOI 10.1016/j.pnucene.2010.12.003, 2011.
- /PIK 10/ Pike, S., Allen, C., Punshon, C. S., Threadgill, P. L., Gallegillo, M., Holmes, B. K., Nicholas, J. M.: Critical review of welding technology for canisters for disposal of spent fuel and high level waste. Hrsg.: Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), Nagra Technischer Bericht, NTB 09-05, 123 S.: Wettingen, 2010.
- /POS 12/ POSIVA OY: Canister Design 2012, POSIVA 2012-13. Eurajoki, 2012.
- /POU 74/ Pourbaix, M.: Atlas of Electrochemical Equilibria in Aqueous Solutions. NACE International Cebelcor: Houston, Texas, 1974.
- /PUS 01/ Pusch, R., Kasbohm, J.: Can the water content of highly compacted bentonite be increased by applying a high water pressure. 2001.
- /RAY 15/ Raynaud, P. A., Einziger, R. E.: Cladding stress during extended storage of high burnup spent nuclear fuel. Journal of Nuclear Materials, Bd. 464, S. 304–312, DOI 10.1016/j.jnucmat.2015.05.008, 2015.

- /REP 19/ Repina, M.: Reactive transport modeling in fractured media of nuclear glass for industrial application, doctoral thesis. 2019.
- /RIB 04/ Ribet, S., Muller, I. S., Pegg, I. L., Gin, S., Frugier, P.: Compositional Effects on the Long-Term Durability of Nuclear Waste Glasses: A Statistical Approach. MRS Proceedings, Bd. 824, DOI 10.1557/PROC-824-CC5.3, 2004.
- /RIP 19/ Ripert, H., Brounais, M.: A350 LF5 CL 2, A convenient Material for Containment of Type B Packing, Paper 1271, PATRAM 2019. New Orleans, USA, August 2019.
- /RON 12/ Rondinella, V. V., Wiss, T., Papaioannou, D., Ramil, N.: Studies on nuclear fuel evolution during storage and testing of used fuel response to impact loadings, Conference Paper. Joint Research Centre, Institute for Transuranium Elements, PSAM 11-ESREL 2012: Helsinki, Juni 2012.
- /RON 13/ Rondinella, V. V., Wiss, T., Papaioannou, D., Ramil, N.: Microstructure and macroscopic alteration affecting nuclear fuel during extended storage, Conference Paper. Joint Research Centre, Institute for Transuranium Elements, IHLRWMC 2013, 6 S.: Albuquerque, April 2013.
- /ROT 01/ Roth, G., Weisenburger, S.: Verglasungstechnologie des Forschungszentrums Karlsruhe für hochradioaktive flüssige Abfälle. Radioaktivität und Kernenergie, 2001.
- /RÜB 10/ Rübel, A., Mönig, J.: Prozesse, Modellkonzepte und sicherheitsanalytische Rechnungen für ein Endlager im Salz. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-A-3521: Braunschweig, 2010.
- /SAK 12/ Sakuragi, T., Miyakawa, H., Nishimura, T. and Tateishi, T. (Hrsg.): Corrosion Rates of Zircaloy-4 by Hydrogen Measurement under High pH, Low Oxygen and Low Temperature Conditions. Materials Research Society Symposium Proceedings, 2012.

- /SCH 08/ Schneider, J., Gribi, P., Zuidema, P.: Begründung der Abfallzuteilung, der Barriensysteme und der Anforderungen an die Geologie, Bericht zur Sicherheit und technischen Machbarkeit, Vorschlag geologischer Standorte für das SMA- und das HAA-Lager. Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), Nagra Technischer Bericht, NTB 08-05, 555 S.: Wettingen, Oktober 2008.
- /SCH 11/ Schneider, M., Fischer, B.: Safe Operation of Research Reactors in Germany. Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Proceedings of an International Conference organized by the IAEA, 2011.
- /SCH 16/ Schneider-Eickhoff, R.: Rückholbarkeit/Bergbarkeit von Endlagerbehältern Anforderungen an das Behälterdesign. Präsentation, 5. Essener Fachgespräch Endlagerbergbau: Essen, 25. Februar 2016.
- /SCH 21/ Schneider-Eickhoff, R.: Forschungsaktivitäten der BGZ auf dem Gebiet Transport- und Lagerbehälter. Präsentation, Bundesgesellschaft für Zwischenlagerung (BGZ), November 2021.
- /SED 21/ Sedlacek, R., Schweitzer, E., Deuble, D., Hoffmann, P. B.: Brennstabintegrität während der verlängerten Zwischenlagerung: Auslegungskriterien und -rechnungen. Präsentation, Framatome, BGZ Fachworkshop Zwischenlagerung, Bundesgesellschaft für Zwischenlagerung (BGZ): Berlin, 17. November 2021.
- /SEH 13/ Seher, H.: Zusammenstellung der Inventare zur Modellierung, Memo im Arbeitspaket 10, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 1. März 2013.
- /SHO 99/ Shoesmith, D.W. and F. King: The effects of gamma radiation on the corrosion of candidate materials for the fabrication of nuclear waste packages, Atomic Energy of Canada Limited Report. Hrsg.: AECL, 1999.
- /SIN 83/ Sinclair, R. N., Desa, J. A. E., Wright, A. C.: Neutron Scattering Studies of Vitrified Radioactive Waste. Journal of the American Ceramic Society, Bd. 66, Nr. 1, S. 72–77, DOI 10.1111/j.1151-2916.1983.tb09972.x, 1983.

- /SIN 10/ Sindelar R.L., Vinson D.W., Iyer N.C., Fisher D.L.: Overview of criteria for interim wet and dry storage of research reactor spent nuclear fuel, Savannah River National Laboratory, Aiken SC. 2010.
- /SKB 91/ SKB: Final disposal of spent nuclear fuel, SKB 91 - Importance of the bedrock for safety. 223 S., 1991.
- /SKB 93/ SKB: SKB Annual Report 1992. 1993.
- /SKB 04/ Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB) (Hrsg.): Interim main report of the safety assessment SR-Can. Technical Report, TR-04-11, 2004.
- /SKB 10/ SKB - King F., Lilja C., Pedersen K., Pitkänen P., Vähänen M.: An update of the state-of-the-art report on the corrosion of copper under expected conditions in a deep geologic repository,, SKB Technical Report, TR-10-67. SKB, 2010.
- /SMA 86/ Smailos E., Schwarzkopf W. and Köster R.: Corrosion Behaviour of Container Materials for the Disposal of High-Level Wastes in Rock Salt Formations, EUR-10400. 1986.
- /SMA 91/ Smailos E., Atkinson A., Debruyne W., Marsh G. P., McMenamin T. Naish C. (Hrsg.): HLW container corrosion and design. 3rd European Community Conf. on Radioactive Waste Management and, London, September 17-21 1990, 1991.
- /SMA 96/ Smailos E. (Hrsg.): In-Situ Corrosion Testing of Selected HLW Container Materials. The 7th Annual International Conference on High-Level Radioactive Waste Management, Las Vegas, 1996.
- /SMA 99/ Smailos E. (Hrsg.): Corrosion Behaviour of Selected HLW/Spent Fuel Container Materials Under the Conditions of the In-Situ DEBORA Experiment. EUROCORR'99, Aachen, 1999.
- /SMA 01/ Smailos, E. (Hrsg.): Corrosion behaviour of the candidate HLW/spent fuel container material TStE355 carbon steel in granitic environments, International Conference Corrosion Odyssey. Edinburgh, Edinburgh, September 18-20, 2001.

- /SMA 04/ Smailos, E.: Longterm Performance of candidate Materials for HLW/ spent fuel disposal containers container, 5th Euratom Framework Programme 1998-2002. Hrsg.: EURATOM, 2004.
- /Smailos E. 2002/Smailos E.: In-situ Corrosion Studies on Selected Materials for HLW/Spent Fuel Disposal Containers, Final Report to the EU-Project Backfilling and Sealing of Underground Repositories for Radioactive Waste in Salt, phase II (BAMBUS Project). Hrsg.: European Commission (EC), 2002.
- /SMI 93/ Smith, H. D., Baldwin, D. L.: An investigation of thermal release of carbon-14 from PWR Zircaloy spent fuel cladding. Journal of Nuclear Materials, Bd. 200, Nr. 1, S. 128–137, DOI 10.1016/0022-3115(93)90016-r, 1993.
- /SOM 93/ Sombret C.G., CEA: The Vitrification of High-Level Wastes in France: from the Lab to Industrial Plants. Präsentation, BNS/OECD-NEA Symposium on the SAFETY of the Nuclear Fuel Cycle, 3. Juni 1993.
- /SON 17/ Sonnenburg, H.-G., Boldt, F.: Fuel rod behaviour in normal operation, in case of malfunctions and during long-term storage, 978-3-946607-47-2; 108 S.: Germany, 2017. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, 2017.
- /SPA 21/ Spahiu, K.: Spent Nuclear Fuel Domain 3.1.1, EURAD - State of the Knowledge (SoK) Report. 50 S., 2021.
- /SPI 90/ Spinks, J., Woods, R. J.: An Introduction to Radiation Chemistry. Bd. 95, DOI 10.1002/bbpc.19910950346, John Wiley & Sons, Ltd: New York, Toronto, 1990.
- /STA 15/ Stahlmann, J., Leon-Varcas, R., Mintzlauff, V.: Generische Tiefenlagermodelle mit Option zur Rückholung der radioaktiven Reststoffe: Geologische und Geotechnische Aspekte für die Auslegung, Vertikalprojekt 6: Einlagerung in tiefe geologische Formationen mit Vorkehrung zur Überwachung und Rückholbarkeit. ENTRIA-Arbeitsbericht, ENTRIA-Arbeitsbericht-03, 68 S.: Braunschweig, 2015.
- /STA 19a/ Gesetz zur Suche und Auswahl eines Standortes für ein Endlager für hochradioaktive Abfälle (Standortauswahlgesetz – StandAG) in der Fassung vom 5. Mai 2017 (BGBl. I 2017, Nr. 26, S. 1074-1100), zuletzt geändert 12. Dezember 2019 (BGBl. I 2019, Nr. 48, S. 2510–2512).

- /STA 19b/ Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren (Atomgesetz - AtG) in der Fassung vom 15. Juli 1985 (BGBl. I 1985, Nr. 41, S. 1565-1583), zuletzt geändert 12. Dezember 2019 (BGBl. I 2019, Nr. 48, S. 2510–2512).
- /STR 00/ Strachan, D. M., Croak, T. L.: Compositional effects on long-term dissolution of borosilicate glass. *Journal of Non-Crystalline Solids*, Bd. 272, Nr. 1, S. 22–33, DOI 10.1016/S0022-3093(00)00154-X, 2000.
- /SVE 11a/ Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB): Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark, Main report of the SR-Site project. SKB Technical Report, TR-11-01, 276 S.: Stockholm, Sweden, März 2011.
- /SVE 11b/ Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB): Environmental Impact Statement, Interim storage, encapsulation and final disposal of spent nuclear fuel. 337 S., ISBN 978-91-978702-5-2, 2011.
- /SVE 11c/ Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB): Volume III. In: Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB): Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark, Main report of the SR-Site project. SKB Technical Report, TR-11-01, S. 555–893: Stockholm, Sweden, März 2011.
- /SVE 11d/ Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB): Volume I. In: Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB): Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark, Main report of the SR-Site project. SKB Technical Report, TR-11-01, S. 1–276: Stockholm, Sweden, März 2011.
- /SVE 11e/ Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB): Volume II. In: Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB): Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark, Main report of the SR-Site project. SKB Technical Report, TR-11-01, S. 279–552: Stockholm, Sweden, März 2011.
- /SWE 78/ Swedish Corrosion Institute: Copper as canister material for unprocessed nuclear waste – evaluation with respect to corrosion, Report no. KBS-TR-90. Swedish Nuclear Fuel Supply Company: Stockholm, 1978.
- /SWE 06/ Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company: Fuel and canister process report for the safety assessment of SRCan', SKB TR 06-22. 2006.

- /SWE 08/ Swedish Radiation Safety Authority (SSM, Strål Säkerhets Myndigheten): SSMFS 2008:21 The Swedish Radiation Safety Authority Regulatory Code, The Swedish Radiation Safety Authority's regulations and general advice concerning safety in connection with the disposal of nuclear material and nuclear waste. Hrsg.: Yngvesson, U., SSMFS 2008:21, 8 S.: Stockholm, Sweden, 19. Dezember 2008.
- /TEC 19/ Technische Universität München (TUM): Die Neutronenquelle, Lebenszyklus eines Brennelements. Erreichbar unter <https://www.frm2.tum.de/die-neutronenquelle/castortransport/>, abgerufen am 26. September 2019.
- /THO 94/ Thomas, M.I. and Naish, C.C.: Galvanic Corrosion of Uranium and Aluminium in Cement Grouts at Elevated Temperatures, Report APEC(94)P170. 1994.
- /THU 99/ Thury, M. & Bossart, P.: The Mont Terri Rock laboratory - Results of the hydrogeological, geochemical and geotechnical experiments performed in 1996 and 1997, Swiss National Hydrological and Geological. Geologische Berichte, 1999.
- /TIL 08/ Till, J. E., Grogan, H.: Radiological Risk Assessment and Environmental Analysis. ISBN 9780195127270, DOI 10.1093/acprof:oso/9780195127270.001.0001, Oxford University Press, 2008.
- /TUR 09/ Turnbull, A.: A Review of the Possible Effects of Hydrogen on Lifetime of Carbon Steel Nuclear Waste Canisters. Hrsg.: Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), Nagra Technischer Bericht, NTB 09-04, 51 S.: Wettingen, Juli 2009.
- /TÜV 00/ TÜV SÜD: Gutachten zur Sicherheit des Forschungsreaktors München II (FRM-II) Standort Garching für das atomrechtliche Genehmigungsverfahren nach § 7 AtG, 3. Teilgenehmigung Teil 1: Einsatz des Brennelementes. 2000.
- /VAL 07/ Vallentin, R., Graffunder, I.: CASTOR KNK - der Transport- und Lagerbehälter zur Rückführung und Zwischenlagerung der Kernbrennstoffe aus der kompakten natriumgekühlten Kernreaktoranlage KNK II. Jahrestagung Kerntechnik 2007, Karlsruhe, 22.-24.Mai 2007 Berlin : INFORUM GmbH, 2007 CD-ROM, 2007.

- /VAN 04/ van Loon, L. R., Wersin, P., Soler, J. M., Eikenberg, J., Gimmi, T., Hernan, P., Dewonck, S., Savoye, S.: In-situ diffusion of HTO, $^{22}\text{Na}^+$, Cs^+ and I-in Opalinus Clay at the Mont Terri underground rock laboratory. *Radiochimica Acta*, Bd. 92, Nr. 9-11, S. 757–763, 2004.
- /VIE 92/ Vieno T., Hautajärvi, A., Koskinen L., Nordman H.: TVO-92 safety analysis of spent fuel disposal. 1992.
- /VKT 19/ VKTA Dresden: Der Rossendorfer Forschungsreaktor, Beendigung der nuklearen Altlastensanierung Erinnerungsschrift zur Entlassung des Rossendorfer Forschungsreaktors aus der atomrechtlichen Aufsicht und zur Beendigung der nuklearen Altlastensanierung am Forschungsstandort Rossendorf am 19. September 2019. September 2019.
- /WAB 52/ Waber J.T.: A review of the corrosion of uranium and its alloys. Los Alamos Scientific Laboratory, Nr. LA-1524, S. 1–47, 1952.
- /WAD 99a/ Wada, R. (Hrsg.): Experimental study on hydrogen gas generation rate from corrosion of zircaloy and stainless steel under anaerobic alkaline conditions. 7th International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation: Nagoya Japan, 1999.
- /WAD 99b/ Wada, R. (Hrsg.): Experimental study on hydrogen gas generation rate from corrosion of zircaloy and stainless steel under anaerobic alkaline conditions,. 7th International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation, Nagoya, Japan, 1999.
- /WAL 57/ Walton, C. J., McGeary, F. L., Engelhart, E. T.: Compatibility of Aluminum With Alkaline Building Products. *Corrosion*, Nr. 13, S. 41–50, 1957.
- /WAL 19/ Waldrop, K.: High Burnup Dry Storage Research Project Cask Loading and Initial Results, 30020115076. Electric Power Research Institute (EPRI), 128 S.: Palo Alto, CA, 2019.

- /WEB 97/ Weber, W. J., Ewing, R. C., Angell, C. A., Arnold, G. W., Cormack, A. N., Delaye, J. M., Griscom, D. L., Hobbs, L. W., Navrotsky, A., Price, D. L., Stoneham, A. M., Weinberg, M. C.: Radiation Effects in Glasses Used for Immobilization of High-level Waste and Plutonium Disposition. *Journal of Materials Research*, Bd. 12, Nr. 8, S. 1948–1978, DOI 10.1557/JMR.1997.0266, 1997.
- /WEY 17/ Weyand, T.: Endlagerkonzept im Tonstein (Schweiz), Anforderungen an aktuelle Endlagerkonzepte für unterschiedliche Wirtsgesteinsformationen, Bericht zum Arbeitspaket 1. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-471 Anhang 1, 79 S.: Köln, August 2017.
- /WIB 07/ Wiberg, E., Wiberg, N., Fischer, G.: *Lehrbuch der anorganischen Chemie*. 102. Aufl., 2149 S., ISBN 9783110177701, Walter de Gruyter: Berlin, New York, 2007.
- /WIE 14/ Wieczorek, K., Behlau, J., Heemann, U., Masik, S., Raab, M., Mueller, C. & Simo, E. K.: VIRTUS Virtuelles Untertagelabor im Steinsalz. Hrsg.: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, BGR, DBR Technology GmbH, Fraunhofer-Institut für Fabrikbetrieb und -automatisierung, GRS-354, 2014.
- /WIL 00/ Wildi, W., Appel, D., Buser, M., Dermange, F., Eckhardt, A., Hufschmied, P., Keusen, H.-R., Aebersold, M.: Entsorgungskonzepte für radioaktive Abfälle, Schlussbericht. Expertengruppe Entsorgungskonzepte für radioaktive Abfälle (EKRA), 91 S.: Bern, 31. Januar 2000.
- /WIL 13/ Wille, F., Wolff, D., Droste, B., Völzke, H.: German Approach and Experience Feedback of Transport Ability of SNF Packages after Interim Storage, Proceedings of the 17th International Symposium on the Packaging and Transportation of Radioactive Materials PATRAM 2013. San Francisco, USA, 18. August 2013.
- /WIM 15/ Wimmer, H., Skrzyppek, J., Kölbl, M.: CASTOR and CONSTOR - A well established system for the dry storage of spent fuel and high level waste. Bd. Volume 95 Issue 5/2015, S. Page 53 to 57.
- /Xie et al. 2012/Xie, M., Herbert, H.-J.: Geochemical Analysis of the Sealing System, Technical Report to Work Package 9.1.2, Preliminary Safety Case of the Gorleben Site (VSG)). Hrsg.: GRS, GRS-308, Februar 2012.

- /ZHA 93/ Zhang, Z.: Study for establishing proof of the long term safety of ultimate disposal of spent HTR fuel elements in an underground repository embedded in rock strata. Dissertation, Forschungszentrum Jülich GmbH. Institut für Chemische Technologie, 1993.
- /ZHA 13/ Zhang, C.-L., Czaikowski, O., Rothfuchs, T., Wieczorek, K.: Thermo-Hydro-Mechanical Processes in the Nearfield around a HLW Repository in Argillaceous Formations, Volume I, Laboratory Investigations. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS - 312, ISBN 978-3-939355-91-5: Braunschweig, 2013.
- /ZIE 08/ Ziegenhagen, J.: Technische Endlagerkonzepte, Entwicklung und Umsetzung von technischen Konzepten für geologische Endlager in allen Wirtsgesteinen (EUGENIA), Bericht zum AP 5. DBE TECHNOLOGY GmbH (DBETEC), TEC-10-2008-AP, 146 S.: Peine, September 2008.
- /ZUI 14/ Zuidema, P., Albert, W., Deplazes, G., Gautschi, A., Gribi, P., Hertrich, M., Madritsch, H., Ruff, M., Schneider, J., Schnellmann, M.: Sicherheitstechnischer Vergleich und Vorschlag der in Etappe 3 weiter zu untersuchenden geologischen Standortgebiete, Sicherheitstechnischer Bericht zu SGT Etappe 2, Textband + Anhang. Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), Nagra Technischer Bericht, NTB 14-01, 390 S.: Wettingen, Dezember 2014.

Abbildungsverzeichnis

Abb. 1.1	Schematische Darstellung des Ablaufs des Vorhabens KombiLyse	3
Abb. 2.1	Explosionszeichnung des CASTOR® V/19 mit PE-Moderatorstäben im Behältermantel /WIM 15/	12
Abb. 2.2	Konzept eines Barrierensystems in Kristallingestein /ESK 19/	52
Abb. 2.3	Schematisches Schweizer Endlagerkonzept /WIL 00/	55
Abb. 2.4	Barrierenkonzept (Behälter, Verfüllmaterial, Wirtsgestein) /PAT 12/	56
Abb. 2.5	Anforderungen an einen Behälter für HAA/Brennelemente /PAT 12/	58
Abb. 2.6	Stahlbehälter für abgebrannte Brennelemente /NAG 17/, /PAT 12/	59
Abb. 2.7	Behälter aus Stahl mit drei Kokillen /NAG 17/	60
Abb. 2.8	Längsschnitt einer Einlagerungsstrecke für Brennelemente (oben) und HAA (unten) sowie der Querschnitt einer Einlagerungsstrecke /NOL 02/	61
Abb. 2.9	Schema zur Handhabung der HAA-Behälter bis zur Einlagerung /PAT 12/	62
Abb. 2.10	Prozess der Umladung der HAA aus den externen Transport- in die internen Transportbehälter in der Umladezelle /NAG 13/	63
Abb. 2.11	Mehrbarrierenkonzept KBS-3 /SKB 10/	64
Abb. 2.12	Aufbau eines KBS-3-Endlagerbehälters /SVE 11a/	66
Abb. 2.13	Komponenten des den Endlagerbehälter umgebenden Buffer /SVE 11a/	67
Abb. 2.14	Physikalische Materialeigenschaften des Buffer /SVE 11a/	68
Abb. 2.15	Komponenten des Backfill in den Einlagerungsstrecken /SVE 11a/	69
Abb. 2.16	Physikalische Materialeigenschaften des Backfill /SVE 11a/	69
Abb. 2.17	Aufbau der Abdichtungen der Einlagerungsstrecken (Plugs) /SVE 11a/	70
Abb. 2.18	Verschluss der Zugänge zum Endlager /SVE 11b/	71
Abb. 2.19	Mehrbarrierensystem des Schweizer Konzepts /ENS 12/	80
Abb. 2.20	Behälter und Nahfeld im Endlagermodell /ALF 20a/	88
Abb. 3.1	Nachzerfallswärmeleistung eines LWR-BE mit UO ₂ bei Abbränden von 55 GWd/Mg SM (grün) bzw. 65 GWd/Mg SM (blau) und für MOX bei 55 GWd/Mg SM (rot) mit jeweils 526 kg SM pro BE	98

Abb. 3.2	Aktivität eines LWR-BE mit UO_2 bei Abbränden von 55 (grün) bzw. 65 GWd/Mg SM (blau) und für MOX bei 55 GWd/Mg SM (rot) mit jeweils 526 kg SM pro BE	98
Abb. 3.3	Wärmeleistung eines WWER-BE mit UO_2 bei einem Abbrand von 33 GWd/Mg SM mit 120 kg SM pro BE	101
Abb. 3.4	Aktivität eines WWER-BE mit UO_2 bei einem Abbrand von 33 GWd/Mg SM mit 120 kg SM pro BE	101
Abb. 3.5	Wärmeleistung einer AVR- (Blau) und THTR-Kanne (Grün) mit 950 bzw. 2.100 Brennelementkugeln bei einem Abbrand von 194 bzw. 112 GWd/Mg SM.....	106
Abb. 3.6	Aktivität einer AVR- (Blau) und THTR-Kanne (Grün) mit 950 bzw. 2.100 Brennelementkugeln bei einem Abbrand von 194 bzw. 112 GWd/Mg SM.....	106
Abb. 3.7	Darstellung der drei Szenarien für die Beladung eines generischen CASTOR® V/19 mit BE.....	116
Abb. 3.8	Maximale Hüllrohrtemperaturen der BE 10, 6 und 2 für die Beladeszenarien 1 bzw. 2 über einen Zeitraum von 95 Jahren Trockenlagerung berechnet mit COBRA-SFS, gültig für den heißesten Stab und die maximal belastete Axialzone	119
Abb. 3.9	Maximale Hüllrohrtemperaturen der BE 10, 6 und 2 in dem Beladeszenario 3 über einen Zeitraum von 95 Jahren Trockenlagerung berechnet mit COBRA-SFS.....	120
Abb. 3.10	Umfangsspannung mit (oben) und ohne (unten) Pelletschwellmodell für den Zentralstab des zentralen BE in der homogenen Beladevariante Szenario 1	121
Abb. 3.11	Umfangsspannung und Innendruck mit Pelletschwellmodell berechnet für die heißesten Stäbe der BE 6 und 10 im Beladeszenario 2.....	122
Abb. 3.12	Umfangsspannung und Innendruck ohne Pelletschwellmodell berechnet für die heißesten Stäbe der BE 6 und 10 im Beladeszenario 2.....	122
Abb. 3.13	Umfangsspannungen und Innendrucke ohne Pelletschwellmodell für die jeweils heißesten Stäbe der BE 2, 6 und 10 im Beladeszenario 3	123
Abb. 3.14	Umfangsspannungen und Innendrucke mit Pelletschwellmodell berechnet im Beladungsszenario 3 für die jeweils heißesten Stäbe der BE 2, 6 und 10...	124
Abb. 3.15	Umfangsspannung und Innendruck im simulierten Trocknungsprozess für das Beladeszenario 1 ohne Pelletschwellmodell	125

Abb. 3.16	Schematische Darstellung des vereinfachten Behältermodells des CASTOR® WWER 440/84	126
Abb. 3.17	Verlauf der Gesamtwärmeleistung über einen Zeitraum von 100 Jahren.....	127
Abb. 3.18	Temperaturverlauf in den Zonen 5 (blaue Kurve) und 0 (gelbe Kurve) über einen Lagerzeitraum von 100 Jahren	127
Abb. 3.19	Schematische Darstellung des Behältertyps CASTOR® MTR3.....	130
Abb. 3.20	Temperaturfeld im MTR3-Behältertyp bei einer Beladung von 275 W und einer Umgebungstemperatur von 25 °C, berechnet mittels des vereinfachten Behältermodells	131
Abb. 3.21	Darstellung des vereinfachten Behältermodells für die thermischen Analysen CASTOR® HAW 20/28 CG.....	132
Abb. 3.22	Gesamtwärmeleistung im Behälter CASTOR® HAW 20/28 CG	132
Abb. 3.23	Vergleich der Temperaturabnahme in der inneren Zone der Kokillen zum Mantel des Behälters CASTOR® HAW 20/28 CG	133
Abb. 3.24	Vergleich der Temperaturabnahme in der inneren Zone der Kokillen zum Mantel des Behälters CASTOR® HAW28M	134
Abb. 4.1	Schematische Darstellung der relevanten Einflussfaktoren zur Radionuklidmobili-sierung	160
Abb. 4.2	Temperaturentwicklung ausgewählter Behälter in Abhängigkeit der Zeit nach Einlagerungsbeginn /BOL 12/	165
Abb. 4.3	Temperaturverlauf im Ton in direkter Umgebung des Endlagerbehälters. Die Wärmeleistung beträgt 1.490 W (bestrahlte Brennelemente, oben) und von 688 W (CSD-V, unten) nach 10, 100 und 1.000 Jahren /JOH 02/	167
Abb. 4.4	Temperaturverlauf über die Zeit nach der Einlagerung der Behälter mit bestrahlten Brennelementen für die einzelnen Komponenten /SKB 04/	168
Abb. 4.5	Verlauf der Gesamtaktivität des (gesamten) Inventars von DWR-, SWR-, WWER-BE (BEmix), verglasten radioaktiven Abfällen (CSD-V), AVR- und THTR-Brennelementkugeln sowie FR-BE in einem Endlager über 1 Mio. Jahre.....	174
Abb. 4.6	Querschnitt einer Surrogat-Glaskokille mit Rissen in der Matrix /REP 19/	176
Abb. 4.7	Elemente (inaktiv und radioaktiv) im Abfallglas mit Kennzeichnung als Glasbestandteile und der Radioelemente /GRA 97/	177
Abb. 4.8	Beispiele vernetzter Glasstrukturen aus Si-, B- und Al-Tetraeder und Na-Ionen (i) aus /DOR 19/ und (ii) aus /KRI 21/; möglicher Si-O-Si-Bindungsbruch durch Reaktion mit Wasser (Hydrolyse) aus /MIC 83/	178

Abb. 4.9	Gesamtaktivität von verglasten radioaktiven Abfällen und relativer Beitrag von Actinoiden (exklusive Uran und Plutonium), Plutonium, Uran, Spalt- und Aktivierungsprodukten sowie Zerfallsprodukten zur Gesamtaktivität.....	179
Abb. 4.10	Zusammensetzung zum beginning- und end-of-life (BOL, EOL) beim Abbrand von 40 GWd/MgSM für UO ₂ - und MOX-Brennstoff /HUM 20/	181
Abb. 4.11	Schematische Darstellung der Verteilung der Radionuklide in einem Brennstab /JOH 97/.....	181
Abb. 4.12	Gesamtaktivität aller einzulagernden bestrahlten BE und relativer Beitrag von Actinoiden (exklusive Uran und Plutonium), Plutonium, Uran, Spalt- und Aktivierungsprodukten (aus Tab. 4.3) sowie Zerfallsprodukten zur Gesamtaktivität	183
Abb. 4.13	Schematische Abbildung eines AVR/THTR-BE und eines TRISO Brennelementpartikels /FAC 06/.....	185
Abb. 4.14	Gesamtaktivität von THTR-Brennelementkugeln und relativer Beitrag von Actinoiden (exklusive Uran und Plutonium), Plutonium, Uran, Spalt- und Aktivierungsprodukten (aus Tab. 4.3) sowie Zerfallsprodukten zur Gesamtaktivität	186
Abb. 4.15	Gesamtaktivität von AVR-Brennelementkugeln und relativer Beitrag von Actinoiden, Plutonium (exklusive Uran und Plutonium), Uran, Spalt- und Aktivierungsprodukten (aus Tab. 4.3) sowie Zerfallsprodukten zur Gesamtaktivität	187
Abb. 4.16	Gesamtaktivität von FR-BE und relativer Beitrag von Actinoiden, Plutonium, Uran, Spalt- und Aktivierungsprodukten (aus Tab. 4.3) sowie Zerfallsprodukten zur Gesamtaktivität	189
Abb. 4.17	Konzepte unterschiedlicher Endlagerbehälter (nicht maßstabsgetreu)	191
Abb. 4.18	Korrosionsprodukte der aeroben (oxic) und anaeroben (anoxic) Korrosion /ILG 14/	193
Abb. 4.19	Materialabtragungsrate von Sphärohguss GGG 40.3 in drei Salzlösungen bei 150 °C	197
Abb. 4.20	Tragfähigkeit eines CASTOR®-AVR/THTR-Außenbehälters anhand des Streckgrenzen- und Bruchdehnungskriteriums /FZJ 99/	200
Abb. 4.21	Korrosionsraten von 15MnNi6-3 bei 150 °C in drei unterschiedlichen salinaren Lösungsmedien /GRA 98/	201
Abb. 4.22	Allgemeine Korrosionsrate von 15MnNi6 bei 90°C in MgCl ₂ -Lösung mit und ohne Gamma-Bestrahlung /KIE 17b/	202

Abb. 4.23	Abtragungsraten der Legierung (Cu 70 %/Ni 30 %) gemessen über verschiedene Zeiträume in MgCl ₂ - und in NaCl-Lösungen bei 150 °C und für unterschiedliche Sulfid-Konzentrationen /KIE 17b/	210
Abb. 4.24	Vergleich verschiedener Abtragungsraten von Zircaloy-4 in unterschiedlichen Elektrolytsystemen in Abhängigkeit von der Temperatur /KUP 00/	214
Abb. 4.25	Standardpotential von U, Al und Fe in Wasser bei einer Temperatur von 25 °C /MAZ 03a/	216
Abb. 4.26	Korrosionsraten von Aluminium in Abhängigkeit vom pH-Wert /HZB 21/	217
Abb. 4.27	Modell der Reaktionen, die an der Glasoberfläche bzw. oberflächennah ablaufen am Beispiel des binären Modellsystems Na ₂ O-SiO ₂ (verändert aus /DJA 14/)	221
Abb. 4.28	Schematische Darstellung von Glaskorrosionsschichten /GRA 97/	222
Abb. 4.29	Ablaufende Phasen und Prozesse der Glaskorrosion /GIN 13/	223
Abb. 4.30	Darstellung verschiedener Korrosionsraten /KIE 12/	224
Abb. 4.31	Temperaturverlauf für die drei Wirtsgesteinsarten abgeleitet aus den jeweiligen Temperaturfeldberechnungen	226
Abb. 4.32	Berechnete Korrosionsraten, beginnend ab dem Zeitpunkt des Endlagerverschlusses in Salz, für verschiedene effektive Oberflächen (bezogen auf eine Glaskokille)	227
Abb. 4.33	Entwicklung der Korrosionsrate, beginnend mit dem Zeitpunkt des Endlagerverschlusses in Ton, für verschiedene effektive Oberflächen (bezogen auf eine Glaskokille)	228
Abb. 4.34	Entwicklung der Korrosionsrate, beginnend mit dem Zeitpunkt des Endlagerverschlusses in Kristallingestein, für verschiedene effektive Oberflächen (bezogen auf eine Glaskokille)	228
Abb. 4.35	Anteil gelöster Glasmatrix in Abhängigkeit des Barriereversagens (t ₁) für verschiedene effektive Oberflächen	232
Abb. 4.36	Anteil gelöster Glasmatrix in Abhängigkeit des Barriereversagens (t ₁) für verschiedene effektive Oberflächen	233
Abb. 4.37	Anteil gelöster Glasmatrix in Abhängigkeit des Barriereversagens (t ₁) für verschiedene effektive Oberflächen	234
Abb. 4.38	Radiolyse von Wasser /LOU 16/	241
Abb. 4.39	Schematische Skizze zur Brennstoffmatrixauflösung	243

Abb. 4.41	Schematische Darstellung der Reichweite λ_α und des Geometriefaktors $F^{\alpha}Geo$	244
Abb. 4.42	Alpha-Leistung für Brennstoffe mit unterschiedlichen Abbränden in Abhängigkeit der Zeit (nach Entladung aus dem Reaktor).....	246
Abb. 4.43	Korrosionsraten für Brennstoffe mit unterschiedlichen Abbränden in Abhängigkeit der Zeit (nach Entladung aus dem Reaktor).....	247
Abb. 4.44	Korrosionsraten für MOX mit 55 GWd/Mg SM in Abhängigkeit von t, A_{eff} und G_{eff}	248
Abb. 4.45	Bereich der Korrosionsraten aufgespannt von $r(t)_{min}$ und $r(t)_{max}$ für MOX	249
Abb. 4.46	Korrosionsraten für WWER mit 33 GWd/Mg SM in Abhängigkeit von t, A_{eff} und G_{eff}	249
Abb. 4.47	Bereich der Korrosionsraten aufgespannt von $r(t)_{min}$ und $r(t)_{max}$ für WWER	250
Abb. 4.48	Anteil gelöster UO_2 -Matrix für drei fiktive Zeitpunkte eines Barriereversagens: 500, 1.000 und 10.000 Jahre	251
Abb. 4.49	Anteil gelöster UO_2 -Matrix für drei fiktive Zeitpunkte eines Barriereversagens: 500, 1.000 und 10.000 Jahre	252
Abb. 4.50	Anteil gelöster UO_2 -Matrix für G_{eff} : 1; 0,1; 0,01; 0,001, bei einem Barriereversagen nach 500 Jahren	253
Abb. 4.51	Anteil gelöster UO_2 -Matrix für G_{eff} : 1; 0,1; 0,01; 0,001, bei einem Barriereversagen nach 500 Jahren	253
Abb. 4.52	Anteil gelöster UO_2 -Matrix für A_{eff} bei einem Barriereversagen nach 500 Jahren	254
Abb. 4.53	Anteil gelöster UO_2 -Matrix für verschiedene A_{eff} bei einem Barriereversagen nach 500 Jahren	255
Abb. 4.54	Mobilisierungsmechanismen von Radionukliden aus HTR-BE /NAB 10/	262
Abb. 4.55	Ausfallwahrscheinlichkeit von TRISO-Partikeln und Beschichtungen unter Endlagerbedingungen /MCE 12/.....	267
Abb. 5.1	Schematische Darstellung der Zusammenhänge zur Ableitung der Handlungsoptionen bzw. Maßnahmen	278

Tabellenverzeichnis

Tab. 2.1	Behältertypen in der Zwischenlagerung (Stand: 2019) /BAR 20/	6
Tab. 2.2	Bestand an Versuchs- und Forschungsreaktorbrennstoffen in der Zwischenlagerung in Deutschland zum Stichtag 31.12.2019 /BAR 20/	25
Tab. 2.3	Zu entsorgende verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung (Stand: 31.12.2019) /GES 20/	31
Tab. 2.4	Übersicht der Eigenschaften der Hüllrohrproben /BIL 13b/	39
Tab. 2.5	Betrachtete Endlagerkonzepte	47
Tab. 2.6	Inventare der einzelnen Abfallarten zum Jahr 2075 in Becquerel, bezogen auf die gesamte anfallende Menge einer Abfallart /LAR 13/	78
Tab. 3.1	LWR-Brennelemente	97
Tab. 3.2	WWER-BE: Nachzerfallswärmeleistung und Aktivität für ein BE /HES 94/	100
Tab. 3.3	Spezifikationen und Anteile der eingesetzten AVR/THTR-Brennelementkugeln aus /DBE 11/, /BFS 93/, /BFS 16a/	104
Tab. 3.4	THTR-Brennelementkugeln: Nachzerfallswärmeleistung und Aktivität für eine Brennelementkugel und eine THTR-Kanne mit 2.100 Brennelementkugeln /GRS 99/, /GES 11/	105
Tab. 3.5	AVR- Brennelementkugeln: Nachzerfallswärmeleistung und Aktivität für eine Brennelementkugel und eine AVR-Kanne mit 950 Brennelementkugeln /GRS 99/, /GES 11/	105
Tab. 3.6	FRM II-Brennelemente: Nachzerfallswärmeleistung und Aktivität pro BE mit 128 GWd/Mg SM Abbrand für einen Abklingzeitraum bis 100 Jahre	108
Tab. 3.7	BER II Brennelemente: Nachzerfallswärmeleistung und Aktivität pro Brennelement mit 112 GWd/Mg SM Abbrand für einen Abklingzeitraum bis 50 Jahre /GES 11/	108
Tab. 3.8	Nachzerfallswärmeleistung und Aktivität für einen CASTOR® KNK mit den KNK II und OH-Brennelemente für eine Zeitdauer von 50 Jahren nach der Einlagerung /GES 11/	112
Tab. 3.9	Nachzerfallswärmeleistung und Aktivität einer Glaskokille (CSD-V) /GES 11/	115
Tab. 3.10	Verwendete Eingangsparameter des im Szenario 1 betrachteten Brennstabes	118

Tab. 4.1	Eigenschaften von Porenwassern und Fluideinschlüssen in Salz, Ton /MÄD 09/, /PEA 02/, /CUR 02/ und Kristallin /ARC 06/ /SKB 15/ sowie Bentonit (Versatzstoff, /PEA 02/, /ARC 06/)	170
Tab. 4.2	Mögliche Bandbreite relevanter hydrogeologischer Parameter der Wirtsgesteine und der geotechnischen Barriere /BGE 20/	172
Tab. 4.3	Für die Endlagerung relevante Actinoide (links) und Spalt- und Aktivierungsprodukte (rechts) mit jeweils $T_{1/2} > 20$ a	173
Tab. 4.4	Anteil der Aktivität der jeweiligen Brennstoffe bzw. des HAW-Glases in % (ggf. weichen die Summen aufgrund von Rundungen ab)	175
Tab. 4.5	Zusammensetzung verschiedener Abfallgläser (Angaben in Massen-%, ohne Abfallnuklide, normiert), Werte entnommen aus /ROT 01/, /SOM 93/, /OJO 07/	176
Tab. 4.6	Aktivität der verglasten Abfälle und relativer Anteil an der Aktivität des gesamten Inventars bis 1 Mio. Jahre nach Verschluss des Endlagers	180
Tab. 4.7	Schätzwerte für verschiedene Nuklide der IRF für UO_2 -Brennstoff (DWR, konservativ geschätzt in Klammern, Angaben in % des Gesamtinventars) /KIE 12/	182
Tab. 4.8	Gesamtaktivität und relativer Anteil von Brennelementen an der Gesamtaktivität über einen Zeitraum von 1 Mio. Jahren nach Einlagerung	184
Tab. 4.9	Gesamtaktivität der THTR-Brennelementkugeln und relativer Anteil an der Gesamtaktivität über einen Zeitraum von 1 Mio. Jahren nach Einlagerung	188
Tab. 4.10	Gesamtaktivität der AVR-Brennelementkugeln und relativer Anteil an der Gesamtaktivität über einen Zeitraum von 1 Mio. Jahren nach Einlagerung	188
Tab. 4.11	Gesamtaktivität der FR-Brennelemente und relativer Anteil an der Gesamtaktivität über einen Zeitraum von 1 Mio. Jahren nach Einlagerung	190
Tab. 4.12	Behälterwerkstoffe und Korrosionsexperimente	193
Tab. 4.13	Materialabtragungsraten verschiedener Experimente; Außenbehälter POLLUX®-10 (EN-GJS-400, Werkstoff Nr. 0.7043)	198
Tab. 4.14	Materialabtragungsraten verschiedener Experimente; Innenbehälter POLLUX® (15MnNi6-3, Werkstoff Nr. 1.6210)	203
Tab. 4.15	Materialabtragungsraten verschiedener Experimente; X12CrNi23-13 (AISI Type 309 SS, Werkstoff Nr. 1.4833)	205
Tab. 4.16	Materialabtragungsraten verschiedener Experimente; unlegierte Stähle/Kohlenstoffstahl und TStE 355 (Werkstoff Nr. 1.0566) und unlegierte Stähle	206

Tab. 4.17	Materialabtragungsraten verschiedener Experimente; reines Cu und Cu ₃₀ Ni	211
Tab. 4.18	Zuordnung Einflussfaktoren aus Zwischen- bzw. Endlagerung.....	220
Tab. 4.19	Werte für den präexponentiellen Faktor A und die Aktivierungsenergie E _a	225
Tab. 4.20	Parameter für eine Glaskokille aus /COG 03/	227
Tab. 4.21	Korrosionsdauer für einen Anteil von 10 % und 50 % der Glasmatrix für die minimale und maximale effektive Oberfläche (A _{eff}) unter Berücksichtigung des Versagens der Barriere (t ₁) in Salz (in Jahren).....	232
Tab. 4.22	Korrosionsdauer für einen Anteil von 10 % und 50 % der Glasmatrix für die minimale und maximale effektive Oberfläche (A _{eff}) unter Berücksichtigung des Versagens der Barriere (t ₁) in Ton (in Jahren)	233
Tab. 4.23	Korrosionsdauer für einen Anteil von 10 % und 50 % der Glasmatrix für die minimale und maximale effektive Oberfläche (A _{eff}) unter Berücksichtigung des Versagens der Barriere (t ₁) in Kristallin (in Jahren)	234
Tab. 4.24	Ausgangswerte und Ergebnis.....	235
Tab. 4.25	Wirtsgesteinsabhängige Berechnung der für die Auflösung des SiO ₂ -Anteils einer Glaskokille benötigten Menge an Wasser und der hierfür benötigten Dauer auf Grundlage der Parameter aus Tab. 4.2.	236
Tab. 4.26	Zuordnung der Einflussfaktoren aus Zwischen- bzw. Endlagerung.....	240
Tab. 4.27	Eingangswerte zur Berechnung der Korrosionsraten der LWR-Brennstoffe bezogen auf einen Brennstab.....	245
Tab. 4.28	Korrosionsraten der Brennstoffe für unterschiedliche Zeitpunkte nach der Bestrahlung	247
Tab. 4.29	Werte für Parameterstudie für G _{eff} und A _{eff}	248
Tab. 4.30	Korrosionsraten (max. und min.) für MOX und WWER für unterschiedliche Zeitpunkte	250
Tab. 4.31	Ausgangswerte und Ergebnis der Wasserkorrosion Brennstoffmatrix.....	256
Tab. 4.32	Wirtsgesteinsabhängige Berechnung, der für die vollständige Oxidation eines Brennstabes zur Verfügung stehenden Menge Wasser und der hierfür benötigten Dauer (hydrogeologische Daten aus Tab. 4.2).....	257
Tab. 4.33	Experimentelle Daten zu Korrosionsraten und Lebensdauer von Graphit (unter Argon-Atmosphäre, bei 90°C) /FAC 06/	263
Tab. 4.34	Experimentelle Daten zu Korrosionsraten und Lebensdauer von Pyrokohlenstoff (unter Argon-Atmosphäre, bei 90°C) /FAC 06/	263

Tab. 4.35	Experimentelle Daten zu Korrosionsraten und Lebensdauer von Siliciumcarbid (an Luft) /FAC 06/	264
Tab. 5.1	Mögliche Maßnahmen für die verglasten radioaktiven Abfälle	280
Tab. 5.2	Mögliche Maßnahmen für die Brennelemente aus Leichtwasserreaktoren	284
Tab. 5.3	Mögliche Maßnahmen für die WWER-Brennelemente	290
Tab. 5.4	Mögliche Maßnahmen für die AVR/THTR-Brennelementkugeln	292
Tab. 5.5	Mögliche Maßnahmen für die Forschungsreaktor-Brennelemente für unterschiedliche Zeitpunkte (Zwischenlagerung, Konditionierung)	294
Tab. 5.6	Handlungsoptionen und deren Auswirkung auf die Radionuklidmobilität, den Strahlenschutz, Handhabung der Inventare sowie die Sicherheit der Zwischenlagerung	296

Abkürzungsverzeichnis

AKEnd	Arbeitskreis Auswahlverfahren Endlagerstandorte
ANL	Argonne National Laboratory
AtG	Atomgesetz
AVR	Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor Jülich
BAM	Bundesanstalt für Materialforschung und -Prüfung
BASE	Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung
BE	Brennelement(e)
BGE	Bundesgesellschaft für Endlagerung
BS	Brennstab
BSK	Brennstabkokille
CASTOR	Cask for storage and transport of radioactive material
Cigéo	Centre industriel de stockage géologique
CSD-B	Conteneur Standard de Déchets Bitumés
CSD-C	Conteneur Standard de Déchets Compactés
CSD-V	Conteneur Standard de Déchets Vitrifiés
DOE	United States Department of Energy
DWR	Druckwasserreaktor
EPRI	Electric Power Research Institute
ESCP	Extended Storage Collaboration Program
ewG	einschlusswirksamer Gebirgsbereich
FR-BE	Forschungsreaktor-Brennelemente
HAA	Hochaktiver Abfall (Schweizer Nomenklatur)
HAW	High Active Waste
IAEA	International Atomic Energy Agency
JRC-ITU	Joint Research Center – Institute for Transuranium Elements
KBS-3	KärnBränsleSäkerhet – Nuclear Fuel Safety; Einlagerungskonzept von Cu ummantelten Abfallbehälter in kurzen Bohrlöchern (FIN, SWE)
KGR	Kernkraftwerk Greifswald
KKR	Kernkraftwerk Rheinsberg
KNK	Kompakte Natriumgekühlte Kernreaktoranlage
KOMTESSA	Vorhaben „Komplettierung des Instrumentariums zur technischen Realisierbarkeit und sicherheitlichen Bewertung von HAW-Endlagern im Salinar“
LMA	Langlebiger mittlradioaktiver Abfall
LWR	Leichtwasserreaktor
LZS	Langzeitsicherheit
MAW	Medium Active Waste
MIF	Medizin, Industrie und Forschung

MIMAS	Micronized Master blend
MIRA	Modellhaftes Inventar radioaktiver Abfälle
MIRAM	Modellhaftes Inventar für radioaktive Materialien
MOX	Mischoxid
MTR	Materials Testing Reactors
NAGRA	Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle
ORNL	Oak Ridge National Laboratory
PNNL	Pacific North-West National Laboratory
PUREX	Plutonium and Uranium Recovery by Extraction
PyC	Pyrokohlenstoff
RAKE	Rossendorfer Anordnung für kritische Experimente
RESUS	Vorhaben „Grundlagenentwicklung für repräsentative vorläufige Sicherheitsuntersuchungen und zur sicherheitsgerichteten Abwägung von Teilgebieten mit besonders günstigen geologischen Voraussetzungen für die sichere Endlagerung hochradioaktiver Abfälle“
RFR	Rossendorfer Forschungsreaktor
RRR	Rossendorfer Ringzonenreaktor
SiC	Siliziumcarbid
SKB	Svensk Kärnbränslehantering Aktiebolag
StandAG	Standortauswahlgesetz
SWR	Siedewasserreaktor
SMA	schwach-mittelradioaktive Abfälle (Schweizer Nomenklatur)
THTR	Thorium-Hoch-Temperatur-Reaktor
TN®	Transnucléaire
TLB	Transport- und Lagerbehälter
TRIGA	Training, Research, Isotopes, General Atomic
VKTA	Verein für Kernverfahrenstechnik und Analytik Rossendorf e.V.
VSG	Vorläufige Sicherheitsanalyse Gorleben
WAK	Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe
WAC	Waste Acceptance Criteria
WKP	Wiederkehrende Prüfungen
W&T	Wissenschaft und Technik
WWER	Wasser-Wasser-Energie-Reaktor

A Anhang

A.1 Radionuklide/Inventar

Für alle folgenden Inventare wurde ein Wert von 1E-20 Bq als Cutoff für die Darstellung der Aktivität gewählt.

A. Tab. 1 Aktivität der Nuklide für einige Zeitpunkte für das Glasinventar (in Bq)

Nuklid	0	500 a	1.000 a	10.000 a	100.000 a	1.000.000 a
Ac-225	0,00E+00	6,25E+08	2,82E+11	1,62E+12	3,30E+13	7,26E+13
Ac-227	7,05E+09	7,51E+09	7,50E+09	7,92E+09	3,72E+10	4,90E+10
Ac-228	0,00E+00	1,09E+08	1,09E+08	1,09E+08	1,11E+08	1,28E+08
Ag-108	0,00E+00	9,80E+11	1,49E+09	3,42E+04	0,00E+00	0,00E+00
Ag-108m	1,33E+13	1,13E+13	1,71E+10	3,93E+05	0,00E+00	0,00E+00
Am-241	1,55E+17	1,31E+17	2,02E+14	1,04E+13	2,73E+09	9,70E-23
Am-242	0,00E+00	5,01E+14	8,81E+05	3,41E-09	0,00E+00	0,00E+00
Am-242m	8,42E+14	5,03E+14	8,85E+05	3,43E-09	0,00E+00	0,00E+00
Am-243	2,76E+15	2,73E+15	1,86E+15	9,85E+14	7,29E+10	8,51E+06
At-217	0,00E+00	6,25E+08	2,82E+11	1,62E+12	3,30E+13	7,26E+13
At-218	0,00E+00	2,45E+05	1,06E+07	3,34E+07	2,21E+08	5,20E+07
Ba-137m	0,00E+00	2,61E+17	2,39E-24	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Be-10	4,01E+10	4,01E+10	4,00E+10	3,99E+10	3,81E+10	2,53E+10
Bi-209	0,00E+00	1,62E-09	1,47E-05	2,32E-04	6,65E-02	2,30E+00
Bi-210	0,00E+00	9,99E+08	5,26E+10	1,66E+11	1,11E+12	2,60E+11
Bi-211	0,00E+00	7,51E+09	7,50E+09	7,92E+09	3,72E+10	4,90E+10
Bi-212	0,00E+00	3,03E+09	1,09E+08	1,09E+08	1,11E+08	1,28E+08
Bi-213	0,00E+00	6,25E+08	2,82E+11	1,62E+12	3,30E+13	7,26E+13
Bi-214	0,00E+00	1,22E+09	5,32E+10	1,67E+11	1,11E+12	2,60E+11
C-14	6,63E+13	6,55E+13	3,98E+13	1,75E+13	7,98E+07	1,01E-39
Ca-41	1,41E+11	1,41E+11	1,37E+11	1,31E+11	6,58E+10	1,58E+08
Cl-36	1,88E+12	1,88E+12	1,86E+12	1,83E+12	1,45E+12	1,88E+11
Cm-242	0,00E+00	4,16E+14	7,31E+05	2,83E-09	0,00E+00	0,00E+00
Cm-245	2,41E+13	2,39E+13	1,71E+13	9,86E+12	2,59E+09	9,19E-23
Cm-246	3,41E+12	3,36E+12	1,85E+12	6,92E+11	2,78E+05	1,93E-51
Cm-247	8,89E+06	8,89E+06	8,89E+06	8,89E+06	8,85E+06	8,50E+06
Cm-248	1,70E+07	1,70E+07	1,69E+07	1,66E+07	1,36E+07	2,32E+06
Cs-135	8,21E+13	8,21E+13	8,20E+13	8,18E+13	7,94E+13	6,07E+13
Cs-137	3,08E+18	2,76E+17	2,53E-24	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Fr-221	0,00E+00	6,25E+08	2,82E+11	1,62E+12	3,30E+13	7,26E+13
Fr-223	0,00E+00	1,04E+08	1,04E+08	1,09E+08	5,14E+08	6,76E+08

Nuklid	0	500 a	1.000 a	10.000 a	100.000 a	1.000.000 a
Hg-206	0,00E+00	1,90E+01	1,00E+03	3,16E+03	2,10E+04	4,94E+03
Ho-116m	8,18E+10	7,70E+10	7,21E+09	1,46E+08	6,24E-18	0,00E+00
I-129	4,97E+12	4,97E+12	4,97E+12	4,97E+12	4,95E+12	4,76E+12
Mo-93	1,77E+11	1,74E+11	8,54E+10	2,65E+10	6,50E+02	0,00E+00
Nb-93m	0,00E+00	3,29E+14	3,32E+14	3,31E+14	3,16E+14	2,11E+14
Nb-94	5,71E+10	5,69E+10	4,95E+10	3,93E+10	1,24E+09	8,44E-05
Ni-59	3,19E+11	3,19E+11	3,07E+11	2,89E+11	1,15E+11	3,49E+07
Ni-63	2,73E+13	1,33E+13	8,45E+00	7,03E-20	0,00E+00	0,00E+00
Np-237	6,29E+13	6,77E+13	9,40E+13	9,39E+13	9,09E+13	6,82E+13
Np-238	0,00E+00	2,31E+12	4,06E+03	1,57E-11	0,00E+00	0,00E+00
Np-239	0,00E+00	2,73E+15	1,86E+15	9,85E+14	7,29E+10	8,51E+06
Np-240	0,00E+00	1,01E+07	1,01E+07	1,01E+07	1,01E+07	1,00E+07
Np-240m	0,00E+00	8,44E+09	8,44E+09	8,44E+09	8,43E+09	8,37E+09
Pa-231	7,53E+09	7,53E+09	7,50E+09	7,92E+09	3,72E+10	4,90E+10
Pa-233	0,00E+00	6,77E+13	9,40E+13	9,39E+13	9,09E+13	6,82E+13
Pa-234	0,00E+00	1,46E+08	1,46E+08	1,46E+08	1,46E+08	1,46E+08
Pa-234m	0,00E+00	9,11E+10	9,11E+10	9,11E+10	9,11E+10	9,12E+10
Pb-209	0,00E+00	6,25E+08	2,82E+11	1,62E+12	3,30E+13	7,26E+13
Pb-210	0,00E+00	9,99E+08	5,26E+10	1,66E+11	1,11E+12	2,60E+11
Pb-211	0,00E+00	7,51E+09	7,50E+09	7,92E+09	3,72E+10	4,90E+10
Pb-212	0,00E+00	3,03E+09	1,09E+08	1,09E+08	1,11E+08	1,28E+08
Pb-214	0,00E+00	1,22E+09	5,31E+10	1,67E+11	1,11E+12	2,60E+11
Pd-107	1,97E+13	1,97E+13	1,97E+13	1,97E+13	1,95E+13	1,77E+13
Po-210	0,00E+00	9,95E+08	5,26E+10	1,66E+11	1,11E+12	2,60E+11
Po-211	0,00E+00	2,07E+07	2,07E+07	2,18E+07	1,03E+08	1,35E+08
Po-212	0,00E+00	1,94E+09	6,98E+07	6,99E+07	7,11E+07	8,21E+07
Po-213	0,00E+00	6,11E+08	2,76E+11	1,59E+12	3,22E+13	7,10E+13
Po-214	0,00E+00	1,22E+09	5,31E+10	1,67E+11	1,11E+12	2,60E+11
Po-215	0,00E+00	7,51E+09	7,50E+09	7,92E+09	3,72E+10	4,90E+10
Po-216	0,00E+00	3,03E+09	1,09E+08	1,09E+08	1,11E+08	1,28E+08
Po-218	0,00E+00	1,22E+09	5,32E+10	1,67E+11	1,11E+12	2,60E+11
Pu-238	2,04E+15	1,19E+15	1,94E+06	7,53E-09	0,00E+00	0,00E+00
Pu-239	4,09E+14	4,16E+14	6,21E+14	7,52E+14	6,47E+13	8,52E+06
Pu-240	1,14E+15	1,13E+15	7,31E+14	3,58E+14	1,66E+10	8,37E+09
Pu-241	0,00E+00	2,38E+13	1,71E+13	9,88E+12	2,59E+09	9,20E-23
Pu-242	2,13E+12	2,15E+12	2,19E+12	2,18E+12	1,81E+12	3,48E+11
Pu-243	0,00E+00	8,89E+06	8,89E+06	8,89E+06	8,85E+06	8,50E+06
Pu-244	8,45E+09	8,45E+09	8,45E+09	8,45E+09	8,44E+09	8,38E+09
Ra-223	0,00E+00	7,51E+09	7,50E+09	7,92E+09	3,72E+10	4,90E+10
Ra-224	0,00E+00	3,03E+09	1,09E+08	1,09E+08	1,11E+08	1,28E+08

Nuklid	0	500 a	1.000 a	10.000 a	100.000 a	1.000.000 a
Ra-225	0,00E+00	6,25E+08	2,82E+11	1,62E+12	3,30E+13	7,26E+13
Ra-226	5,33E+08	1,22E+09	5,32E+10	1,67E+11	1,11E+12	2,60E+11
Ra-228	0,00E+00	1,09E+08	1,09E+08	1,09E+08	1,11E+08	1,28E+08
Rb-87	4,08E+09	4,08E+09	4,08E+09	4,08E+09	4,08E+09	4,08E+09
Rn-217	0,00E+00	4,37E+04	1,98E+07	1,14E+08	2,31E+09	5,08E+09
Rn-218	0,00E+00	2,45E+02	1,06E+04	3,34E+04	2,21E+05	5,20E+04
Rn-219	0,00E+00	7,51E+09	7,50E+09	7,92E+09	3,72E+10	4,90E+10
Rn-220	0,00E+00	3,03E+09	1,09E+08	1,09E+08	1,11E+08	1,28E+08
Rn-222	0,00E+00	1,22E+09	5,32E+10	1,67E+11	1,11E+12	2,60E+11
Sb-126	0,00E+00	1,34E+13	1,33E+13	1,30E+13	9,59E+12	6,60E+11
Sb-126m	0,00E+00	9,60E+13	9,48E+13	9,29E+13	6,85E+13	4,71E+12
Se-79	8,53E+12	8,53E+12	8,45E+12	8,31E+12	6,56E+12	8,14E+11
Sm-147	1,12E+09	1,12E+09	1,12E+09	1,12E+09	1,12E+09	1,12E+09
Sm-151	3,49E+16	1,56E+16	3,00E+02	7,90E-21	0,00E+00	0,00E+00
Sn-126	9,60E+13	9,60E+13	9,48E+13	9,29E+13	6,85E+13	4,71E+12
Sr-90	2,02E+18	1,63E+17	2,16E-26	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Tc-99	2,64E+15	2,64E+15	2,60E+15	2,55E+15	1,83E+15	9,90E+13
Th-227	0,00E+00	7,41E+09	7,40E+09	7,81E+09	3,67E+10	4,83E+10
Th-228	0,00E+00	3,03E+09	1,09E+08	1,09E+08	1,11E+08	1,28E+08
Th-229	2,74E+08	6,25E+08	2,82E+11	1,62E+12	3,30E+13	7,26E+13
Th-230	1,56E+10	1,67E+10	9,03E+10	2,06E+11	1,11E+12	2,59E+11
Th-231	0,00E+00	6,19E+09	8,33E+09	1,30E+10	4,68E+10	4,90E+10
Th-232	1,09E+08	1,09E+08	1,09E+08	1,09E+08	1,11E+08	1,28E+08
Th-234	0,00E+00	9,11E+10	9,11E+10	9,11E+10	9,11E+10	9,12E+10
Tl-206	0,00E+00	1,34E+03	7,05E+04	2,23E+05	1,48E+06	3,48E+05
Tl-207	0,00E+00	7,49E+09	7,48E+09	7,89E+09	3,71E+10	4,89E+10
Tl-208	0,00E+00	1,09E+09	3,92E+07	3,92E+07	3,99E+07	4,61E+07
Tl-209	0,00E+00	1,37E+07	6,21E+09	3,57E+10	7,25E+11	1,60E+12
Tl-210	0,00E+00	2,57E+05	1,12E+07	3,51E+07	2,32E+08	5,46E+07
U-232	8,13E+09	2,84E+09	3,44E-09	1,10E-38	0,00E+00	0,00E+00
U-233	2,13E+10	5,11E+10	1,65E+12	4,32E+12	3,57E+13	7,24E+13
U-234	9,19E+11	1,38E+12	2,03E+12	1,99E+12	1,52E+12	2,07E+11
U-235	6,15E+09	6,19E+09	8,33E+09	1,30E+10	4,68E+10	4,90E+10
U-236	7,72E+10	8,07E+10	1,92E+11	2,96E+11	3,95E+11	3,85E+11
U-237	0,00E+00	5,83E+08	4,20E+08	2,42E+08	6,34E+04	2,25E-27
U-238	9,11E+10	9,11E+10	9,11E+10	9,11E+10	9,11E+10	9,12E+10
U-240	0,00E+00	8,44E+09	8,44E+09	8,44E+09	8,43E+09	8,37E+09
Y-90	0,00E+00	1,63E+17	2,16E-26	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Zr-93	3,41E+14	3,41E+14	3,40E+14	3,39E+14	3,24E+14	2,17E+14
Gesamt	5,30E+18	1,02E+18	9,14E+15	6,87E+15	3,29E+15	1,42E+15

A. Tab. 2 Aktivität der Nuklide zum jeweiligen Zeitpunkt für das BE-Inventar (in Bq)

Nuklid	0	500 a	1.000 a	10.000 a	100.000 a	1.000.000 a
Ac-225	0,00E+00	1,85E+10	2,57E+11	1,89E+13	3,87E+14	8,53E+14
Ac-227	2,42E+10	3,94E+10	1,53E+11	1,39E+12	1,07E+13	1,30E+13
Ac-228	0,00E+00	2,30E+08	2,37E+08	3,32E+08	1,63E+09	1,31E+10
Ag-108	0,00E+00	3,09E+12	6,69E+11	1,08E+05	0,00E+00	0,00E+00
Ag-108m	4,19E+13	3,55E+13	7,70E+12	1,24E+06	0,00E+00	0,00E+00
Am-241	4,05E+18	3,42E+18	7,29E+17	6,70E+14	1,75E+11	6,24E-21
Am-242	0,00E+00	7,97E+15	6,90E+13	5,43E-08	0,00E+00	0,00E+00
Am-242m	1,34E+16	8,01E+15	6,93E+13	5,45E-08	0,00E+00	0,00E+00
Am-243	3,59E+16	3,55E+16	3,25E+16	1,28E+16	9,50E+11	1,35E+09
At-217	0,00E+00	1,85E+10	2,57E+11	1,89E+13	3,87E+14	8,53E+14
At-218	0,00E+00	8,70E+06	6,88E+08	2,83E+10	2,03E+11	5,57E+10
Ba-137m	0,00E+00	1,64E+18	3,51E+08	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Be-10	1,47E+11	1,47E+11	1,47E+11	1,46E+11	1,40E+11	9,29E+10
Bi-209	0,00E+00	4,66E-08	4,11E-06	2,69E-03	7,80E-01	2,71E+01
Bi-210	0,00E+00	2,81E+10	3,25E+12	1,41E+14	1,02E+15	2,79E+14
Bi-211	0,00E+00	3,94E+10	1,53E+11	1,39E+12	1,07E+13	1,30E+13
Bi-212	0,00E+00	8,33E+12	7,37E+08	3,31E+08	1,63E+09	1,31E+10
Bi-213	0,00E+00	1,85E+10	2,57E+11	1,89E+13	3,87E+14	8,53E+14
Bi-214	0,00E+00	4,35E+10	3,44E+12	1,42E+14	1,02E+15	2,79E+14
C-14	3,98E+14	3,93E+14	3,49E+14	1,05E+14	4,79E+08	6,06E-39
Ca-41	6,33E+11	6,33E+11	6,28E+11	5,88E+11	2,96E+11	7,08E+08
Cl-36	1,14E+13	1,14E+13	1,14E+13	1,11E+13	8,81E+12	1,14E+12
Cm-242	0,00E+00	6,61E+15	5,72E+13	4,50E-08	0,00E+00	0,00E+00
Cm-245	1,55E+15	1,54E+15	1,42E+15	6,34E+14	1,66E+11	5,91E-21
Cm-246	2,55E+14	2,51E+14	2,18E+14	5,17E+13	2,08E+07	1,44E-49
Cm-247	1,41E+09	1,41E+09	1,41E+09	1,41E+09	1,40E+09	1,35E+09
Cm-248	3,63E+09	3,63E+09	3,62E+09	3,55E+09	2,90E+09	4,95E+08
Cs-135	3,17E+14	3,17E+14	3,17E+14	3,16E+14	3,06E+14	2,35E+14
Cs-137	1,93E+19	1,73E+18	3,70E+08	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Fr-221	0,00E+00	1,85E+10	2,57E+11	1,89E+13	3,87E+14	8,53E+14
Fr-223	0,00E+00	5,43E+08	2,12E+09	1,92E+10	1,47E+11	1,79E+11
Hg-206	0,00E+00	5,34E+02	6,17E+04	2,68E+06	1,93E+07	5,29E+06
Ho-116m	8,60E+11	8,10E+11	4,63E+11	1,54E+09	6,56E-17	0,00E+00
I-129	1,92E+13	1,92E+13	1,92E+13	1,92E+13	1,91E+13	1,84E+13
Mo-93	4,92E+13	4,83E+13	4,09E+13	7,37E+12	1,81E+05	0,00E+00
Nb-93m	0,00E+00	1,21E+15	1,22E+15	1,18E+15	1,12E+15	7,50E+14
Nb-94	3,54E+15	3,53E+15	3,41E+15	2,44E+15	7,71E+13	5,23E+00
Ni-59	2,23E+15	2,23E+15	2,21E+15	2,02E+15	8,02E+14	2,44E+11
Ni-63	2,16E+17	1,05E+17	1,41E+14	5,56E-16	0,00E+00	0,00E+00

Nuklid	0	500 a	1.000 a	10.000 a	100.000 a	1.000.000 a
Np-237	2,85E+14	4,11E+14	9,55E+14	1,10E+15	1,07E+15	8,02E+14
Np-238	0,00E+00	3,68E+13	3,18E+11	2,50E-10	0,00E+00	0,00E+00
Np-239	0,00E+00	3,55E+16	3,25E+16	1,28E+16	9,50E+11	1,35E+09
Np-240	0,00E+00	3,82E+08	3,82E+08	3,82E+08	3,82E+08	3,79E+08
Np-240m	0,00E+00	3,19E+11	3,19E+11	3,19E+11	3,18E+11	3,16E+11
Pa-231	3,09E+10	4,32E+10	1,57E+11	1,39E+12	1,07E+13	1,30E+13
Pa-233	0,00E+00	4,11E+14	9,55E+14	1,10E+15	1,07E+15	8,02E+14
Pa-234	0,00E+00	2,03E+11	2,03E+11	2,03E+11	2,03E+11	2,03E+11
Pa-234m	0,00E+00	1,27E+14	1,27E+14	1,27E+14	1,27E+14	1,27E+14
Pb-209	0,00E+00	1,85E+10	2,57E+11	1,89E+13	3,87E+14	8,53E+14
Pb-210	0,00E+00	2,81E+10	3,25E+12	1,41E+14	1,02E+15	2,79E+14
Pb-211	0,00E+00	3,94E+10	1,53E+11	1,39E+12	1,07E+13	1,30E+13
Pb-212	0,00E+00	8,33E+12	7,37E+08	3,31E+08	1,63E+09	1,31E+10
Pb-214	0,00E+00	4,35E+10	3,44E+12	1,42E+14	1,02E+15	2,79E+14
Pd-107	9,25E+13	9,25E+13	9,25E+13	9,24E+13	9,14E+13	8,31E+13
Po-210	0,00E+00	2,78E+10	3,25E+12	1,41E+14	1,02E+15	2,79E+14
Po-211	0,00E+00	1,09E+08	4,24E+08	3,83E+09	2,94E+10	3,58E+10
Po-212	0,00E+00	5,33E+12	4,72E+08	2,12E+08	1,05E+09	8,37E+09
Po-213	0,00E+00	1,81E+10	2,51E+11	1,85E+13	3,79E+14	8,35E+14
Po-214	0,00E+00	4,35E+10	3,44E+12	1,42E+14	1,02E+15	2,79E+14
Po-215	0,00E+00	3,94E+10	1,53E+11	1,39E+12	1,07E+13	1,30E+13
Po-216	0,00E+00	8,33E+12	7,37E+08	3,31E+08	1,63E+09	1,31E+10
Po-218	0,00E+00	4,35E+10	3,44E+12	1,42E+14	1,02E+15	2,79E+14
Pu-238	2,76E+18	1,21E+18	7,28E+14	1,20E-07	0,00E+00	0,00E+00
Pu-239	2,06E+17	2,05E+17	2,01E+17	1,56E+17	8,84E+15	1,35E+09
Pu-240	4,54E+17	4,49E+17	4,05E+17	1,43E+17	3,59E+12	3,16E+11
Pu-241	0,00E+00	1,53E+15	1,42E+15	6,35E+14	1,67E+11	5,92E-21
Pu-242	2,76E+15	2,76E+15	2,76E+15	2,71E+15	2,25E+15	4,32E+14
Pu-243	0,00E+00	1,41E+09	1,41E+09	1,41E+09	1,40E+09	1,35E+09
Pu-244	3,19E+11	3,19E+11	3,19E+11	3,19E+11	3,19E+11	3,16E+11
Ra-223	0,00E+00	3,94E+10	1,53E+11	1,39E+12	1,07E+13	1,30E+13
Ra-224	0,00E+00	8,33E+12	7,37E+08	3,31E+08	1,63E+09	1,31E+10
Ra-225	0,00E+00	1,85E+10	2,57E+11	1,89E+13	3,87E+14	8,53E+14
Ra-226	4,03E+09	4,35E+10	3,44E+12	1,42E+14	1,02E+15	2,79E+14
Ra-228	0,00E+00	2,30E+08	2,37E+08	3,32E+08	1,63E+09	1,31E+10
Rb-87	1,33E+10	1,33E+10	1,33E+10	1,33E+10	1,33E+10	1,33E+10
Rn-217	0,00E+00	1,29E+06	1,80E+07	1,32E+09	2,71E+10	5,97E+10
Rn-218	0,00E+00	8,70E+03	6,88E+05	2,83E+07	2,03E+08	5,57E+07
Rn-219	0,00E+00	3,94E+10	1,53E+11	1,39E+12	1,07E+13	1,30E+13
Rn-220	0,00E+00	8,33E+12	7,37E+08	3,31E+08	1,63E+09	1,31E+10

Nuklid	0	500 a	1.000 a	10.000 a	100.000 a	1.000.000 a
Rn-222	0,00E+00	4,35E+10	3,44E+12	1,42E+14	1,02E+15	2,79E+14
Sb-126	0,00E+00	5,42E+13	5,40E+13	5,24E+13	3,86E+13	2,66E+12
Sb-126m	0,00E+00	3,87E+14	3,86E+14	3,74E+14	2,76E+14	1,90E+13
Se-79	2,95E+13	2,95E+13	2,94E+13	2,88E+13	2,27E+13	2,81E+12
Sm-147	3,06E+09	3,06E+09	3,06E+09	3,06E+09	3,06E+09	3,06E+09
Sm-151	1,60E+17	7,15E+16	4,19E+13	3,62E-20	0,00E+00	0,00E+00
Sn-126	3,87E+14	3,87E+14	3,86E+14	3,74E+14	2,76E+14	1,90E+13
Sr-90	1,15E+19	9,25E+17	7,30E+07	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Tc-99	9,04E+15	9,04E+15	9,01E+15	8,72E+15	6,26E+15	3,39E+14
Th-227	0,00E+00	3,88E+10	1,51E+11	1,37E+12	1,05E+13	1,28E+13
Th-228	0,00E+00	8,33E+12	7,36E+08	3,31E+08	1,63E+09	1,31E+10
Th-229	6,21E+09	1,85E+10	2,57E+11	1,89E+13	3,87E+14	8,53E+14
Th-230	3,52E+11	1,52E+12	1,77E+13	1,77E+14	1,03E+15	2,78E+14
Th-231	0,00E+00	5,58E+12	5,77E+12	7,51E+12	1,27E+13	1,30E+13
Th-232	2,29E+08	2,30E+08	2,37E+08	3,32E+08	1,63E+09	1,31E+10
Th-234	0,00E+00	1,27E+14	1,27E+14	1,27E+14	1,27E+14	1,27E+14
Tl-206	0,00E+00	3,76E+04	4,35E+06	1,89E+08	1,36E+09	3,73E+08
Tl-207	0,00E+00	3,92E+10	1,53E+11	1,39E+12	1,06E+13	1,29E+13
Tl-208	0,00E+00	2,99E+12	2,65E+08	1,19E+08	5,87E+08	4,70E+09
Tl-209	0,00E+00	4,06E+08	5,65E+09	4,15E+11	8,52E+12	1,88E+13
Tl-210	0,00E+00	9,13E+06	7,23E+08	2,98E+10	2,14E+11	5,85E+10
U-232	2,32E+13	8,09E+12	4,86E+08	3,15E-35	0,00E+00	0,00E+00
U-233	1,18E+12	1,34E+12	4,49E+12	5,03E+13	4,19E+14	8,51E+14
U-234	8,94E+14	1,45E+15	1,88E+15	1,83E+15	1,41E+15	2,32E+14
U-235	5,56E+12	5,58E+12	5,77E+12	7,51E+12	1,27E+13	1,30E+13
U-236	1,38E+14	1,39E+14	1,52E+14	2,25E+14	2,64E+14	2,58E+14
U-237	0,00E+00	3,75E+10	3,49E+10	1,56E+10	4,08E+06	1,45E-25
U-238	1,27E+14	1,27E+14	1,27E+14	1,27E+14	1,27E+14	1,27E+14
U-240	0,00E+00	3,19E+11	3,19E+11	3,19E+11	3,18E+11	3,16E+11
Y-90	0,00E+00	9,25E+17	7,30E+07	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Zr-93	1,21E+15	1,21E+15	1,21E+15	1,20E+15	1,15E+15	7,69E+14
Gesamt	3,87E+19	1,08E+19	1,43E+18	3,53E+17	3,96E+16	1,58E+16

A. Tab. 3 Aktivität der Nuklide zum jeweiligen Zeitpunkt für das AVR-Inventar (in Bq)

Nuklid	0	500 a	1.000 a	10.000 a	100.000 a	1.000.000 a
Ac-225	0,00E+00	1,63E+11	9,23E+11	5,61E+12	5,77E+12	2,01E+11
Ac-227	6,16E+09	6,08E+09	6,05E+09	5,81E+09	5,02E+09	4,95E+09
Ac-228	0,00E+00	5,17E+09	5,17E+09	5,17E+09	5,17E+09	5,17E+09
Am-241	1,07E+14	9,05E+13	1,92E+13	2,48E+08	6,43E+04	2,29E-27
Am-242	0,00E+00	8,45E+10	7,31E+08	5,75E-13	0,00E+00	0,00E+00
Am-242m	1,42E+11	8,49E+10	7,34E+08	5,78E-13	0,00E+00	0,00E+00
Am-243	5,30E+11	5,25E+11	4,79E+11	1,89E+11	1,40E+07	7,50E-30
At-217	0,00E+00	1,63E+11	9,23E+11	5,61E+12	5,77E+12	2,01E+11
At-218	0,00E+00	1,74E+04	5,96E+05	2,04E+07	1,43E+08	2,40E+07
Ba-137m	0,00E+00	3,96E+14	8,46E+04	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Bi-209	0,00E+00	4,55E-07	1,98E-05	1,34E-03	2,67E-02	7,62E-02
Bi-210	0,00E+00	6,14E+07	2,83E+09	1,02E+11	7,15E+11	1,20E+11
Bi-211	0,00E+00	6,08E+09	6,05E+09	5,81E+09	5,02E+09	4,95E+09
Bi-212	0,00E+00	1,64E+12	5,27E+09	5,17E+09	5,17E+09	5,17E+09
Bi-213	0,00E+00	1,63E+11	9,23E+11	5,61E+12	5,77E+12	2,01E+11
Bi-214	0,00E+00	8,71E+07	2,98E+09	1,02E+11	7,15E+11	1,20E+11
C-14	2,99E+12	2,95E+12	2,62E+12	7,89E+11	3,60E+06	4,55E-41
Cl-36	9,26E+10	9,26E+10	9,24E+10	9,03E+10	7,15E+10	9,26E+09
Cm-242	0,00E+00	7,01E+10	6,07E+08	4,77E-13	0,00E+00	0,00E+00
Cm-245	5,68E+08	5,63E+08	5,21E+08	2,32E+08	6,09E+04	2,17E-27
Cm-246	2,60E+08	2,56E+08	2,22E+08	5,27E+07	2,12E+01	1,47E-55
Cs-135	1,43E+11	1,43E+11	1,43E+11	1,43E+11	1,38E+11	1,06E+11
Cs-137	4,66E+15	4,18E+14	8,94E+04	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Fr-221	0,00E+00	1,63E+11	9,23E+11	5,61E+12	5,77E+12	2,01E+11
Fr-223	0,00E+00	8,39E+07	8,35E+07	8,02E+07	6,93E+07	6,83E+07
Hg-206	0,00E+00	1,17E+00	5,38E+01	1,93E+03	1,36E+04	2,28E+03
Ho-116m	3,62E+05	3,41E+05	1,95E+05	6,46E+02	2,76E-23	0,00E+00
I-129	8,01E+09	8,01E+09	8,01E+09	8,01E+09	7,97E+09	7,66E+09
Mo-93	8,45E+08	8,30E+08	7,02E+08	1,27E+08	3,10E+00	0,00E+00
Nb-93m	0,00E+00	7,16E+11	7,24E+11	7,20E+11	6,88E+11	4,60E+11
Nb-94	2,54E+07	2,53E+07	2,45E+07	1,75E+07	5,53E+05	3,75E-08
Ni-59	4,11E+09	4,11E+09	4,07E+09	3,72E+09	1,48E+09	4,49E+05
Ni-63	9,48E+08	4,63E+08	6,18E+05	2,44E-24	0,00E+00	0,00E+00
Np-237	8,32E+10	8,65E+10	1,01E+11	1,04E+11	1,01E+11	7,58E+10
Np-238	0,00E+00	3,90E+08	3,37E+06	2,65E-15	0,00E+00	0,00E+00
Np-239	0,00E+00	5,25E+11	4,79E+11	1,89E+11	1,40E+07	7,50E-30
Np-240	0,00E+00	2,82E+03	2,82E+03	2,82E+03	2,81E+03	2,79E+03
Np-240m	0,00E+00	2,35E+06	2,35E+06	2,35E+06	2,34E+06	2,33E+06
Pa-231	6,08E+09	6,08E+09	6,05E+09	5,81E+09	5,02E+09	4,95E+09

Nuklid	0	500 a	1.000 a	10.000 a	100.000 a	1.000.000 a
Pa-233	0,00E+00	8,65E+10	1,01E+11	1,04E+11	1,01E+11	7,58E+10
Pa-234	0,00E+00	8,26E+06	8,26E+06	8,26E+06	8,26E+06	8,26E+06
Pa-234m	0,00E+00	5,16E+09	5,16E+09	5,16E+09	5,16E+09	5,17E+09
Pb-209	0,00E+00	1,63E+11	9,23E+11	5,61E+12	5,77E+12	2,01E+11
Pb-210	0,00E+00	6,14E+07	2,83E+09	1,02E+11	7,15E+11	1,20E+11
Pb-211	0,00E+00	6,08E+09	6,05E+09	5,81E+09	5,02E+09	4,95E+09
Pb-212	0,00E+00	1,64E+12	5,27E+09	5,17E+09	5,17E+09	5,17E+09
Pb-214	0,00E+00	8,70E+07	2,98E+09	1,02E+11	7,15E+11	1,20E+11
Pd-107	6,20E+09	6,20E+09	6,20E+09	6,19E+09	6,13E+09	5,57E+09
Po-210	0,00E+00	6,10E+07	2,83E+09	1,02E+11	7,15E+11	1,20E+11
Po-211	0,00E+00	1,68E+07	1,67E+07	1,60E+07	1,39E+07	1,37E+07
Po-212	0,00E+00	1,05E+12	3,37E+09	3,31E+09	3,31E+09	3,31E+09
Po-213	0,00E+00	1,59E+11	9,03E+11	5,49E+12	5,64E+12	1,96E+11
Po-214	0,00E+00	8,70E+07	2,98E+09	1,02E+11	7,15E+11	1,20E+11
Po-215	0,00E+00	6,08E+09	6,05E+09	5,81E+09	5,02E+09	4,95E+09
Po-216	0,00E+00	1,64E+12	5,27E+09	5,17E+09	5,17E+09	5,17E+09
Po-218	0,00E+00	8,71E+07	2,98E+09	1,02E+11	7,15E+11	1,20E+11
Pu-238	3,40E+14	1,49E+14	7,33E+10	1,27E-12	0,00E+00	0,00E+00
Pu-239	6,31E+12	6,29E+12	6,13E+12	4,69E+12	2,61E+11	2,13E+00
Pu-240	1,29E+13	1,28E+13	1,15E+13	4,05E+12	9,52E+07	2,33E+06
Pu-241	0,00E+00	5,61E+08	5,21E+08	2,33E+08	6,10E+04	2,17E-27
Pu-242	8,60E+10	8,60E+10	8,58E+10	8,43E+10	6,99E+10	1,34E+10
Pu-244	2,35E+06	2,35E+06	2,35E+06	2,35E+06	2,35E+06	2,33E+06
Ra-223	0,00E+00	6,08E+09	6,05E+09	5,81E+09	5,02E+09	4,95E+09
Ra-224	0,00E+00	1,64E+12	5,27E+09	5,17E+09	5,17E+09	5,17E+09
Ra-225	0,00E+00	1,63E+11	9,23E+11	5,61E+12	5,77E+12	2,01E+11
Ra-226	1,39E+07	8,71E+07	2,98E+09	1,02E+11	7,15E+11	1,20E+11
Ra-228	0,00E+00	5,17E+09	5,17E+09	5,17E+09	5,17E+09	5,17E+09
Rb-87	8,38E+06	8,38E+06	8,38E+06	8,38E+06	8,38E+06	8,38E+06
Rn-217	0,00E+00	1,14E+07	6,46E+07	3,93E+08	4,04E+08	1,41E+07
Rn-218	0,00E+00	1,74E+01	5,96E+02	2,04E+04	1,43E+05	2,40E+04
Rn-219	0,00E+00	6,08E+09	6,05E+09	5,81E+09	5,02E+09	4,95E+09
Rn-220	0,00E+00	1,64E+12	5,27E+09	5,17E+09	5,17E+09	5,17E+09
Rn-222	0,00E+00	8,71E+07	2,98E+09	1,02E+11	7,15E+11	1,20E+11
Sb-126	0,00E+00	1,96E+10	1,95E+10	1,90E+10	1,40E+10	9,62E+08
Sb-126m	0,00E+00	1,40E+11	1,40E+11	1,35E+11	9,99E+10	6,87E+09
Se-79	2,75E+10	2,75E+10	2,74E+10	2,68E+10	2,11E+10	2,62E+09
Sm-151	2,66E+13	1,19E+13	6,97E+09	6,02E-24	0,00E+00	0,00E+00
Sn-126	1,40E+11	1,40E+11	1,40E+11	1,35E+11	9,99E+10	6,87E+09
Sr-90	4,08E+15	3,28E+14	2,59E+04	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00

Nuklid	0	500 a	1.000 a	10.000 a	100.000 a	1.000.000 a
Tc-99	4,08E+12	4,08E+12	4,07E+12	3,94E+12	2,82E+12	1,53E+11
Th-227	0,00E+00	6,00E+09	5,97E+09	5,73E+09	4,95E+09	4,88E+09
Th-228	0,00E+00	1,64E+12	5,27E+09	5,17E+09	5,17E+09	5,17E+09
Th-229	7,58E+10	1,63E+11	9,24E+11	5,62E+12	5,77E+12	2,01E+11
Th-230	1,06E+09	2,27E+09	1,40E+10	1,27E+11	7,21E+11	1,20E+11
Th-231	0,00E+00	4,73E+09	4,74E+09	4,79E+09	4,94E+09	4,95E+09
Th-232	5,17E+09	5,17E+09	5,17E+09	5,17E+09	5,17E+09	5,17E+09
Th-234	0,00E+00	5,16E+09	5,16E+09	5,16E+09	5,16E+09	5,17E+09
Tl-206	0,00E+00	8,22E+01	3,79E+03	1,36E+05	9,58E+05	1,61E+05
Tl-207	0,00E+00	6,06E+09	6,03E+09	5,79E+09	5,01E+09	4,93E+09
Tl-208	0,00E+00	5,89E+11	1,89E+09	1,86E+09	1,86E+09	1,86E+09
Tl-209	0,00E+00	3,58E+09	2,03E+10	1,24E+11	1,27E+11	4,42E+09
Tl-210	0,00E+00	1,83E+04	6,26E+05	2,14E+07	1,50E+08	2,53E+07
U-232	4,55E+12	1,59E+12	9,53E+07	6,18E-36	0,00E+00	0,00E+00
U-233	8,91E+12	8,91E+12	8,87E+12	8,50E+12	5,51E+12	1,95E+11
U-234	1,22E+12	1,29E+12	1,34E+12	1,30E+12	9,79E+11	8,45E+10
U-235	4,73E+09	4,73E+09	4,74E+09	4,79E+09	4,94E+09	4,95E+09
U-236	9,38E+10	9,38E+10	9,42E+10	9,62E+10	9,71E+10	9,46E+10
U-237	0,00E+00	1,37E+04	1,28E+04	5,70E+03	1,50E+00	5,31E-32
U-238	5,16E+09	5,16E+09	5,16E+09	5,16E+09	5,16E+09	5,17E+09
U-240	0,00E+00	2,35E+06	2,35E+06	2,35E+06	2,34E+06	2,33E+06
Y-90	0,00E+00	3,28E+14	2,59E+04	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Zr-93	7,42E+11	7,42E+11	7,42E+11	7,38E+11	7,05E+11	4,72E+11
Gesamt	9,26E+15	1,78E+15	6,48E+13	7,22E+13	6,52E+13	4,70E+12

A. Tab. 4 Aktivität der Nuklide zum jeweiligen Zeitpunkt für das THTR-Inventar (in Bq)

Nuklid	0	500 a	1.000 a	10.000 a	100.000 a	1.000.000 a
Ac-225	0,00E+00	9,30E+12	2,94E+13	4,01E+13	1,83E+13	7,12E+11
Ac-227	7,43E+10	7,73E+10	6,81E+10	4,12E+10	2,06E+10	2,01E+10
Ac-228	0,00E+00	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10
Ag-108	0,00E+00	5,25E+07	1,13E+02	2,20E-25	0,00E+00	0,00E+00
Ag-108m	2,03E+10	6,04E+08	1,30E+03	2,53E-24	0,00E+00	0,00E+00
Am-241	3,33E+13	9,48E+11	9,21E+07	3,80E+06	1,24E+00	8,09E-28
Am-242	0,00E+00	3,66E+05	9,07E-13	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Am-242m	2,03E+10	3,68E+05	9,11E-13	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Am-243	7,96E+10	6,46E+10	2,97E+10	7,69E+08	6,22E+01	3,55E+01
At-217	0,00E+00	9,30E+12	2,94E+13	4,01E+13	1,83E+13	7,12E+11
At-218	0,00E+00	7,16E+06	5,59E+07	2,46E+08	4,33E+08	6,44E+07
Ba-137m	0,00E+00	3,88E-07	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Be-10	2,11E+09	2,11E+09	2,10E+09	2,06E+09	1,90E+09	1,33E+09
Bi-209	0,00E+00	4,04E-04	6,65E-03	6,22E-02	2,49E-01	3,98E-01
Bi-210	0,00E+00	3,51E+10	2,79E+11	1,23E+12	2,17E+12	3,22E+11
Bi-211	0,00E+00	7,73E+10	6,81E+10	4,12E+10	2,06E+10	2,01E+10
Bi-212	0,00E+00	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10
Bi-213	0,00E+00	9,29E+12	2,94E+13	4,00E+13	1,83E+13	7,12E+11
Bi-214	0,00E+00	3,58E+10	2,80E+11	1,23E+12	2,17E+12	3,22E+11
C-14	1,60E+12	1,22E+12	4,48E+11	3,97E+09	8,44E-01	2,44E-41
Ca-41	4,49E+08	4,42E+08	4,18E+08	3,21E+08	9,25E+07	5,02E+05
Cl-36	4,11E+10	4,09E+10	4,01E+10	3,67E+10	2,41E+10	4,11E+09
Cm-242	0,00E+00	3,04E+05	7,53E-13	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Cm-245	2,01E+08	1,68E+08	8,56E+07	3,60E+06	1,17E+00	7,66E-28
Cm-246	2,81E+07	2,03E+07	6,12E+06	2,13E+04	5,58E-08	1,59E-56
Cm-247	3,71E+01	3,71E+01	3,71E+01	3,70E+01	3,67E+01	3,55E+01
Cm-248	4,36E+01	4,34E+01	4,27E+01	3,95E+01	2,74E+01	5,95E+00
Cs-135	1,34E+11	1,34E+11	1,34E+11	1,32E+11	1,25E+11	9,91E+10
Cs-137	6,94E+15	4,10E-07	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Fr-221	0,00E+00	9,30E+12	2,94E+13	4,01E+13	1,83E+13	7,12E+11
Fr-223	0,00E+00	1,07E+09	9,40E+08	5,69E+08	2,84E+08	2,78E+08
Hg-206	0,00E+00	6,67E+02	5,30E+03	2,34E+04	4,12E+04	6,12E+03
Ho-116m	2,38E+09	6,60E+08	5,63E+06	1,00E-03	1,14E-49	0,00E+00
I-129	1,14E+10	1,14E+10	1,14E+10	1,14E+10	1,13E+10	1,09E+10
Mo-93	9,10E+08	6,19E+08	1,48E+08	1,76E+05	2,91E-09	0,00E+00
Nb-93m	0,00E+00	8,55E+11	8,51E+11	8,36E+11	7,70E+11	5,44E+11
Nb-94	2,12E+10	1,97E+10	1,48E+10	3,93E+09	7,57E+06	3,13E-05
Ni-59	1,54E+09	1,51E+09	1,40E+09	9,82E+08	1,85E+08	1,68E+05
Ni-63	1,20E+11	2,97E+04	8,76E-21	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00

Nuklid	0	500 a	1.000 a	10.000 a	100.000 a	1.000.000 a
Np-237	8,02E+10	8,67E+10	8,66E+10	8,55E+10	8,06E+10	6,29E+10
Np-238	0,00E+00	1,69E+03	4,18E-15	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Np-239	0,00E+00	6,46E+10	2,97E+10	7,69E+08	6,22E+01	3,55E+01
Np-240	0,00E+00	2,52E+02	2,52E+02	2,52E+02	2,51E+02	2,50E+02
Np-240m	0,00E+00	2,10E+05	2,10E+05	2,10E+05	2,09E+05	2,08E+05
Pa-231	8,00E+10	7,73E+10	6,81E+10	4,12E+10	2,06E+10	2,01E+10
Pa-233	0,00E+00	8,67E+10	8,66E+10	8,55E+10	8,06E+10	6,29E+10
Pa-234	0,00E+00	8,38E+05	8,38E+05	8,39E+05	8,39E+05	8,40E+05
Pa-234m	0,00E+00	5,24E+08	5,24E+08	5,24E+08	5,25E+08	5,25E+08
Pb-209	0,00E+00	9,30E+12	2,94E+13	4,01E+13	1,83E+13	7,12E+11
Pb-210	0,00E+00	3,51E+10	2,79E+11	1,23E+12	2,17E+12	3,22E+11
Pb-211	0,00E+00	7,73E+10	6,81E+10	4,12E+10	2,06E+10	2,01E+10
Pb-212	0,00E+00	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10
Pb-214	0,00E+00	3,58E+10	2,80E+11	1,23E+12	2,17E+12	3,22E+11
Pd-107	4,79E+09	4,79E+09	4,78E+09	4,76E+09	4,67E+09	4,31E+09
Po-210	0,00E+00	3,51E+10	2,79E+11	1,23E+12	2,17E+12	3,22E+11
Po-211	0,00E+00	2,13E+08	1,88E+08	1,14E+08	5,68E+07	5,56E+07
Po-212	0,00E+00	1,64E+10	1,64E+10	1,64E+10	1,64E+10	1,64E+10
Po-213	0,00E+00	9,09E+12	2,88E+13	3,92E+13	1,79E+13	6,97E+11
Po-214	0,00E+00	3,58E+10	2,80E+11	1,23E+12	2,17E+12	3,22E+11
Po-215	0,00E+00	7,73E+10	6,81E+10	4,12E+10	2,06E+10	2,01E+10
Po-216	0,00E+00	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10
Po-218	0,00E+00	3,58E+10	2,80E+11	1,23E+12	2,17E+12	3,22E+11
Pu-238	2,68E+14	7,18E+06	2,00E-12	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Pu-239	1,66E+12	1,56E+12	1,24E+12	4,10E+11	2,12E+09	3,61E+01
Pu-240	4,52E+12	3,57E+12	1,50E+12	2,46E+10	2,09E+05	2,08E+05
Pu-241	0,00E+00	1,68E+08	8,57E+07	3,60E+06	1,18E+00	7,68E-28
Pu-242	1,88E+10	1,87E+10	1,84E+10	1,72E+10	1,22E+10	2,94E+09
Pu-243	0,00E+00	3,71E+01	3,71E+01	3,70E+01	3,67E+01	3,55E+01
Pu-244	2,10E+05	2,10E+05	2,10E+05	2,10E+05	2,10E+05	2,08E+05
Ra-223	0,00E+00	7,73E+10	6,81E+10	4,12E+10	2,06E+10	2,01E+10
Ra-224	0,00E+00	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10
Ra-225	0,00E+00	9,30E+12	2,94E+13	4,01E+13	1,83E+13	7,12E+11
Ra-226	4,42E+08	3,58E+10	2,80E+11	1,23E+12	2,17E+12	3,22E+11
Ra-228	0,00E+00	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10
Rb-87	1,23E+07	1,23E+07	1,23E+07	1,23E+07	1,23E+07	1,23E+07
Rn-217	0,00E+00	6,51E+08	2,06E+09	2,80E+09	1,28E+09	4,99E+07
Rn-218	0,00E+00	7,16E+03	5,59E+04	2,46E+05	4,33E+05	6,44E+04
Rn-219	0,00E+00	7,73E+10	6,81E+10	4,12E+10	2,06E+10	2,01E+10
Rn-220	0,00E+00	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10

Nuklid	0	500 a	1.000 a	10.000 a	100.000 a	1.000.000 a
Rn-222	0,00E+00	3,58E+10	2,80E+11	1,23E+12	2,17E+12	3,22E+11
Sb-126	0,00E+00	2,46E+10	2,40E+10	2,14E+10	1,23E+10	1,22E+09
Sb-126m	0,00E+00	1,76E+11	1,72E+11	1,53E+11	8,78E+10	8,69E+09
Se-79	1,99E+11	1,98E+11	1,94E+11	1,77E+11	1,15E+11	1,90E+10
Sm-147	2,87E+06	2,87E+06	2,87E+06	2,87E+06	2,87E+06	2,87E+06
Sm-151	6,40E+13	2,38E+06	6,23E-22	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Sn-126	1,77E+11	1,76E+11	1,72E+11	1,53E+11	8,78E+10	8,69E+09
Sr-90	6,46E+15	3,85E-08	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Tc-99	5,42E+12	5,38E+12	5,24E+12	4,61E+12	2,53E+12	2,03E+11
Th-227	0,00E+00	7,62E+10	6,72E+10	4,07E+10	2,03E+10	1,99E+10
Th-228	0,00E+00	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10
Th-229	3,42E+11	9,30E+12	2,94E+13	4,01E+13	1,83E+13	7,12E+11
Th-230	1,42E+10	8,91E+10	3,51E+11	1,27E+12	2,16E+12	3,20E+11
Th-231	0,00E+00	2,01E+10	2,01E+10	2,01E+10	2,02E+10	2,01E+10
Th-232	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10	2,56E+10
Th-234	0,00E+00	5,24E+08	5,24E+08	5,24E+08	5,25E+08	5,25E+08
Tl-206	0,00E+00	4,70E+04	3,73E+05	1,65E+06	2,90E+06	4,31E+05
Tl-207	0,00E+00	7,71E+10	6,79E+10	4,11E+10	2,05E+10	2,01E+10
Tl-208	0,00E+00	9,20E+09	9,20E+09	9,20E+09	9,20E+09	9,20E+09
Tl-209	0,00E+00	2,04E+11	6,47E+11	8,81E+11	4,03E+11	1,57E+10
Tl-210	0,00E+00	7,52E+06	5,87E+07	2,58E+08	4,55E+08	6,77E+07
U-232	2,36E+13	4,66E+03	4,36E-33	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
U-233	4,79E+13	4,74E+13	4,58E+13	3,87E+13	1,75E+13	6,82E+11
U-234	3,64E+12	3,71E+12	3,63E+12	3,25E+12	1,94E+12	2,22E+11
U-235	2,01E+10	2,01E+10	2,01E+10	2,01E+10	2,02E+10	2,01E+10
U-236	1,50E+11	1,50E+11	1,51E+11	1,51E+11	1,50E+11	1,47E+11
U-237	0,00E+00	4,12E+03	2,10E+03	8,83E+01	2,88E-05	1,88E-32
U-238	5,24E+08	5,24E+08	5,24E+08	5,24E+08	5,25E+08	5,25E+08
U-240	0,00E+00	2,10E+05	2,10E+05	2,10E+05	2,09E+05	2,08E+05
Y-90	0,00E+00	3,85E-08	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Zr-93	8,77E+11	8,76E+11	8,73E+11	8,58E+11	7,89E+11	5,57E+11
Gesamt	1,39E+16	1,43E+14	3,00E+14	3,83E+14	1,93E+14	1,20E+13

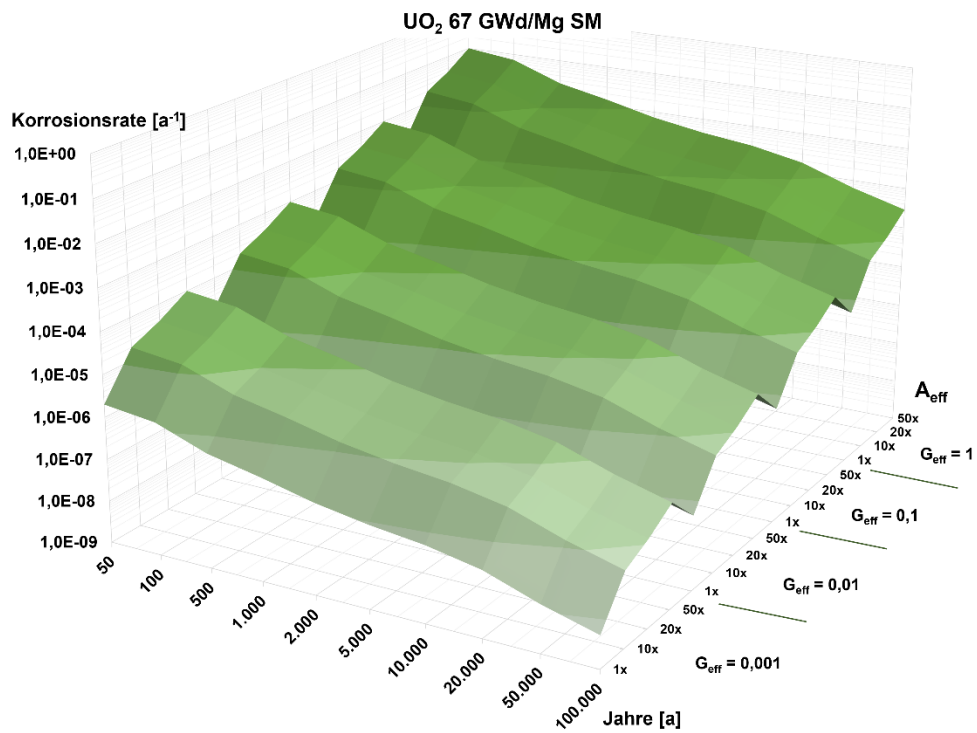
A. Tab. 5 Aktivität der Nuklide zum jeweiligen Zeitpunkt für das FR-BE-Inventar (in Bq)

Nuklid	0	500 a	1.000 a	10.000 a	100.000 a	1.000.000 a
Ac-225	0,00E+00	1,35E+07	1,00E+09	1,20E+11	2,54E+12	2,54E+12
Ac-227	1,38E+08	2,80E+08	1,42E+09	1,34E+10	9,60E+10	9,60E+10
Ac-228	0,00E+00	7,99E+03	6,28E+04	7,82E+05	1,03E+07	1,03E+07
Am-241	0,00E+00	1,01E+07	2,19E+06	3,52E-01	0,00E+00	0,00E+00
Am-242	1,37E+08	1,16E+08	2,52E+07	4,05E+00	0,00E+00	0,00E+00
Am-242m	2,52E+16	2,13E+16	4,53E+15	1,60E+12	4,20E+08	4,20E+08
Am-243	0,00E+00	2,01E+13	1,74E+11	1,37E-10	0,00E+00	0,00E+00
At-217	3,37E+13	2,01E+13	1,74E+11	1,37E-10	0,00E+00	0,00E+00
At-218	1,99E+14	1,97E+14	1,80E+14	7,10E+13	5,26E+09	5,26E+09
At-217	0,00E+00	1,35E+07	1,00E+09	1,20E+11	2,54E+12	2,54E+12
At-218	0,00E+00	5,86E+04	4,42E+06	1,80E+08	1,30E+09	1,30E+09
Ba-137m	0,00E+00	1,86E+16	3,98E+06	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Be-10	1,28E+09	1,28E+09	1,28E+09	1,27E+09	1,22E+09	1,22E+09
Bi-209	0,00E+00	2,78E-11	1,24E-08	1,68E-05	5,11E-03	5,11E-03
Bi-210	0,00E+00	1,89E+08	2,09E+10	8,96E+11	6,51E+12	6,51E+12
Bi-211	0,00E+00	2,80E+08	1,42E+09	1,34E+10	9,60E+10	9,60E+10
Bi-212	0,00E+00	5,71E+10	3,49E+06	7,82E+05	1,03E+07	1,03E+07
Bi-213	0,00E+00	1,35E+07	1,00E+09	1,20E+11	2,54E+12	2,54E+12
Bi-214	0,00E+00	2,93E+08	2,21E+10	8,99E+11	6,51E+12	6,51E+12
C-14	1,90E+12	1,88E+12	1,67E+12	5,01E+11	2,29E+06	2,29E+06
Cm-242	0,00E+00	1,66E+13	1,44E+11	1,13E-10	0,00E+00	0,00E+00
Cm-245	3,71E+12	3,68E+12	3,40E+12	1,52E+12	3,98E+08	3,98E+08
Cm-246	9,58E+11	9,44E+11	8,20E+11	1,94E+11	7,82E+04	7,82E+04
Cm-247	3,91E+06	3,91E+06	3,91E+06	3,91E+06	3,89E+06	3,89E+06
Cm-248	1,22E+07	1,22E+07	1,22E+07	1,19E+07	9,76E+06	9,76E+06
Cs-135	2,31E+12	2,31E+12	2,31E+12	2,30E+12	2,23E+12	2,23E+12
Cs-137	2,19E+17	1,96E+16	4,20E+06	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Fr-221	0,00E+00	1,35E+07	1,00E+09	1,20E+11	2,54E+12	2,54E+12
Fr-223	0,00E+00	3,87E+06	1,96E+07	1,85E+08	1,32E+09	1,32E+09
Hg-206	0,00E+00	3,59E+00	3,97E+02	1,70E+04	1,24E+05	1,24E+05
Ho-116m	8,11E+09	7,63E+09	4,37E+09	1,45E+07	6,19E-19	6,19E-19
I-129	1,68E+11	1,68E+11	1,68E+11	1,68E+11	1,67E+11	1,67E+11
Nb-93m	0,00E+00	9,93E+12	1,00E+13	9,99E+12	9,55E+12	9,55E+12
Nb-94	1,99E+09	1,98E+09	1,92E+09	1,37E+09	4,33E+07	4,33E+07
Ni-63	2,83E+04	1,38E+04	1,85E+01	7,28E-29	0,00E+00	0,00E+00
Np-237	2,18E+12	2,97E+12	6,35E+12	7,25E+12	7,02E+12	7,02E+12
Np-238	0,00E+00	9,25E+10	8,00E+08	6,30E-13	0,00E+00	0,00E+00
Np-239	0,00E+00	1,97E+14	1,80E+14	7,10E+13	5,26E+09	5,26E+09
Np-240	0,00E+00	6,28E+06	6,28E+06	6,28E+06	6,27E+06	6,27E+06

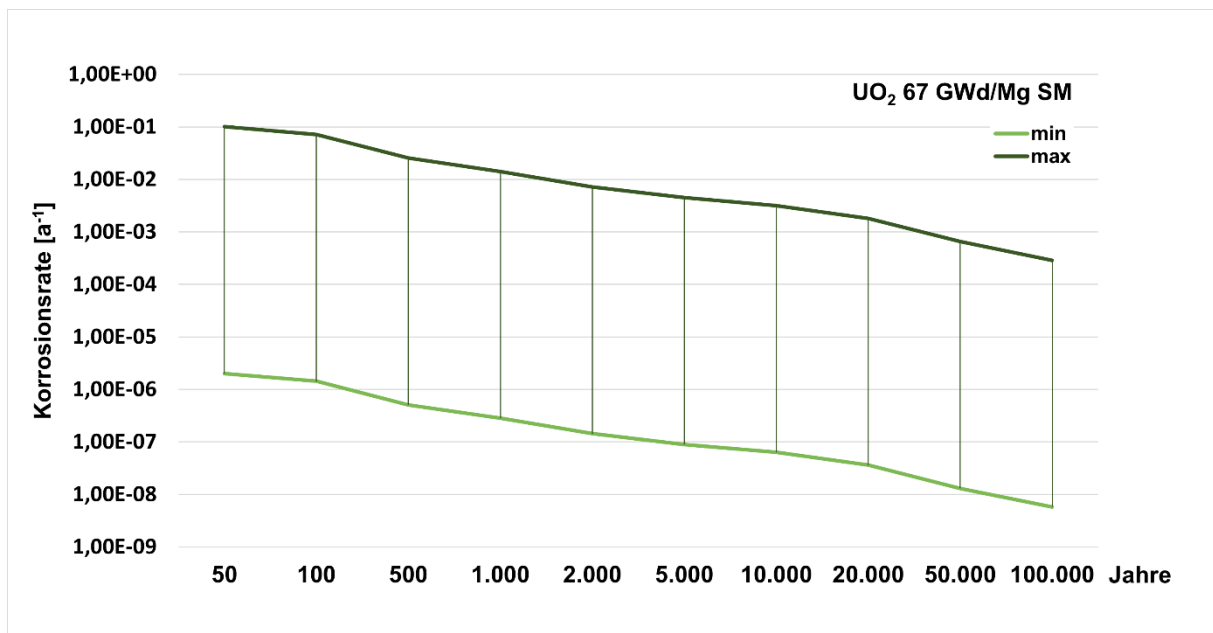
Nuklid	0	500 a	1.000 a	10.000 a	100.000 a	1.000.000 a
Np-240m	0,00E+00	5,23E+09	5,23E+09	5,23E+09	5,23E+09	5,23E+09
Pa-231	1,95E+08	3,18E+08	1,46E+09	1,35E+10	9,60E+10	9,60E+10
Pa-233	0,00E+00	2,96E+12	6,35E+12	7,25E+12	7,02E+12	7,02E+12
Pa-234	0,00E+00	2,24E+09	2,24E+09	2,24E+09	2,24E+09	2,24E+09
Pa-234m	0,00E+00	1,40E+12	1,40E+12	1,40E+12	1,40E+12	1,40E+12
Pb-209	0,00E+00	1,35E+07	1,00E+09	1,20E+11	2,54E+12	2,54E+12
Pb-210	0,00E+00	1,89E+08	2,09E+10	8,96E+11	6,51E+12	6,51E+12
Pb-211	0,00E+00	2,80E+08	1,42E+09	1,34E+10	9,60E+10	9,60E+10
Pb-212	0,00E+00	5,71E+10	3,49E+06	7,82E+05	1,03E+07	1,03E+07
Pb-214	0,00E+00	2,93E+08	2,21E+10	8,99E+11	6,51E+12	6,51E+12
Pd-107	8,07E+11	8,07E+11	8,07E+11	8,06E+11	7,97E+11	7,97E+11
Po-210	0,00E+00	1,87E+08	2,09E+10	8,96E+11	6,51E+12	6,51E+12
Po-211	0,00E+00	7,73E+05	3,92E+06	3,70E+07	2,65E+08	2,65E+08
Po-212	0,00E+00	3,66E+10	2,24E+06	5,01E+05	6,62E+06	6,62E+06
Po-213	0,00E+00	1,32E+07	9,81E+08	1,18E+11	2,48E+12	2,48E+12
Po-214	0,00E+00	2,93E+08	2,21E+10	8,99E+11	6,51E+12	6,51E+12
Po-215	0,00E+00	2,80E+08	1,42E+09	1,34E+10	9,60E+10	9,60E+10
Po-216	0,00E+00	5,71E+10	3,49E+06	7,82E+05	1,03E+07	1,03E+07
Po-218	0,00E+00	2,93E+08	2,21E+10	8,99E+11	6,51E+12	6,51E+12
Pu-238	1,58E+16	6,92E+15	3,70E+12	3,01E-10	0,00E+00	0,00E+00
Pu-239	1,70E+15	1,70E+15	1,65E+15	1,27E+15	7,13E+13	7,13E+13
Pu-240	3,01E+15	2,98E+15	2,69E+15	9,46E+14	2,69E+10	2,69E+10
Pu-241	0,00E+00	3,66E+12	3,41E+12	1,52E+12	3,99E+08	3,99E+08
Pu-242	1,70E+13	1,70E+13	1,70E+13	1,67E+13	1,38E+13	1,38E+13
Pu-244	0,00E+00	3,91E+06	3,91E+06	3,91E+06	3,89E+06	3,89E+06
Pu-244	5,24E+09	5,24E+09	5,24E+09	5,24E+09	5,24E+09	5,24E+09
Ra-223	0,00E+00	2,80E+08	1,42E+09	1,34E+10	9,60E+10	9,60E+10
Ra-224	0,00E+00	5,71E+10	3,49E+06	7,82E+05	1,03E+07	1,03E+07
Ra-225	0,00E+00	1,35E+07	1,00E+09	1,20E+11	2,54E+12	2,54E+12
Ra-226	2,48E+07	2,93E+08	2,21E+10	8,99E+11	6,51E+12	6,51E+12
Ra-228	0,00E+00	7,99E+03	6,28E+04	7,82E+05	1,03E+07	1,03E+07
Rb-87	1,13E+08	1,13E+08	1,13E+08	1,13E+08	1,13E+08	1,13E+08
Rn-217	0,00E+00	9,43E+02	7,02E+04	8,42E+06	1,78E+08	1,78E+08
Rn-218	0,00E+00	5,86E+01	4,42E+03	1,80E+05	1,30E+06	1,30E+06
Rn-219	0,00E+00	2,80E+08	1,42E+09	1,34E+10	9,60E+10	9,60E+10
Rn-220	0,00E+00	5,71E+10	3,49E+06	7,82E+05	1,03E+07	1,03E+07
Rn-222	0,00E+00	2,93E+08	2,21E+10	8,99E+11	6,51E+12	6,51E+12
Sb-126	0,00E+00	4,77E+11	4,76E+11	4,62E+11	3,41E+11	3,41E+11
Sb-126m	0,00E+00	3,41E+12	3,40E+12	3,30E+12	2,43E+12	2,43E+12
Se-79	1,11E+11	1,11E+11	1,11E+11	1,08E+11	8,53E+10	8,53E+10

Nuklid	0	500 a	1.000 a	10.000 a	100.000 a	1.000.000 a
Sm-147	2,57E+07	2,57E+07	2,57E+07	2,57E+07	2,57E+07	2,57E+07
Sm-151	1,31E+15	5,85E+14	3,43E+11	2,97E-22	0,00E+00	0,00E+00
Sn-126	3,41E+12	3,41E+12	3,40E+12	3,30E+12	2,43E+12	2,43E+12
Sr-90	1,35E+17	1,09E+16	8,57E+05	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Tc-99	8,10E+13	8,10E+13	8,07E+13	7,81E+13	5,61E+13	5,61E+13
Th-227	0,00E+00	2,76E+08	1,40E+09	1,32E+10	9,47E+10	9,47E+10
Th-228	0,00E+00	5,71E+10	3,49E+06	7,82E+05	1,03E+07	1,03E+07
Th-229	3,04E+06	1,35E+07	1,00E+09	1,20E+11	2,54E+12	2,54E+12
Th-230	2,40E+09	1,02E+10	1,13E+11	1,13E+12	6,56E+12	6,56E+12
Th-231	0,00E+00	5,58E+10	5,74E+10	7,16E+10	1,13E+11	1,13E+11
Th-232	2,74E+03	8,44E+03	6,33E+04	7,83E+05	1,03E+07	1,03E+07
Th-234	0,00E+00	1,40E+12	1,40E+12	1,40E+12	1,40E+12	1,40E+12
Tl-206	0,00E+00	2,53E+02	2,80E+04	1,20E+06	8,71E+06	8,71E+06
Tl-207	0,00E+00	2,79E+08	1,42E+09	1,34E+10	9,57E+10	9,57E+10
Tl-208	0,00E+00	2,05E+10	1,25E+06	2,81E+05	3,72E+06	3,72E+06
Tl-209	0,00E+00	2,96E+05	2,21E+07	2,65E+09	5,59E+10	5,59E+10
Tl-210	0,00E+00	6,15E+04	4,65E+06	1,89E+08	1,37E+09	1,37E+09
U-232	1,59E+11	5,55E+10	3,33E+06	2,16E-37	0,00E+00	0,00E+00
U-233	5,07E+08	1,68E+09	2,30E+10	3,25E+11	2,75E+12	2,75E+12
U-234	6,29E+12	9,47E+12	1,19E+13	1,16E+13	9,09E+12	9,09E+12
U-235	5,56E+10	5,58E+10	5,74E+10	7,16E+10	1,13E+11	1,13E+11
U-236	1,10E+12	1,11E+12	1,19E+12	1,68E+12	1,94E+12	1,94E+12
U-237	0,00E+00	8,97E+07	8,34E+07	3,73E+07	9,77E+03	9,77E+03
U-238	1,40E+12	1,40E+12	1,40E+12	1,40E+12	1,40E+12	1,40E+12
U-240	0,00E+00	5,23E+09	5,23E+09	5,23E+09	5,23E+09	5,23E+09
Y-90	0,00E+00	1,09E+16	8,57E+05	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Zr-93	1,03E+13	1,03E+13	1,03E+13	1,02E+13	9,79E+12	9,79E+12
Gesamt	4,01E+17	9,40E+16	9,41E+15	2,53E+15	2,88E+14	2,88E+14

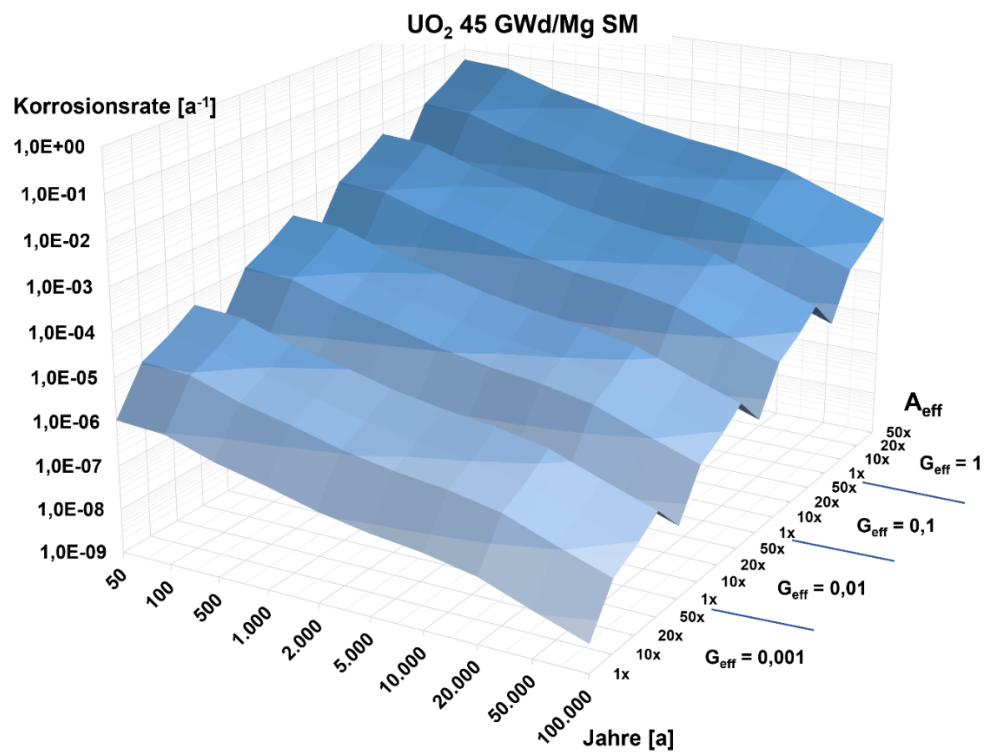
A.2 Korrosion Brennstoff



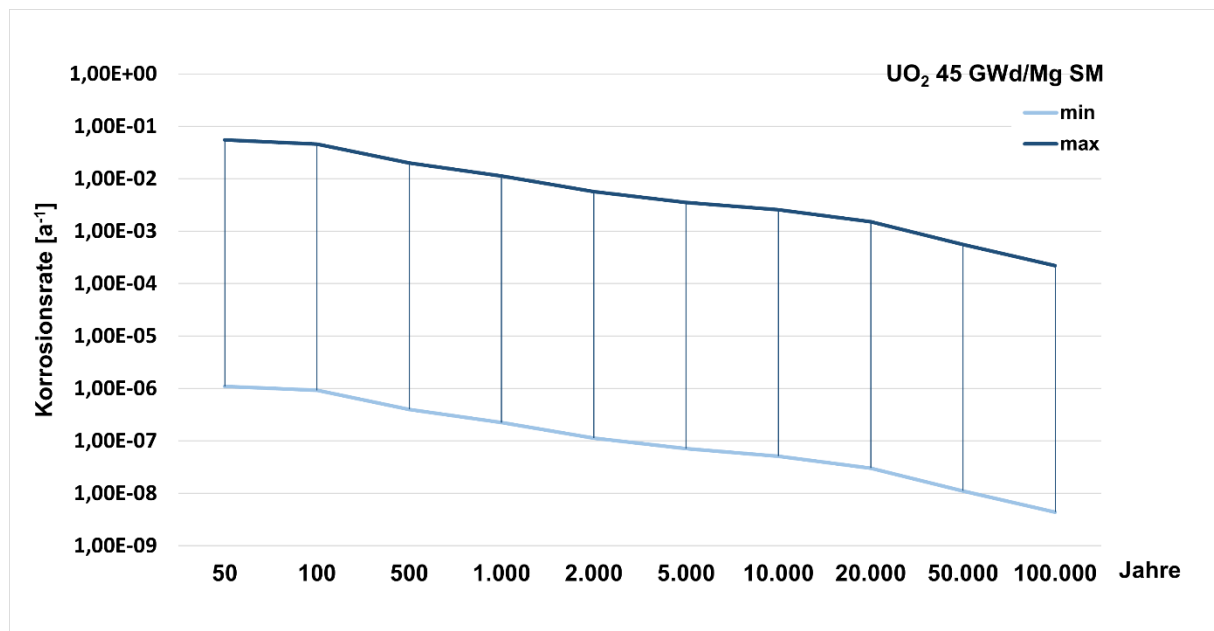
A. Abb. 1 Korrosionsraten für UO₂ mit 67 GWd/Mg SM in Abhängigkeit von t , A_{eff} und G_{eff}



A. Abb. 2 Bereich der Korrosionsraten aufgespannt von $r(t)_{min}$ und $r(t)_{max}$ für UO₂ mit 67 GWd/Mg SM



A. Abb. 3 Korrosionsraten für UO_2 mit 45 GWd/Mg SM in Abhängigkeit von t , A_{eff} und G_{eff}



A. Abb. 4 Bereich der Korrosionsraten aufgespannt von $r(t)_{\text{min}}$ und $r(t)_{\text{max}}$ für UO_2 mit 45 GWd/Mg SM

A. Tab. 6 Parameter und Korrosionsraten für die unterschiedlichen Brennelementtypen

Parameter	Korrosionsraten für UO ₂ 67 GWd/Mg SM in [a ⁻¹]	Korrosionsraten für UO ₂ 45 GWd/Mg SM in [a ⁻¹]	Korrosionsraten für MOX 55 GWd/Mg SM in [a ⁻¹]	Korrosionsraten für WWER 33 GWd/Mg SM in [a ⁻¹]
t = 50 A _{eff} = x1 G _{eff} = 0,001	2,01E-6	1,10E-6	8,74E-6	7,68E-7
t = 100.000 A _{eff} = x1 G _{eff} = 0,001	5,77E-9	4,39E-9	1,97E-8	3,79E-9
t = 50 A _{eff} = x50 G _{eff} = 1	1,00E-1	5,49E-2	4,37E-1	3,84E-2
t = 100.000 A _{eff} = x50 G _{eff} = 1	2,89E-4	2,20E-4	9,86E-4	1,89E-4

A.3 Maßnahmen für die Inventare

Tab. A.1 Maßnahmen für die verglasten Abfälle (CSD-V)

Effekt	Ursache	Mögliche Konsequenz	Maßnahme Zwischenlagerung	Maßnahme bei der Konditionierung	Offene Fragen/neue Konsequenz	Adressierung Wissenslücken
Degradation der Glasmatrix	Wirkung von Alpha-Strahlung und sich bildenden Zerfallsgasen	Vergrößerung der Glasoberfläche durch Glasdefekte	Keine - Prozesse können nicht beeinflusst werden	keine		Initiale Oberfläche nach der Herstellung und Oberfläche nach der thermischen Behandlung
			Ausheilen durch eine thermische Behandlung	Ausheilen durch eine thermische Behandlung	Realisierbarkeit und Zulässigkeit des Aufheizens des Behälters.	
Gasansammlung in der Edelmetallkokille	Freisetzung von (aus Alpha-Zerfällen stammenden) Helium aus der Glasmatrix	Druckaufbau und mögl. Integritätsverlust der Edelmetallkokille und Freisetzung in den Behälter	Keine - Weiterlagerung und Überwachung per Alterungsmanagement	Keine		Freisetungsgrad von Helium aus der Glasmatrix (durch Surrogat-Experimente oder Probenahme an der Edelmetallkokille)
				Bei Integritätsverlust - Overpack für die Kokille	Designanpassung bei EL-Behälter oder EL-Konzept zu berücksichtigen	
			Ohne Integritätsverlust - Overpack für die Kokille			
			Früherer Abtransport an Eingangslager/Konditionierungsanlage	Overpack für die Kokille		
Versprödung der Edelmetallkokille	Wirkung von Alpha- und Gamma-Strahlung	keine	keine	keine		Freisetungsgrad von Helium aus der Glasmatrix (durch Surrogat-Experimente oder Probenahme an der Edelmetallkokille)
		Integritätsverlust der Edelmetallkokille und Freisetzung in den Behälter	Keine - Weiterlagerung und Überwachung per Alterungsmanagement	Keine	Designanpassung bei EL-Behälter oder EL-Konzept zu berücksichtigen	
				Bei Integritätsverlust - Overpack für die Kokille		
			Ohne Integritätsverlust - Overpack für die Kokille			
			Früherer Abtransport an Eingangslager/Konditionierungsanlage	Overpack für die Kokille		

Tab. A.2 Maßnahmen für die LWR-Brennelemente

Effekt	Ursache	Konsequenz	Maßnahme Zwischenlagerung	Maßnahme bei der Konditionierung	Offene Fragen/neue Konsequenz	Adressierung Wissenslücken
Versprödung des Hüllrohres	Zusammenwirken von Temperatur, freigesetztem Spaltgasinventar und Wasserstoff im Hüllrohr - Wasserstoffreorientierung	Verringerte Duktilität bei der Handhabung und Transport durch Unterschreiten der Sprödbbruchübergangstemperatur	Vermeidung des Unterschreitens der Sprödbbruchübergangstemperatur durch Manipulation der Wärmeabfuhr - Isolation oder Heizen der Behälter	Vermeidung von Handhabungsvorgängen - bedeutet Verbleib der BE im TLB	TLB müsste als Endlagerbehälter fungieren	- Daten zur Betriebshistorie der Brennelemente inkl. Position und Zyklusfahrweise - Geometriedaten der Brennelemente inklusive Füllgasdruck - Behälterbeladeplan - Wasserstoffgehalt? (ansonsten zu simulieren) - Best-estimate Temperaturanalysen - Ertüchtigung der Simulationssoftware (Brennstabcodes) unter Ermittlung spezifischer Materialkennwerte (Hydridverteilungen und mechanische Kenngrößen) für verwendete Hüllrohrmaterialien über Experimentalprogramme
			Früherer Abtransport an Eingangslager/Konditionierungsanlage	Frühere Anlieferung/Konditionierung und optionales Aufheizen der Brennelemente vor oder bei dem Umladen	Längere Lagerung des Inventars im Endlagerbehälter im Puffer-/Eingangslager	
		Versprödung durch Ausbildung von radial Hydriden	Keine - Behälteröffnung nicht nachweisbar	Auflösen der radialen Hydride durch Aufheizen und anschließendem Quenchen führt zur Veränderung der Hydridmorphologie	Signifikanz der radialen Hydride auf die Versprödung der Hüllrohre	
		Verringerte Duktilität bei der Handhabung und Transport durch hohe Anfangstemperaturen und -spannungen während der Trocknung	Vor der ZL: Schonendere Prozeduren bei noch abzufertigenden Behältern			
		Integritätsverlust des Hüllrohres und Spaltgasfreisetzung in den Behälter	Keine - ohne Gasprobennahme oder Behälteröffnung nicht nachweisbar	Verkapselung betroffener Hüllrohre oder Brennelemente	evtl. Designanpassung bei EL-Behälter zu berücksichtigen	
				Anwendung chemischer, physikalischer oder mechanischer Verfahren zur Herstellung des in den Annahmebedingungen spezifizierten Zustands	Annahmebedingungen (Zustand, Behälter etc.)	
Kriechen	Zusammenwirken von hoher Temperatur und freigesetztem Spaltgasinventar	Aufweitung des Durchmessers und Wandstärkenreduktion	Keine - unzulässige Aufweitung per Nachweis für 40 a ausgeschlossen		Relevanz des athermischen Kriechens	Daten generieren oder Ausschluss per Nachweis
Oxidation	Oxidationszustand des Hüllrohres aus dem Reaktorbetrieb im Zusammenspiel mit Restfeuchte im Behälter	Reduktion der effektiven Wandstärke	Keine - unzulässige Oxidation in der ZL durch Verfahren und Inertisierung des Behälterinnenraumes ausgeschlossen.			
Ausheilung der Strahlungsver-sprödung	Ausheilung bei geringen Temperaturen aber hinreichend langen Zeiten	Duktilitätsgewinn des Hüllrohres und folglich erhöhtes Kriechvermögen	Keine - keine nachteiligen Auswirkungen auf die Kriechrate durch die Begrenzung der Temperatur auf max. 370 °C		- Gegenläufige Effekte - Effekt der langen Lagerzeit nicht vollends auszuschließen	Verfolgung grundlagenwissenschaftlicher Ansätze

Effekt	Ursache	Konsequenz	Maßnahme Zwischenlagerung	Maßnahme bei der Konditionierung	Offene Fragen/neue Konsequenz	Adressierung Wissenslücken
Zunahme und Zusammenwachsen von Fehlstellen und Versetzungen	Strahlungsinduziert	Strahlungsversprödung und -verhärtung	Keine - nicht feststell- und verhin-derbar, außerdem zu geringe Prozessgeschwindigkeit - integraler Neutronenfluss im Zeitraum der ZL viel geringer als im Reaktorbetrieb			
Abfallmatrixdegradation	Akkumulation von Defektstellen im Kristallgitter durch Alpha-Zerfälle	Pelletschwellen bzw. Integritätsverlust Hüllrohr, Brennstoffaustritt	Keine - Inkaufnahme Integritätsverlust	Verkapselung betroffener Hüllrohre oder Brennelemente	Evtl. Designanpassung bei EL-Behälter zu berücksichtigen.	Experimentelle Untersuchungen zum: - Brennstoffschwellen bestrahlter Proben - Pellet-Hüllrohr Wechselwirkung - Aufsättigung von Strahlenschäden
				Anwendung chemischer, physikalischer oder mechanischer Verfahren zur Herstellung des in den Annahmebedingungen spezifizierten Zustands	Annahmebedingungen (Zustand, Behälter etc.)	
			Früherer Abtransport an Eingangslager/Konditionierungsanlage	Frühere Anlieferung/Konditionierung	Längere Lagerung des Inventars im Endlagerbehälter im Puffer-/Eingangslager	
	Bildung und Ansammlung von Helium aus Alpha-Zerfällen,	Druckaufbau durch Freisetzung von Helium in den Spaltraum bzw. Integritätsverlust Hüllrohr	Keine - Inkaufnahme Integritätsverlust	Verkapselung betroffener Hüllrohre oder Brennelemente	Evtl. Designanpassung bei EL-Behälter zu berücksichtigen.	- Experimentelle Untersuchungen zum Langzeitfreisetzungverhalten von Helium aus der Brennstoffmatrix
				Anwendung chemischer, physikalischer oder mechanischer Verfahren zur Herstellung des in den Annahmebedingungen spezifizierten Zustands	Annahmebedingungen (Zustand, Behälter etc.)	
			Früherer Abtransport an Eingangslager/Konditionierungsanlage	Frühere Anlieferung/Konditionierung	Längere Lagerung des Inventars im Endlagerbehälter im Puffer-/Eingangslager	
		Vergrößerung der Oberfläche innerhalb der Abfallmatrix	Keine - nicht feststell- und verhin-derbar	Keine	Relevanz der Oberflächenvergrößerung während der ZL	

Tab. A.3 Maßnahmen für die WWER-Brennelemente

Effekt	Ursache	Konsequenz	Maßnahme Zwischenlagerung	Maßnahme bei der Konditionierung	Offene Fragen/neue Konsequenz	Adressierung Wissenslücken
Kriechen	Zusammenwirken von hoher Temperatur und freigesetztem Spaltgasinventar	Aufweitung des Durchmessers und Wandstärkenreduktion	Keine - unzulässige Aufweitung per Nachweis für 40 a ausgeschlossen - Im Fall unzulässigen Kriechens, Abkühlung des Behälters		Relevanz des athermischen Kriechens	Daten generieren oder Ausschluss per Nachweis
Oxidation	Oxidationszustand des Hüllrohres aus dem Reaktorbetrieb im Zusammenspiel mit Restfeuchte im Behälter	Reduktion der effektiven Wandstärke - unzulässige Oxidation per Nachweis ausgeschlossen.	Keine	Verkapseln und Inertisierung	evtl. Designanpassung bei EL-Behälter zu berücksichtigen	
Ausheilung der Strahlungsversprödung	Ausheilung bei geringen Temperaturen aber hinreichend langer Zeiten	Duktilitätsgewinn des Hüllrohres und folglich erhöhtes Kriechvermögen	Keine - keine nachteiligen Auswirkungen auf die Kriechrate durch die Begrenzung der Temperatur auf max. 370 °C			
Zunahme und Zusammenwachsen von Fehlstellen und Versetzungen	Strahlungsinduziert	Strahlungsversprödung und -verhärtung	Keine - nicht feststell- und verhin-derbar, außerdem zu geringe Prozessgeschwindigkeit - integraler Neutronenfluss im Zeitraum der ZL viel geringer als im Reaktorbetrieb		- Gegenläufige Effekte - Effekt der langen Lagerzeit nicht vollends auszuschließen	Verfolgung grundlagenwissenschaftlicher Ansätze
Abfallmatrixdegradation	Akkumulation von Defektstellen im Kristallgitter durch Alpha-Zerfälle	Pelletsschwellen bzw. Integritätsverlust Hüllrohr, Brennstoffaustritt	Keine - Inkaufnahme Integritätsverlust	Verkapselung betroffener Hüllrohre oder Brennelemente	Evtl. Designanpassung bei EL-Behälter zu berücksichtigen.	- Experimentelle Untersuchungen zum: - Brennstoffschwellen bestrahlter Proben - Pellet-Hüllrohr Wechselwirkung - Aufsättigung von Strahlenschäden
			Früherer Abtransport an Eingangslager/Konditionierungsanlage	Anwendung chemischer, physikalischer oder mechanischer Verfahren zur Herstellung des in den Annahmebedingungen spezifizierten Zustands	Annahmebedingungen (Zustand, Behälter etc.)	
			Früherer Abtransport an Eingangslager/Konditionierungsanlage	Frühere Anlieferung/Konditionierung	Längere Lagerung des Inventars im Endlagerbehälter im Puffer-/Eingangslager	
	Bildung und Ansammlung von Helium aus Alpha-Zerfällen,	Druckaufbau durch Freisetzung von Helium in den Spalt-raum bzw. Integritätsverlust Hüllrohr	Keine - Inkaufnahme Integritätsverlust	Verkapselung betroffener Hüllrohre oder Brennelemente	Evtl. Designanpassung bei EL-Behälter zu berücksichtigen.	- Experimentelle Untersuchungen zum Langzeitfreisetungsverhalten von Helium aus der Brennstoffmatrix
			Früherer Abtransport an Eingangslager/Konditionierungsanlage	Anwendung chemischer, physikalischer oder mechanischer Verfahren zur Herstellung des in den Annahmebedingungen spezifizierten Zustands	Annahmebedingungen (Zustand, Behälter etc.)	
			Früherer Abtransport an Eingangslager/Konditionierungsanlage	Frühere Anlieferung/Konditionierung	Längere Lagerung des Inventars im Endlagerbehälter im Puffer-/Eingangslager	
	Vergrößerung der Oberfläche innerhalb der Abfallmatrix		Keine - nicht feststell- und verhin-derbar	Keine		

Effekt	Ursache	Konsequenz	Maßnahme Zwischenlagerung	Maßnahme bei der Konditionierung	Offene Fragen/neue Konsequenz	Adressierung Wissenslücken
	Undichte Hüllrohre, Restfeuchte	Volumenzunahme des Brennstoffes durch Oxidation (defekte Stäbe)	Früherer Abtransport an Eingangslager/Konditionierungsanlage	Anwendung chemischer, physikalischer oder mechanischer Verfahren zur Herstellung des in den Annahmebedingungen spezifizierten Zustands	- Zustand der Brennstoffmatrix - Langzeitverhalten der Filterkerzen - Annahmebedingungen (Zustand, Behälter etc.)	- Datenerhebung oder Dokumentation zum (Langzeit-)rückhaltevermögen der Filterkerzen - Erhebung Brennstoffzustand gestörter und intakter Stäbe (Vergleich)
Chemische Reaktionen von Brennelement und -strukturteilen	Undichte Hüllrohre	Zerfallsgasfreisetzung in den Behälter und nachfolgende Korrosion	-Zum Erhalt der Handhabbarkeit -früherer Abtransport an Eingangslager/Konditionierungsanlage	Anwendung chemischer, physikalischer oder mechanischer Verfahren zur Herstellung des in den Annahmebedingungen spezifizierten Zustands	- Menge der aus der Brennstoffmatrix ausgetretenen (flüchtigen) Zerfallsgase und deren Korrosionsrate - Annahmebedingungen (Zustand, Behälter etc.)	Experimentelle Untersuchungen und Berechnungen
				Verkapselung betroffener Brennelemente	evtl. Designanpassung bei EL-Behälter zu berücksichtigen	

Tab. A.4 Maßnahmen für die THTR/AVR-Brennelemente

Effekt	Ursache	Konsequenz	Maßnahme Zwischenlage- rung	Maßnahme bei der Konditionie- rung	Offene Fragen/neue Konse- quenz	Adressierung Wissenslü- cken
Gasansammlung in der Kanne	Brennelementkugeln mit hoher Restfeuchte (nur AVR)	Druckaufbau durch Korrosionspro- dukte und Radiolysegas	Keine - Kanne bereits ver- schweißt	Keine	Langzeitbelastung/-integrität der Kanne	
				Umpacken der Brennelementkugeln in eine neue Edelstahlkanne		
				Umpacken der Edelstahlkannen in ein Overpack		
Gasansammlung in der Kanne durch Diffusions- , Korrosions- und Desorptionsvorgänge	- Korrosion von Graphit und C- 14 Freisetzung durch einge- schlossenen Sauerstoff - Krypton als Spaltprodukt - Tritium als Reaktionsprodukt	Druckaufbau	Keine - zu geringer Druck- aufbau	Keine	Langzeitbelastung/-integrität der Kanne	-Tatsächlicher Freisetzungs- grad der Zerfallsprodukte aus den THTR/AVR- Brennelementkugeln
				Verschweißen der Kanne		
				Umpacken der Brennelementkugeln in eine neue Edelstahlkanne		
				Umpacken der Edelstahlkannen in ein Overpack		

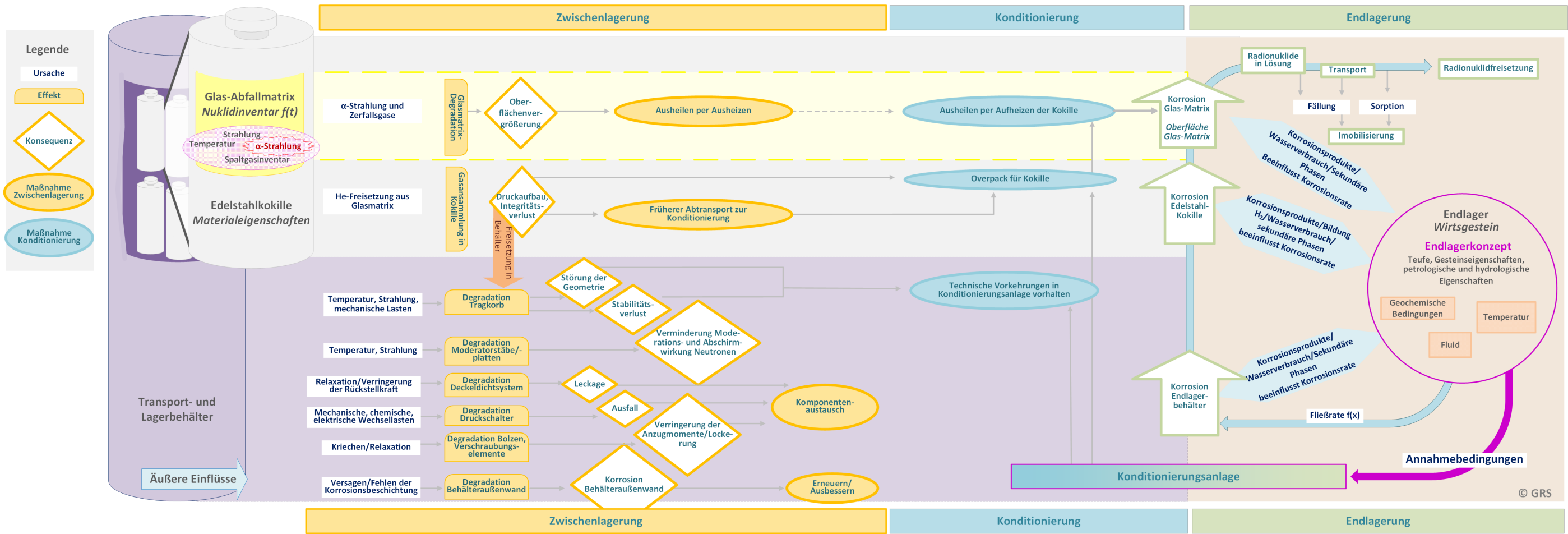
Tab. A.5 Maßnahmen für die FR-Brennelemente

Effekt	Ursache	Konsequenz	Maßnahme Zwischenlage- rung	Maßnahme bei der Kondi- tionierung	Offene Fragen/neue Konse- quenz	Adressierung Wissenslücken
Oxidation	Oxidationszustand des Hüllrohres aus dem Reak- torbetrieb im Zusammen- spiel mit Restfeuchte im Behälter	Reduktion der effektiven Wandstärke	Keine - unzulässige Oxida- tion per Nachweis ausge- schlossen.		BE mit Al-Legierung sollten vor der Abfertigung inspiziert worden sein. Nasslagerche- mie wichtig hinsichtlich Al- Korrosion.	Bzgl. verlängerten Lagerzeiten von BE mit Al- Legierungen ist zu prüfen, ob entsprechende visuelle Inspektionen/Prüfungen bei der Behäl- terbeladung durchgeführt wurden. In zweiter Instanz ist eine Dokumentation über die Para- meter der Nasslagerwasserchemie für eine Be- wertung des Zustands während der Lagerung hilfreich.
Versprödung des Hüll- rohres	Wasserstoff im Hüllrohr oder Strahlenschäden	Verringerte Belastbarkeit bei der Handhabung und Trans- port	Keine - Vermeidung von Handhabungen	Vermeidung von Handha- bungsvorgängen - bedeutet Verbleib der BE im TLB	TLB müsste als Endlagerbe- hälter fungieren	KNK und OH Brennelemente aus Stahl bzw. Zr und zusätzlich in Büchsen verpackt, somit sind zusätzliche Barrieren vorhanden. FR-BE aus Garching, Mainz, Berlin aus Aluminium. Der Sachverhalt, ob Versprödungseffekte bestehen bedarf wissenschaftlicher Klärung oder dem Ausschluss per Nachweis vom Betreiber.
		Integritätsverlust Brennele- ment/Brennstoffplatte	Keine - ohne Behälteröffnung nicht nachweisbar	Verkapselung betroffener Brennelemente Anwendung chemischer, physikalischer oder mecha- nischer Verfahren zur Her- stellung des in den Annah- mebedingungen spezifizierten Zustands	evtl. Designanpassung bei EL-Behälter zu berücksichti- gen Annahmebedingungen (Zu- stand, Behälter etc.)	
Brennstoffschwellen	Ansammlung von Spalt- und Zerfallsgase	"Pillowing" - Aufblähen der Brennstoffmatrix und ggf. In- tegritätsverlust von Brenn- stoffplatten (ohne Gasfreiset- zung)	Keine - ohne Behälteröffnung nicht nachweisbar	Verkapselung betroffener Brennelemente Anwendung chemischer, physikalischer oder mecha- nischer Verfahren zur Her- stellung des in den Annah- mebedingungen spezifizierten Zustands	evtl. Designanpassung bei EL-Behälter zu berücksichti- gen Annahmebedingungen (Zu- stand, Behälter etc.)	Klärung inwieweit Pillowing in den Genehm- gungen zum Betrieb oder der Zwischenlage- rung Berücksichtigung findet
Abfallmatrixdegrada- tion	Bildung und Ansammlung von Zerfallsgasen	Vergrößerung der Oberfläche innerhalb der Abfallmatrix	Keine - ohne Behälteröffnung nicht nachweisbar	Keine		

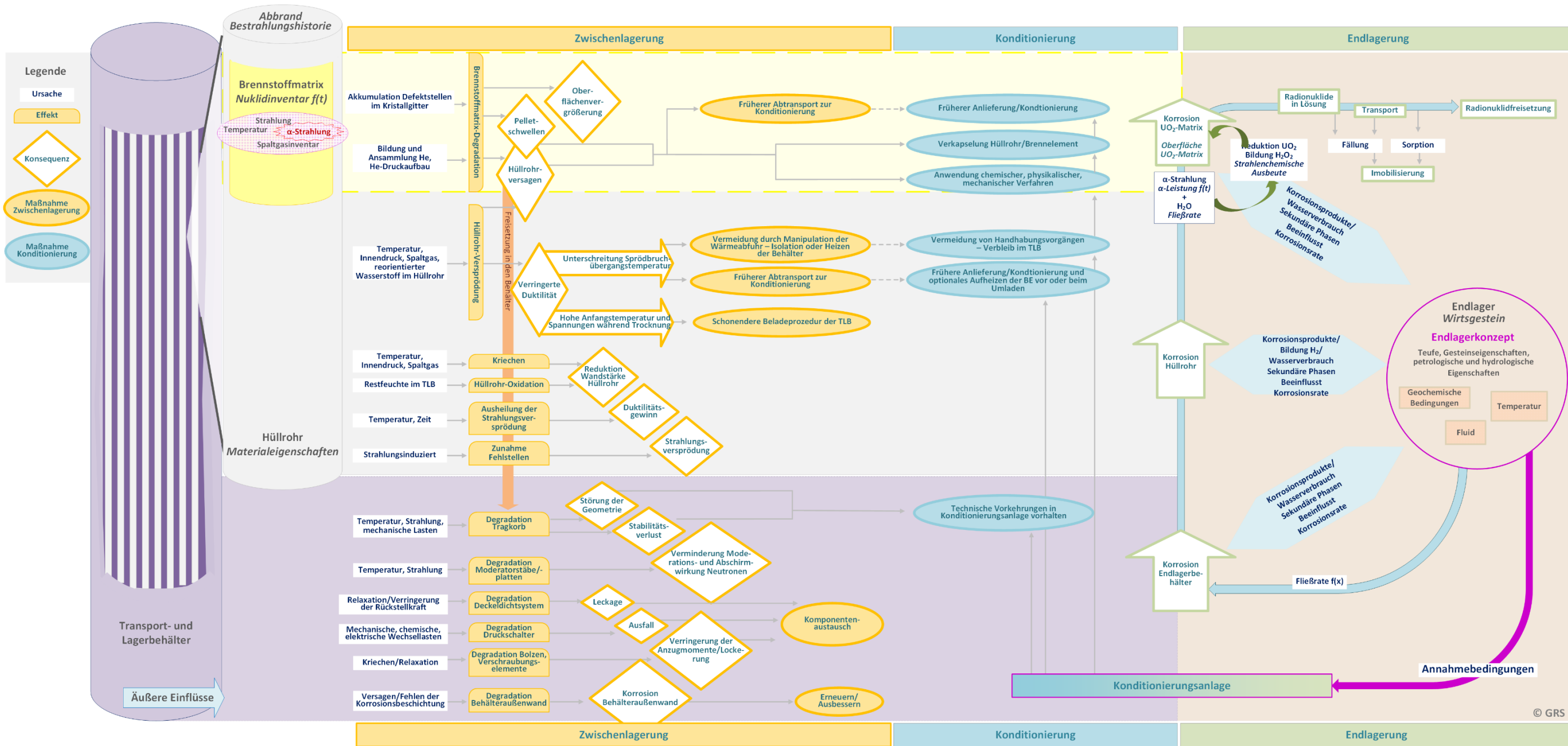
Tab. A.6 Maßnahmen für den Transport- und Lagerbehälter

Effekt	Ursache	Konsequenz	Maßnahme Zwischenlage- rung	Maßnahme bei der Konditio- nierung	Offene Fragen/neue Konse- quenz	Adressierung Wissenslücken
Degradation Behälterau- ßenwand	Versagen/Fehlen der Korrosi- onsbeschichtung	Korrosion Behälteraußen- wand	- periodische visuelle Prüfung - Erneuerung Beschichtung			
Degradation Deckeldicht- system	Relaxation/Verringerung der Rückstellkraft	Leckage	- Selbstüberwachung - Erneuerung der Dichtung			Vorlaufversuche
Degradation Druckschalter	mechanisch, chemische, elekt- rische Wechsellasten	Ausfall	-Selbstüberwachung -Austausch			
Degradation Bolzen und Verschraubungselemente	Kriechen/Relaxation	Verringerung der Anzugs- momente und Lockerung	- wiederkehrende Prüfung - ggf. Austausch			
Degradation Moderator- stäbe/-platten	Strahlungs- und Wärmeeinfluss	Verminderung der Mode- rations- und Abschirmwir- kung von Neutronen	- Komponente nicht auswech- selbar - Berücksichtigt in der Ausle- gung - Kompensation durch Ab- nahme des Quellterms			
Degradation Tragkorb	Temperatur, Strahlung, Mecha- nische Lasten	Störung der Geometrie	- nicht überprüfbar ohne Behäl- teröffnung	- Eine Störung der Geometrie kann dazu führen, dass Brenn- elemente nicht gezogen wer- den können - entsprechende technische Vorkehrungen wä- ren in der Konditionierungsan- lage vorzuhalten	Langzeitverhalten des Tragkorbs und der verschiedenen Materialien nur in geringem Umfang experi- mentell untersucht	- Inspektion Behälterinnenraum - Erforschung zerstörungsfreier Prüfmethoden - Initiierung experimenteller Pro- gramme/Materialuntersuchun- gen
		Stabilitätsverlust		- Ein Stabilitätsverlust kann bei Transport- und Handhabung zur Beschädigung der Brenn- elemente führen - Konditionierungsanlage wäre für den Fall auszulegen		

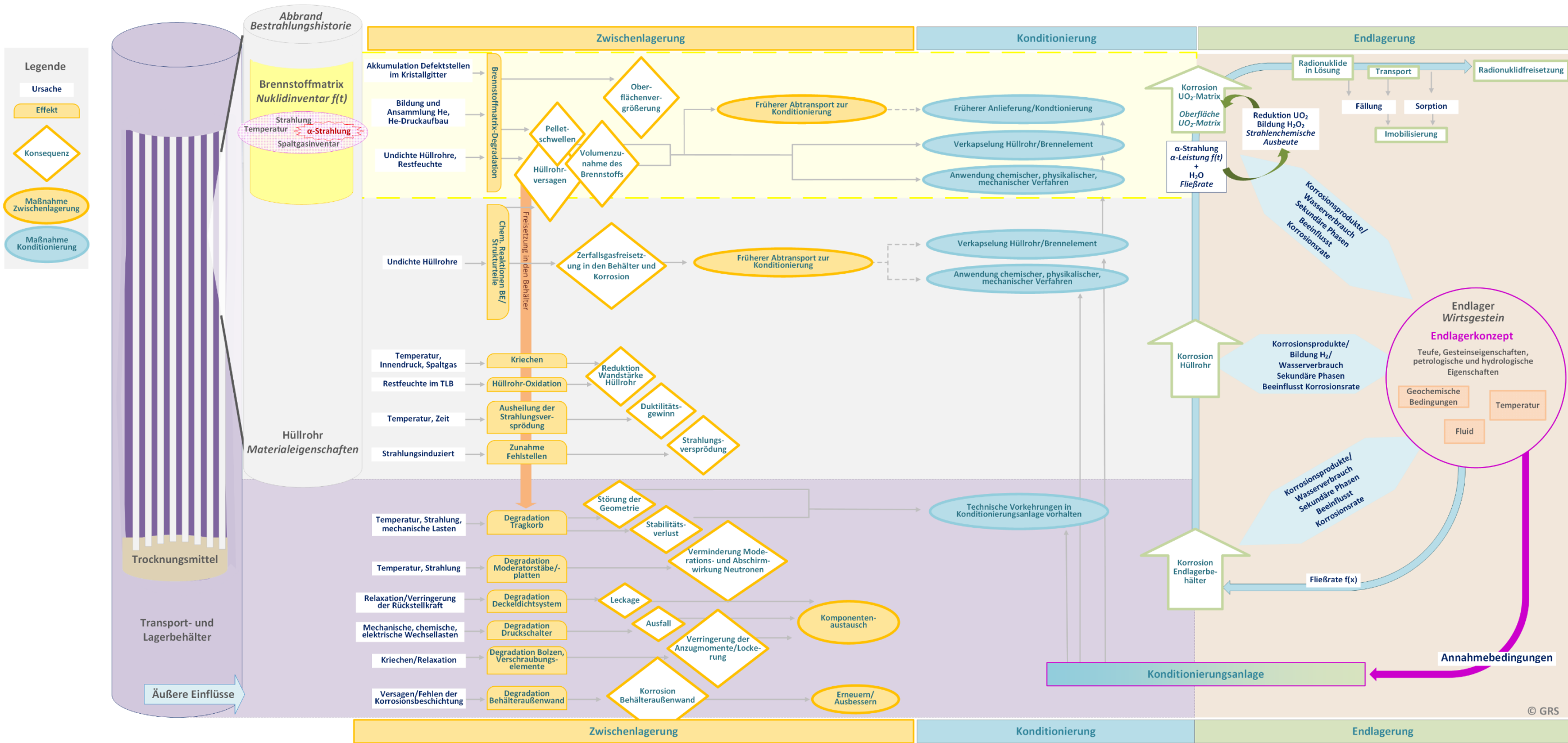
A.4 Kombinierte Betrachtung der Zwischen- und Endlagerung für verglaste Abfälle



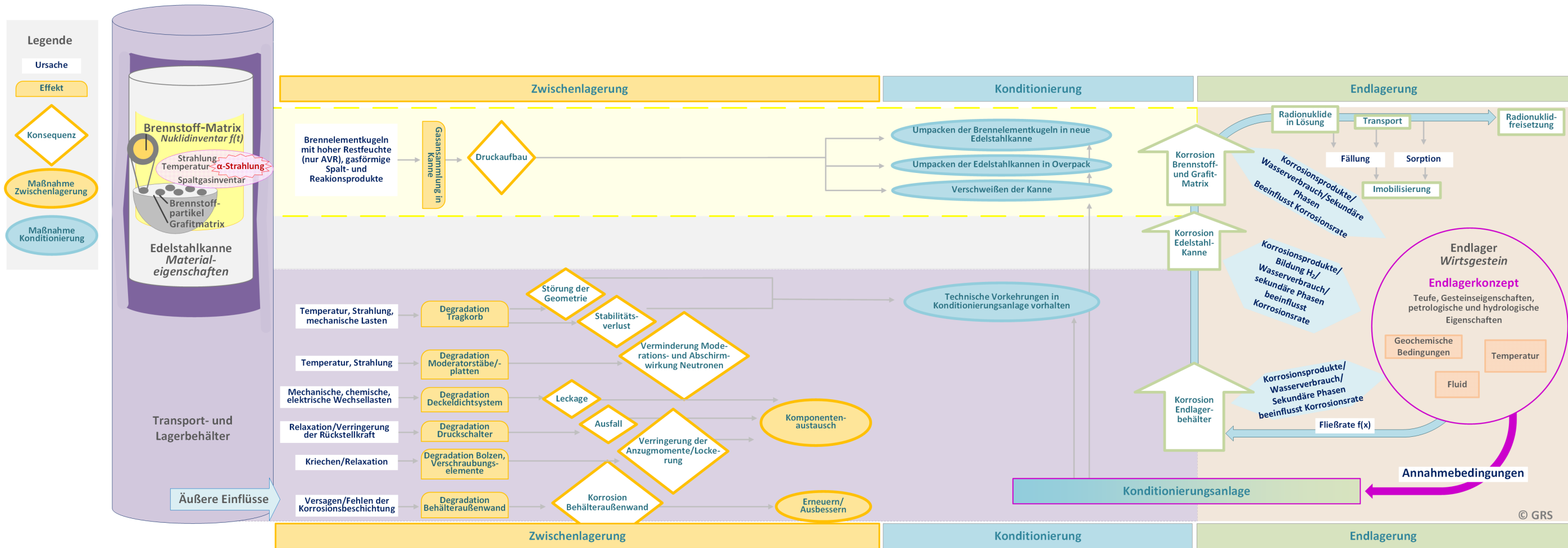
A.5 Kombinierte Betrachtung der Zwischen- und Endlagerung für LWR-Brennelemente



A.6 Kombinierte Betrachtung der Zwischen- und Endlagerung für WWER-Brennelemente



A.7 Kombinierte Betrachtung der Zwischen- und Endlagerung für THTR/AVR-Brennelemente



A.8 Kombinierte Betrachtung der Zwischen- und Endlagerung für Forschungsreaktor-Brennelemente

