



Ansätze zur Modellierung der Behälterkorrosion und des Austrags von Radionukliden

Forschungsbericht 3 von 3 zum Projekt
„Langzeitintegrität von Behältern in Kristallingestein“ (LaKris)
FKZ 4722B10401

Guido Bracke
Thimo Philipp

Ansätze zur Modellierung der Behälterkorrosion und des Austrags von Radionukliden - Forschungsbericht 3 von 3 zum Projekt „Langzeitintegrität von Behältern in Kristallingestein“ (LaKris)

Dieser Bericht stellt ein Ergebnis wissenschaftlicher Forschung des BASE zum Zeitpunkt der Veröffentlichung dar und entfaltet keine Bindungswirkung für das künftige Handeln des BASE, insbesondere nicht für Entscheidungen im Rahmen von Genehmigungs-, Aufsichts- oder Beteiligungsverfahren.

BASE-008/25

Bitte beziehen Sie sich beim Zitieren dieses Dokumentes immer auf folgende URN:
urn:nbn:de:0221-2025111456872

Berlin, August 2025

Impressum

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

BASE – INHOUSE-FORSCHUNGSBERICHTE ZUR
SICHERHEIT DER NUKLEAREN ENTSORGUNG

Guido Bracke
Thimo Philipp

030 184321-0
www.base.bund.de

Stand: August 2025

GZ: F 3 - BASE - BASE62140 4722B10401 LaKris

Ansätze zur Modellierung der Behälterkorrosion und des Austrags von Radionukliden

**Forschungsbericht 3 von 3 zum Projekt
„Langzeitintegrität von Behältern in Kristallingestein“ (LaKris)**

**Guido Bracke
Thimo Philipp**

Zusammenfassung

Bei der Endlagerung von radioaktiven Abfällen in einem kristallinen Wirtsgestein, für das auch Konzepte ohne Berücksichtigung eines einschlusswirksamen Gebirgsbereichs zur Diskussion stehen, werden besonders hohe Anforderungen an die Integrität von (geo-)technischen Barrieren, insbesondere Endlagerbehältern, gestellt. Vor diesem Hintergrund ist es von Bedeutung die Korrosion von Endlagerbehältern und den Einfluss auf die Freisetzung von Radionukliden umfänglich zu verstehen und adäquat prognostizieren zu können.

Als Teil des BASE-Inhouse-Forschungsprojektes LaKris wurde in dem vorliegenden Bericht ein Review zu den verschiedenen etablierten Ansätzen zur Modellierung der Korrosion von Endlagerbehältern durchgeführt. Es existieren eine Vielzahl unterschiedlicher Ansätze, die jeweils zur Modellierung bestimmter Korrosionsmechanismen geeignet sind und verschiedene Detaillierungsgrade mit sich bringen. Verbreitet sind zum einen empirische Ansätze aber auch Ansätze auf Basis von Massenbilanzierung und Massentransport. Diese Ansätze enthalten Abstrahierungen und Vereinfachungen und eignen sich dadurch für den Einsatz in Langzeitsicherheitsanalysen. Daneben gibt es einige sehr komplexe mechanistische Modelle (z. B. reaktive Transportmodelle), die im Rahmen des Safety Case von zentraler Bedeutung zur Demonstration von Prozessverständnis sind und zur Begründung der getroffenen Abstrahierungen in den numerischen Modellen dienen.

Die Modellierung der Behälterkorrosion im Kontext des deutschen Standortauswahlverfahrens kann auf den umfangreichen internationalen Erfahrungen und Kenntnissen im Bereich der Korrosionsmodellierung aufbauen. Konkrete Modellrechnungen erfolgen jedoch erst dann sinnvoll, wenn detailliertere Kenntnisse z. B. bzgl. der hydrogeochemischen Bedingungen im Endlager und der verwendeten Behältermaterialien vorhanden sind.

Weiterhin wurde betrachtet, wie sich eine Integritätsverletzung der (geo-)technischen Barriere auf die Freisetzung der Radionuklide auswirken kann – speziell für den Fall, dass ein großer Teil der Barriere (und ggf. deren Wirkung) auch nach der Integritätsverletzung erhalten bleibt.

Es wurde ein Ansatz mit hypothetischen Funktionen und Parametern vorgestellt, um das Rückhaltevermögen von (geo-)technischen Barrieren für Radionuklide zu quantifizieren. Der Vorschlag unterstellt eine verbleibende, partielle Rückhaltewirkung der (geo-)technischen Barrieren auch nach deren Ausfall und keinen, wie oft konservativ angenommen, vollständigen und instantanen Austrag des Radionuklidinventars in das kristalline Wirtsgestein.

Für die Modellierung der zugrunde liegenden Prozesse (z. B. den Ausfall der verschiedenen technischen Barrieren) wurden in erster Näherung e-Funktionen verwendet. Diese sollen den Zeitpunkt eines Ausfalls sowie zeitabhängig die Größe der ausfallenden Wandungen von Umschließungen, wie Zirkalloyhüllen der Brennstäbe und Behälter, beschreiben. Der Austrag von Radionukliden aus den (geo-)technischen Barrieren in das Wirtsgestein wurde mit hypothetischen Parameterwerten berechnet.

Weiter wurde angenommen, dass Radionuklide in Korrosionsprodukten eines Innenbehälters eines POLLUX-Behälters und im Bentonit diffundieren und sorbieren können. Dies wurde mit dem Fick'schen Gesetz mit Anwendung des scheinbaren Diffusionskoeffizienten modelliert. Die scheinbare Diffusionskonstante wurde in einer realitätsnahen Größenordnung gewählt.

Als Ergebnis der Modellierung wurde der relative Anteil eines Radionuklides, das durch die (geo-)technischen Barrieren in das Wirtsgestein ausgetragen werden kann, zeitabhängig abgebildet. Dieser Anteil ist für eine Bewertung nach Endlagersicherheitstanforderungsverordnung (EndLSiAnfV 2020) von Interesse. Es zeigte sich, dass die Berücksichtigung einer verbleibenden Rückhaltewirkung anstelle eines instantanen Komplettausfalls der (geo-)technischen Barrieren einen großen Einfluss auf den Radionuklidaustrag haben kann und dass Diffusion und Sorption in Korrosionsprodukten des Behälters und im Bentonit bewertungsrelevante Prozesse darstellen.

Da die Berechnungen auf fiktiven Funktionen und Parameterannahmen beruhen (keine hinreichend qualifizierte numerische Modellierung auf Grundlage realitätsnaher Annahmen gemäß EndLSiUntV § 9 Abs. 2), kann anhand der Ergebnisse keine Einschätzung zur tatsächlichen Integrität und Freisetzung erfolgen. Der Ansatz ist nicht dafür geeignet, einen Austrag des Radionuklidinventars realitätsnah zu quantifizieren oder zu extrapoliieren. Generisch konnte jedoch gezeigt werden, dass eine Modellierung der Freisetzung bzw. Rückhaltung von Radionukliden unter Berücksichtigung einer Restwirksamkeit von integritätsverletzten (geo-)technischen Barrieren mit gewählten Funktionen und Parameterwerten möglich erscheint und somit möglicherweise zusätzliche, bewertungsrelevante Sicherheitsreserven gegenüber konservativen Annahmen ausgewiesen werden können.

Abstract

The final disposal of high-level radioactive waste in crystalline host rock without a containment providing rock zone involves particularly high requirements on the integrity of engineered and geo-engineered barriers, especially on the waste canister. Therefore, it is essential to understand and be able to predict the corrosion behavior of waste canisters and the implication for the release of radionuclides.

As part of the BASE inhouse research project *LaKris*, this report contains a review on the various approaches to model the corrosion of canisters. Numerous approaches with different complexity exist for the modelling of the different corrosion mechanisms and for the different potential canister materials. Widely-used are empirical approaches but also models based on mass balance or mass transport. These approaches use simplifications and are suitable for long-term safety assessment. Beyond that, very complex mechanistic models (such as reactive transport models) exist, which are crucial for the demonstration of process understanding within the safety case, justifying the simplifications made in the numeric models.

Future modeling of container corrosion in the German site selection procedure and safety assessment can build on a profound and extensive international knowledge and experience. However, precise and meaningful modeling can only be performed when detailed knowledge about the boundary conditions (such as local hydrochemical data) is available.

In the second part of this report the effect of a loss of integrity of (geo-)engineered barriers on the release of radionuclides was evaluated – in particular for the scenario that part of the barrier is still present and can contribute to a retardation.

A modeling approach with hypothetical functions and parameters is presented in order to quantify the retention potential of (geo-)engineered barriers. It assumes a residual partial retention potential of these barriers even after loss of integrity and not, as commonly assumed, an instant and complete release of radionuclides after barrier failure.

As a first approximation e-functions were used for the modeling of underlying processes (e. g. failure of different technical barriers), aiming to describe the time of failure and the time-dependent extent/size of barrier defects. The release of radionuclides from the barriers into the host rock was modeled with hypothetical parameter values

It was assumed that radionuclide can diffuse through and sorb on the buffer and corrosion products of the inner canister (here POLLUX chosen as underlying canister concept). Diffusion was modeled with Fick's law and with an apparent diffusion coefficient in a realistic order of magnitude.

The modeling yields the time-dependent fraction of radionuclides that was released through the (geo-)technical barriers into the crystalline host rock. It was shown that the consideration of a residual retention potential of failed barriers, especially sorption on canister corrosion products and the buffer, can have a significant effect on radionuclide release.

Since the modeling based on hypothetical functions and parameter values (no qualified numerical modeling based on realistic assumptions according to EndSiUntV § 9 Abs. 2), no conclusion can be deduced regarding real radionuclide release and barrier integrity. However, as proof of principle it could be shown that a consideration of a residual retention potential of (geo-)technical barriers in radionuclide release modeling is feasible. By further development and optimization of the approach, disposal concepts with different (geo-)technical barriers could be analyzed and compared.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	iii
Abstract	v
1 Motivation und Hintergrund	1
1.1 Ziele und Betrachtungsumfang dieses Berichts.....	1
1.2 Kristallingestein als Wirtsgestein.....	3
1.3 Gesetzliche Grundlagen.....	4
2 Methodische Ansätze zur Modellierung der Behälterkorrosion	5
2.1 Empirische Korrosionsrate und empirische Lochfraß- und Rauhigkeitsfaktoren	9
2.2 Massenbilanz	10
2.3 Massentransport	10
2.4 Reaktiver Transport.....	11
2.5 Vorhersage des elektrochemischen Korrosionspotentials	12
2.6 Statistische Methoden.....	12
2.7 Argumentativer Ausschluss von Korrosionsmechanismen.....	13
2.8 Fazit.....	13
3 Vorschlag zur Berechnung des Austrags von Radionukliden bei Teilausfall der (geo-)technischen Barrieren	15
3.1 Einleitung.....	15
3.2 Methodischer Ansatz und Parameter	16
3.2.1 Hochradioaktiver Abfall	21
3.2.2 Zirkalloyhülle.....	22
3.2.3 Innen-/Außenbehälter.....	23
3.2.4 Lösungskonzentrationen.....	24
3.2.5 Diffusion (scheinbare).....	24
3.2.6 Berechnung des anteiligen Austrags des Radionuklidinventars in das kristalline Wirtsgestein.....	27
3.3 Ergebnisse.....	28
3.4 Diskussion und Schlussfolgerungen	31
4 Fazit und Ausblick	33
5 Abkürzungsverzeichnis	35
6 Literaturverzeichnis	36
7 Abbildungsverzeichnis	43
8 Tabellenverzeichnis	43

1 Motivation und Hintergrund

Für die Endlagerung hochradioaktiver Abfälle in Deutschland kommt neben Tongestein und Steinsalz auch Kristallingestein als Wirtsgestein in Betracht. Gemäß § 23 Abs. 1 StandAG ist für kristallines Wirtsgestein für den sicheren Einschluss der Abfälle ein alternatives Konzept zu einem einschlusswirksamen Gebirgsbereich möglich, das deutlich höhere Anforderungen an die Langzeitintegrität des Behälters und der geotechnischen Barrieren stellt (StandAG 2017). Vor diesem Hintergrund ist es vor allem für ein Endlager im kristallinen Wirtsgestein von zentraler Bedeutung die Korrosion von Endlagerbehältern, als integritätsgefährdenden Prozess, umfänglich zu verstehen und über den gesamten Bewertungszeitraum von 1 Million Jahren adäquat abbilden zu können.

Aus diesem Grund führte das BASE im Forschungsvorhaben „Langzeitintegrität von Behältern im Kristallingestein“ (LaKris, FKZ 4722B10401) ein Review zum Stand von Wissenschaft und Technik hinsichtlich Behälterkonzepten, Behälterkorrosion, im Kristallingestein in Deutschland zu erwartenden Umgebungsbedingungen sowie zu Modellierungsansätzen zu Behälterkorrosion und Einschlussvermögen durch. Dabei wurde die Frage beleuchtet, inwiefern sich Konzepte, Bedingungen, Erkenntnisse und Bewertungsansätze aus anderen Staaten, die eine Endlagerung in kristallinem Wirtsgestein verfolgen, auf die Endlagerung in Deutschland übertragen lassen. Die Ergebnisse des Vorhabens sind in drei Berichten veröffentlicht. Der Stand von Wissenschaft und Technik zu Behälterkonzepten ist im Bericht „Behälterkonzepte für Kristallingestein, Stand von W&T“ (Faß 2023) dargestellt. Im Bericht „Behälterkorrosion und Hydrogeochemie im Kontext der Endlagerung im Kristallingestein in Deutschland“ werden die zentralen Korrosionsmechanismen an den Behältermaterialien Kupfer und Kohlenstoffstahl unter Berücksichtigung der im Kristallingestein in Deutschland zu erwartenden hydrochemischen Bedingungen diskutiert (Philipp & Weyand 2024). In dem vorliegenden Bericht „Konzepte und Testrechnungen zur Vorhersage der Behälterintegrität und des Einschlussvermögens im Kristallingestein“ werden die nach aktuellem Stand von W&T wichtigsten Methoden zur Modellierung von Behälterkorrosion und ein Modellansatz zur Beschreibung des Einschlussvermögens vorgestellt.

1.1 Ziele und Betrachtungsumfang dieses Berichts

Die Endlagerbehälter sind im Bewertungszeitraum sowohl radiologischen, mechanischen, (mikro)biologischen als auch chemischen Einwirkungen ausgesetzt, die deren Integrität gefährden können und bei deren Auslegung sowie in Sicherheitsanalysen berücksichtigt werden müssen. In der Regel versagen (im Sinne einer Undichtigkeit oder Leckage) Behälter durch mechanische Belastung, nachdem der Behältermantel aufgrund von Korrosion an Stärke verloren hat. Die zulässige Korrosionstiefe wird also durch die minimale Wandstärke definiert, die notwendig ist, damit der Behälter den mechanischen Belastungen standhalten kann.

Daneben ist eine tiefe lokale Korrosion des Behälters möglich, die Radionuklide ohne Beeinträchtigung der strukturellen Integrität des Behälters freisetzen kann (King *et al.* 2023).

Aufgrund der Relevanz der Behälterintegrität für ein Endlagersystem, das im Wesentlichen auf technischen und geotechnischen Barrieren beruht, ist es von zentraler Bedeutung, das Korrosionsverhalten der Behältermaterialien verstehen und prognostizieren zu können. Vor allem vor dem Hintergrund des langen Bewertungszeitraums von 1 Million Jahren und den sich in diesem Zeitraum verändernden Umgebungsbedingungen ist eine Prognose der Behälterkorrosion sehr herausfordernd (King & Kolář 2019b). Damit unterscheidet sich diese Prognose fundamental von der Prognose einer Korrosion von metallischen Infrastrukturkomponenten wie z. B. Brücken oder Pipelines, für die deutlich kürzere Zeitspannen betrachtet werden (King 2014).

In den vergangenen Jahrzehnten wurden viele verschiedene Modellansätze zur Vorhersage der Korrosion von Behältermaterialien und der Lebensdauer von Endlagerbehältern entwickelt und stetig optimiert. Die verschiedenen Ansätze eignen sich für die unterschiedlichen Materialien und Korrosionsmechanismen in unterschiedlichem Maße und bringen jeweils spezifische Vor- und Nachteile mit sich. In Sicherheitsanalysen findet erfahrungsgemäß eine Kombination verschiedener Ansätze Eingang.

Kapitel 2 dieses Berichts gibt einen Überblick über die wichtigsten Modellansätze mit dem Ziel einer übersichtlichen Aufbereitung und Einordnung zum aktuellen Stand von Wissenschaft und Technik auf diesem Gebiet sowie einer Einordnung mit Bezug auf das deutsche Verfahren. Für eine detaillierte und umfassende Erörterung einzelner Ansätze wird auf die in Kapitel 2 zitierten Quellen verwiesen.

Neben der Prognose einer Behälterlebensdauer ist auch die zuverlässige Prognose der Versagensmechanismen von großer Bedeutung, da diese sich auf das Freisetzungsvorhalten der radioaktiven Abfallstoffe auswirken kann. So ist beispielsweise ein mögliches Szenario, dass der Behälter bei einer lokalen Undichtigkeit durch Lochfraß seine Barrierewirkung nicht schlagartig bzw. vollständig verliert, sondern immer noch in begrenztem Umfang zum Einschluss der Radionuklide beitragen kann (King & Kolář 2019b). Bisherige Betrachtungen gehen jedoch meist abdeckend von einen vollständigen Ausfall der Behälter und der Auflösung der radioaktiven Abfälle bzw. Radionuklide in einem gegebenen Volumen nach einer definierten Zeit (z. B. 500 Jahre (Becker *et al.* 2020a) oder 100.000 Jahre (Becker *et al.* 2020b) aus. Die Ungewissheiten sind dabei sehr groß (Becker *et al.* 2020b).

Daher hat Kapitel 3 dieses Berichts das Ziel, einen vereinfachten Ansatz für Modellrechnungen abgeleitet aus bestehenden Konzepten vorzustellen, der einen teilweisen Integritätsverlust der (geo-)technischen Barrieren und eine partielle Rückhaltung der Radionuklide innerhalb der (geo-)technischen Barrieren berücksichtigt. Anhand einer überschlägigen Testrechnung mit vereinfachten

mathematischen Funktionen und fiktiven Parameterwerten soll die Anwendbarkeit eines solchen Ansatzes gezeigt werden, der mit entsprechenden Daten zu einer realitätsnäheren Bewertung führen könnte.

1.2 Kristallingestein als Wirtsgestein

Kristallingestein umfasst magmatische und metamorphe Gesteine, die als potentielle Wirtsgesteine für dieendlagerung hochradioaktiver Abfälle in Betracht kommen (Weihmann *et al.* 2020; BGE 2020a; Bertrams *et al.* 2017). Die BGE hat bereits einige kristalline Gesteine grundsätzlich ausgeschlossen, beispielsweise niedrigmetamorphe Gesteine wie Phyllite, Hornfelse und Schiefer (BGE 2020a). Aus Sicht der BGE geeignet sind Plutonite (z. B. Granite und Granodiorite) sowie hochgradig regionalmetamorphe Gesteine wie Gneise und Migmatite (partiell aufgeschmolzene Gesteine).

Kristallinen Wirtsgesteinen werden unter anderem folgende vorteilhafte Eigenschaften zugeschrieben (BGR 2007):

1. Hohe Festigkeit und Hohlraumstabilität
2. Sehr geringes Lösungsverhalten
3. Sehr geringe hydraulische Durchlässigkeit (im ungestörten Zustand)

Allerdings weisen kristalline Gesteine oft Klüfte und Störungszonen auf, die die geringe hydraulische Durchlässigkeit als Barriereeigenschaft stark beeinträchtigen.

Es wurden für Endlagerkonzepte in Kristallingestein in Deutschland im Wesentlichen die folgenden Ansätze untersucht:

1. Multipler einschlusswirksamer Gebirgsbereich (ewG): Einlagerung in mehreren kleineren, gering geklüfteten Bereichen (Becker *et al.* 2020a)
2. Überlagernder ewG: Abdeckung des Einlagerungsbereichs durch eine Steinsalz- oder Tongesteinsformation als Barriere (Mrugalla *et al.* 2020)
3. Ohne ewG: Einschluss durch technische und geotechnische Barrieren gewährleistet (Becker *et al.* 2020b)

Kristallingestein als Wirtsgestein wurde z. B. von Finnland, Schweden, Tschechische Republik und Kanada in Betracht gezogen (Vondrovic *et al.* 2020; Braden & Macfarlane 2023; Posiva Oy & SKB 2017). Finnland, Kanada und Schweden haben bereits Endlagerstandorte mit einem Behälterkonzept in Kristallingestein festgelegt.

In Deutschland kommen nach aktuellem Stand des Standortauswahlverfahrens sieben Teilgebiete mit kristallinem Wirtsgestein für die Endlagerung in Betracht.

Der Großteil dieser Gesteine gehört zum kristallinen Grundgebirge und ist vergleichsweise stark geklüftet (BGR 2007; Becker *et al.* 2020b). Ein einschlussswirksamer Gebirgsbereich kann also gegebenfalls nicht ausgewiesen werden, wodurch besonders hohe Anforderungen an die Langzeitintegrität der Endlagerbehälter und weiterer technischer Barrieren gestellt werden (siehe auch Kapitel 1.3).

Eine ausführlichere Beschreibung der kristallinen Wirtsgesteine in Deutschland sowie den hydrochemischen Bedingungen findet sich im LaKris-Bericht „Behälterkorrosion und Hydrogeochemie im Kontext der Endlagerung im Kristallingestein in Deutschland“ (Philipp & Weyand 2024).

Detailliert ausgearbeitete Endlager- und Behälterkonzepte für kristallines Wirtsgestein in Deutschland existieren noch nicht. Generische Betrachtungen dazu erfolgten jedoch unter anderem in den Projekten CHRISTA I und II (Jobmann *et al.* 2016; Jobmann *et al.* 2021), RESUS (Becker *et al.* 2020b), KONEKD (Bertrams *et al.* 2017) und KoBrA (Bollingerfehr *et al.* 2020). Allgemeine Betrachtungen zur Integrität in Endlagersystemen im kristallinen Wirtsgestein finden sich zudem in Weyand & Kock (2016) und Eckel *et al.* (2019). Die Entwicklung von konkreten Behälterkonzepten ist unter anderem im Fokus des von der BGE beauftragten Forschungsprojektes ELBROCK (BGE 2022). Eine Übersicht über existierende Endlager- und Behälterkonzepte anderer Staaten für ein Endlager im kristallinen Wirtsgestein wird im LaKris-Bericht „Behälterkonzepte für Kristallingestein, Stand von W&T“ (Faß 2023) gegeben.

1.3 Gesetzliche Grundlagen

Für die Betrachtung der Integrität von Endlagerbehältern und des Einschlussvormögens von Endlagersystemen im Kristallingestein in Deutschland gibt es mehrere relevante gesetzliche Grundlagen.

Das Standortauswahlgesetz (StandAG 2017) bildet die zentrale gesetzliche Basis für den Prozess der Standortauswahl für ein Endlager für hochradioaktive Abfälle in Deutschland. Es legt fest, dass Kristallingestein neben Steinsalz und Tongestein als mögliches Wirtsgestein betrachtet wird. Gemäß § 23 Abs. 1 StandAG ist für kristallines Wirtsgestein für den sicheren Einschluss der Abfälle ein alternatives Konzept zu einem einschlussswirksamen Gebirgsbereich möglich. Bei diesem werden deutlich höhere Anforderungen an die Langzeitintegrität des Behälters gestellt. Nach § 23 Absatz 5 StandAG ist eine Mindestanforderung, dass keine Erkenntnisse oder Daten vorliegen, welche die Integrität des ewG [...] über einen Zeitraum von einer Million Jahren zweifelhaft erscheinen lassen. Nach § 23 (4) muss der Nachweis geführt werden, dass die technischen und geotechnischen Barrieren den sicheren Einschluss der Radionuklide für eine Million Jahre gewährleisten können.

Die Endlagersicherheitsanforderungsverordnung (EndSiAnfV 2020) konkretisiert die Sicherheitsanforderungen für Endlager für hochradioaktive Abfälle. Sie

definiert Anforderungen an die Beschreibung der zu erwartenden und abweichen- den Entwicklungen eines Endlagersystems. Im Fall von Kristallingestein kann der Einschluss durch technische und geotechnische Barrieren sichergestellt werden, wenn der sichere Einschluss nicht durch das Wirtsgestein selbst gewährleistet werden kann. Die Integrität wird in § 2 Absatz 5 definiert als „der Erhalt der für den sicheren Einschluss der radioaktiven Abfälle relevanten Eigenschaften der Barrieren des Endlagersystems“. In § 4 der EndLSiAnfV wird das vorgegebene Sicher- heitsprinzip der Konzentration und des Einschlusses der radioaktiven Abfälle un- ter dem Titel „Sicherer Einschluss der radioaktiven Abfälle“ konkretisiert:

- (1) Der sichere Einschluss muss innerhalb der wesentlichen Barrieren nach Ab- satz 3 so erfolgen, dass die Radionuklide aus den radioaktiven Abfällen wei- testgehend am Ort ihrer ursprünglichen Einlagerung (Behälter) verbleiben.
- (2) Für die zu erwartenden Entwicklungen ist zu prüfen und darzustellen, dass im Bewertungszeitraum
 1. insgesamt höchstens ein Anteil von 10^{-4} und
 2. jährlich höchstens ein Anteil von 10^{-9}

sowohl der Masse als auch der Anzahl der Atome aller ursprünglich eingelagerten Radionuklide aus dem Bereich der wesentlichen Barrieren ausgetragen wird. In diesen Anteilen sind auch radioaktive Zerfallsprodukte der ursprünglich eingela- gerten Radionuklide zu berücksichtigen.

Des Weiteren ist nach § 6 Absatz 2 EndLSiAnfV hinsichtlich der Integrität des Sys- tems der wesentlichen technischen und geotechnischen Barrieren zu prüfen und darzustellen, dass die Sicherheitsfunktionen der wesentlichen technischen und geotechnischen Barrieren nicht erheblich beeinträchtigt werden durch

1. die im Einlagerungsbereich möglicherweise ablaufenden hydraulischen, che- mischen und physikalischen Prozesse, **insbesondere Korrosion** und Ero- sion,
2. im umgebenden Gebirge auftretende Spannungen, Drücke und mögliche Ge- birgsbewegungen und
3. die Temperaturrentwicklung.

Diese gesetzlichen Grundlagen bilden den Hintergrund für die Überlegungen zu Endlagersystemkonzepten, Betrachtungen zur Behälterkorrosion und deren Vor- hersage sowie zu Testrechnungen zur Bewertung des Einschlussvermögens im Kristallingestein.

2 Methodische Ansätze zur Modellierung der Behälterkorrosion

Die Modellierung der Korrosion von Endlagerbehältern ist von zentraler Bedeu- tung für Prognosen bezüglich ihrer Integrität und Lebensdauer bis zu einem

Ausfall. Sie ist damit ein wichtiger Bestandteil von Sicherheitsanalysen für Endlagersysteme. Sie bildet außerdem die Grundlage für die Entwicklung und Auslegung von Endlagerbehältern.

Da ein gleichmäßiges Korrosionsverhalten zuverlässiger modelliert bzw. vorhergesagt werden kann als das bevorzugt lokale Korrosionsverhalten bei passiven bzw. passivierten Materialien, hat unter anderem deshalb in den letzten Jahrzehnten eine sukzessive Fokussierung auf aktiv korrodierende Materialien stattgefunden.

Zur Modellierung der Korrosion von Endlagerbehältern existiert eine Vielzahl von Ansätzen, die im Laufe der letzten Jahrzehnte für die verschiedenen Behältermaterialien und Korrosionsmechanismen in unterschiedlichem Maße entwickelt wurden. Diese Ansätze reichen von der simplen Extrapolation von empirisch gewonnenen Korrosionsraten bis hin zu sehr komplexen deterministischen, mechanistischen Modellen. Extrapolation wurden bereits Ende der 70er Jahre im schwedischen Entsorgungsprogramm angewendet (*Swedish Corrosion Institute 1978*). Die mechanistischen Modelle berücksichtigen eine Reihe von Korrosionsreaktionen und damit assoziierten Prozessen (z. B. Stofftransport, bakterielle Sulfatreduktion, Mineralfällung bzw. -lösung).

Die Anwendung verschiedener Ansätze zur Modellierung der Behälterkorrosion liegt nicht nur in den unterschiedlichen Korrosionsmechanismen für die verschiedenen Behältermaterialien begründet. Auch für ein und denselben Mechanismus hat die Anwendungen mehrerer unterschiedlicher Modellierungsmethoden seine Berechtigung. Grund dafür ist, dass mit den jeweiligen Ansätzen unterschiedliche Zwecke verfolgt werden können. So ist neben der Quantifizierung der über den Bewertungszeitraum zu erwartenden Korrosionstiefe ein weiteres Ziel von Korrosionsmodellierung die Demonstration des mechanistischen Verständnisses der zugrunde liegenden Korrosionsprozesse. Detaillierte Prozessmodelle sind oft zu komplex, um numerisch in Langzeitsicherheitsanalysen für das gesamte Endlagersystem Eingang zu finden. Für den Safety Case ist es jedoch wichtig, dass durch solche Modelle gewonnene Prozessverständnis zu demonstrieren (*King et al. 2023*). Nur so können die für die Modellierung der Radionuklidfreisetzung getroffenen notwendigen Abstraktionen und Vereinfachungen wissenschaftlich gerechtfertigt und Vertrauen in den Safety Case gebildet werden. Des Weiteren kann die Anwendung mehrerer Methoden zur Modellierung eines Korrosionsmechanismus die Vertrauenswürdigkeit und Robustheit der Prognosen untermauern, wenn verschiedene Methoden das gleiche oder ein ähnliches Ergebnis liefern.

Die wichtigsten methodischen Ansätze zur Korrosion von Endlagerbehältern aus Kupfer und Kohlenstoffstahl sind bereits in Review-Arbeiten zusammengefasst (*Abdelouas et al. 2022; King et al. 2023; King & Kolář 2019b; King 2014; King et al. 2024a; King et al. 2024b*). In den folgenden Abschnitten werden die allgemeinen Funktionsweisen der wichtigsten Modelltypen, deren Einsatzgebiete sowie Vor- und Nachteile jeweils kurz erläutert. Tabelle 1 listet die wesentlichen Aspekte in einer Übersicht auf.

Für die Anwendung der meisten Methoden zur Modellierung der Behälterkorrosion (z. B. Massenbilanz, Massentransport, reaktiver Transport) ist es auch wichtig, die sich über den Bewertungszeitraum verändernden Umgebungsbedingungen zu modellieren. Auch hierzu existieren methodische Ansätze. Diese sind nicht Bestandteil dieses Berichtes.

Tabelle 1: Methodische Ansätze zur Modellierung der Korrosion von Endlagerbehältern aus Kupfer und Kohlenstoffstahl, basierend auf (King & Kolář 2019b; King et al. 2023; Abdelouas et al. 2022).

Methode	Anwendungsbeispiel (Material und Korrosionsmechanismus)	Prinzip	Bemerkungen/Einschätzung
Empirische Korrosionsrate (gleichmäßig oder Lochfraßwachstum) Empirische Lochfraß- und Rauhigkeitsfaktoren	1. Anaerobe Korrosion von Kohlenstoffstahl 2. Lochfraß an Kupfer und Kohlenstoffstahl	Extrapolation von Korrosionsraten oder Lochfraß- und Rauhigkeitsfaktoren aus Laborversuchen auf den Bewertungszeitraum	<ul style="list-style-type: none"> • Einfach anzuwenden und nachzuvollziehen • Limitierte Vertrauenswürdigkeit aufgrund fehlenden mechanistischen Verständnisses • Geht von konstanten Umgebungsbedingungen aus • Sehr konservativer Ansatz
Massenbilanz	<ul style="list-style-type: none"> • Aerobe Korrosion von Kupfer und Kohlenstoffstahl • Mikrobiell induzierte Korrosion 	Korrosionsreaktionen limitiert durch verfügbare Menge an Reaktanden (z. B. Sauerstoff, Sulfat, Kohlenstoff) in geschlossenem System	<ul style="list-style-type: none"> • Konservativer Ansatz aufgrund der Annahme, dass alle verfügbaren Reaktanden im geschlossenen System für Korrosionsreaktion umgesetzt werden
Massentransport	<ul style="list-style-type: none"> • Anaerobe Korrosion von Kupfer durch Sulfid 	Korrosionsreaktion bestimmt durch den Transport von Reaktanden (z. B. Sulfid) zur Behälteroberfläche	<ul style="list-style-type: none"> • Konservativer Ansatz aufgrund der Annahme, dass alle verfügbaren Reaktanden für Korrosionsreaktion umgesetzt werden
Reaktiver Transport	<ul style="list-style-type: none"> • Aerobe und anaerobe Korrosion von Kupfer („CCM“) • Sulfid-induzierte Korrosion von Kupfer („CSM“) • Anaerobe Korrosion von Kohlenstoffstahl („SCM“) 	Kopplung der verschiedensten chemischen, mikrobiologischen, Sorptions-/Desorptions-, Lösungs-/Fällungs-, Redox- und Massentransportprozesse, die sich an der Behälteroberfläche und im angrenzenden Buffer abspielen	<ul style="list-style-type: none"> • Mechanistische Herangehensweise. Stärkt Konfidenz in Langzeitsicherheitsanalysen. • Mathematisch komplex • Hohe Anforderungen an Input-Daten
Extremwertanalyse und Wahrscheinlichkeitsabschätzung (Statistische Methoden)	<ul style="list-style-type: none"> • Lokale Korrosion von Kupfer und Kohlenstoffstahl 	Statistische Vorhersage der tiefsten anzunehmenden lokalen Korrosion und der Wahrscheinlichkeit für verschiedene Korrosionstiefen	<ul style="list-style-type: none"> • Große Datenbasis für statistische Auswertung erforderlich • Limitiertes mechanistisches Verständnis
Vorhersage des elektrochemischen Korrosionspotentials (E_{corr})	<ul style="list-style-type: none"> • Lochfraßkorrosion von Kupfer 	Vergleich des zu erwartenden Korrosionspotentials an der Behälteroberfläche mit dem kritischen Potential für das Auftreten lokaler Korrosion	<ul style="list-style-type: none"> • Geeignet um Korrosionsanfälligkeit vorherzusagen • Ungeeignet um Ausmaß der Korrosion vorherzusagen
Argumentativer Ausschluss von Korrosionsmechanismen	<ul style="list-style-type: none"> • Spannungsrißkorrosion von Kupfer und Kohlenstoffstahl • Mikrobiell induzierte Korrosion • Strahlungsinduzierte Korrosion 	Auf Basis experimenteller Untersuchungen und dadurch gewonnenen Prozessverständnisses gezogene Schlussfolgerung, dass Mechanismus unter Endlagerbedingungen ausgeschlossen ist	<ul style="list-style-type: none"> • Beruht auf mechanistischen Argumenten

2.1 Empirische Korrosionsrate und empirische Lochfraß- und Rauigkeitsfaktoren

Bei diesem Ansatz nutzt man Korrosionsraten (bei einer gleichmäßig fortschreitenden Korrosion), sowie Lochfraß- und Rauigkeitsfaktoren (bei lokaler Korrosion), die in Labor- oder Feldversuchen empirisch bestimmt wurden und extrapoliert diese auf deutlich längere Zeitskalen. Dabei werden die empirischen Raten oder Faktoren über die Zeit meist als konstant angenommen (Johnson & King 2008; Abdelouas *et al.* 2022). Dies setzt voraus, dass auch die vorherrschenden Umgebungsbedingungen als konstant angenommen werden und keine sprunghafte Änderung des dominierenden Korrosionsmechanismus zu erwarten ist. In Labor- und Feldexperimenten zeigt sich jedoch in der Regel eine Abnahme der Korrosionsrate mit der Zeit, sodass dieser methodische Ansatz zur Vorhersage der Behälterkorrosion als inhärent konservativ angesehen wird (Abdelouas *et al.* 2022).

Ein verbreitetes Anwendungsgebiet ist die Nutzung einer empirischen anaeroben gleichmäßigen Korrosionsrate für die Vorhersage der Lebensdauer von Behältern aus Kohlenstoffstahl (Kursten *et al.* 2004; Müller & Tholen 2009).

Für die Beschreibung von lokalen Korrosionsphänomenen kommen oft so genannte empirische Lochfraßfaktoren („pitting factors“) zum Einsatz. Diese geben das Verhältnis von maximaler zu mittlerer Korrosionstiefe auf einer Oberfläche an. Dies kann sowohl aus Labor- und in-situ-Experimenten, als auch anhand von archäologischen Analoga bestimmt werden (Abdelouas *et al.* 2022). Ein Lochfraßfaktor von 1 entspricht einer gleichmäßigen Korrosion. In Sicherheitsuntersuchungen wird oft ein maximal zulässiger Lochfraßfaktor angegeben, z. B. 25, in frühen konservativen Ansätzen oder 5 in aktuelleren realitätsnäheren Betrachtungen (King *et al.* 2024b). Ein ähnlicher Ansatz wird mit sogenannten empirischen Rauigkeitsfaktoren verfolgt. Für aktiv korrodierende Materialien wie Kupfer und Kohlenstoffstahl ist die Beschreibung einer unebenen Oberfläche in der Regel treffender als die von diskretem Lochfraß (King *et al.* 2012).

In der Vergangenheit wurde häufig diskutiert, ob Modelle, die auf der Extrapolation von empirischen Korrosionsraten aus vergleichsweisen kurzen Labor- und Feldversuchen beruhen, dazu geeignet sind, die Korrosion über einen Zeitraum von bis zu 1 Million Jahren zu extrapolieren, oder ob dazu komplexe deterministische und mechanistische Modelle unerlässlich sind. Die mittlerweile verbreitete Meinung unter Experten ist, dass die Berechnungsmethode selbst von untergeordneter Bedeutung ist, solange sie von einem fundierten mechanistischen Verständnis unterfüttert ist (King *et al.* 2023). Somit finden auch empirisch basierte Methoden vielfach Eingang in Sicherheitsanalysen verschiedener Länder, z. B. zur Vorhersage der anaeroben gleichmäßigen Korrosion von Kohlenstoffstahl in Frankreich, Belgien, Schweiz, Japan, Großbritannien und Tschechien (Abdelouas *et al.* 2022).

2.2 Massenbilanz

Bei einer Vorhersage der Korrosion über eine Massenbilanz wird auf Basis der zu grunde liegenden Reaktionsgleichungen berechnet, in welchem Umfang die Korrosionsreaktion in Anbetracht der zur Verfügung stehenden Reaktanden (z. B. Sauerstoff, Sulfat, Kohlenstoff) in einem geschlossenen System stattfinden kann. Durch die begrenzte Verfügbarkeit der Reaktanden wird ein oberes Limit für die Korrosion definiert. Die Abschätzung ist insoweit konservativ, als dass eine vollständige Umsetzung der Reaktanden für die Korrosionsreaktion angenommen wird. Auf diese Weise kann beispielsweise der maximal mögliche Materialabtrag von der Behälteroberfläche abgeschätzt werden (King 2014).

Das prominenteste Anwendungsbeispiel ist die Korrosion von Kupfer und Kohlenstoffstahl durch Sauerstoff. In der aeroben Phase eines tiefengeologischen Endlagers findet aerobe Korrosion unter Verbrauch des im Endlager eingeschlossenen Restsauerstoffs statt. Sie kommt zum Erliegen, sobald der eingeschlossene Sauerstoff vollständig verbraucht ist. Wenn Volumen und Eigenschaften (z. B. Porosität) des Buffers und Verfüllmaterials sowie Dimensionierung der Behälter bekannt sind, lässt sich auf diese Weise eine maximale Korrosionstiefe bestimmen. Dieser Ansatz wurde unter anderem für die aerobe gleichmäßige Kupferkorrosion in den Entsorgungsprogrammen in Finnland (King et al. 2012), Schweden (SKB 2011a; SKB 2010) und Kanada (Hall et al. 2021) verwendet. Analog ist der Ansatz auf aerobe gleichmäßige Korrosion von Kohlenstoffstahl anwendbar (Diomidis 2014).

Neben der Korrosion durch Sauerstoff kann eine Massenbilanz auch bei weiteren Korrosionsmechanismen zur Abschätzung des maximalen Korrosionsfortschritts dienen. Limitierende Reaktanden können z. B. Sulfat, Nitrat oder Kohlenstoff sein, die vor allem bei mikrobiell induzierter Korrosion eine zentrale Rolle spielen.

2.3 Massentransport

Neben der Massenbilanzierung in einem geschlossenen System, kann der Korrosionsfortschritt auch in Abhängigkeit des Massentransports eines Reaktanden zur Behälteroberfläche modelliert werden. Dies ist vor allem für Korrosionsmechanismen sinnvoll, bei denen bekannt ist, dass die Korrosionsrate direkt abhängig von eben diesem Zustrom der Reaktanden ist. Dieser Modellansatz hat somit eine fundierte mechanistische Basis (Abdelouas et al. 2022; King 2014).

Wichtigstes Anwendungsfeld für diesen Ansatz ist die anaerobe Korrosion von Kupfer in einer Bentonitumgebung, wo die Korrosionsrate im Wesentlichen durch den Sulfidfluss bestimmt wird. Sulfid wird durch sulfatreduzierende Bakterien gebildet und durch die Bentonitmatrix diffusiv zur Behälteroberfläche transportiert. Transportprozesse im Bentonit sind gut untersucht und können daher mit guter Zuverlässigkeit vorhergesagt werden (King 2014). Auf dem Massentransport von Sulfid beruhende Modellierungen der Behälterkorrosion finden in fast allen

Entsorgungsprogrammen Anwendung (Abdelouas et al. 2022). Beispielhafte Studien sind (SKB 2011a; SKB 2010) aus Schweden und (Hung et al. 2017) aus Taiwan.

Ein anderer Anwendungsfall für eine Korrosionsmodellierung basierend auf Massentransport ist, wenn die Korrosionsreaktion durch den Abtransport von Korrosionsprodukten von der Behälteroberfläche limitiert wird (King 2014).

2.4 Reaktiver Transport

Für die gleichmäßige Korrosion von Kupfer und Kohlenstoffstahl wurden in den vergangenen Jahrzehnten äußerst komplexe mechanistische reaktive Transportmodelle entwickelt, die die elektrochemischen Korrosionsreaktionen auf der Oberfläche sowohl mit Massentransport als auch mit chemischen Reaktionen in der Umgebung (z. B. Lösung/Fällung, Sorption, Redoxreaktionen) koppeln (King 2014). Dadurch können sich verändernde Umgebungsbedingungen bei der Modellierung der Korrosion berücksichtigt werden. Die große Stärke dieser Modelle ist die mechanistische Basis und das hohe Maß an inhärentem Prozessverständnis, wodurch die Vertrauenswürdigkeit in Prognosen über große Zeitskalen gestärkt wird (King 2014).

Die große Komplexität dieser Modelle bringt aber auch Schwierigkeiten mit sich. Für vertrauenswürdige Vorhersagen bestehen hohe Anforderungen an die Qualität der Inputdaten (z. B. thermodynamische Daten zu Löslichkeiten oder Komplexierung). Zudem sind solche Modelle oft zu umfangreich, um in Langzeitsicherheitsanalysen des gesamten Endlagersystems numerisch Eingang zu finden. Für diese wird in der Regel auf einfachere Modelle zurückgegriffen. Die detaillierten reaktiven Transportmodelle werden dennoch auf kleineren Skalen unterstützend hinzugezogen um ein mechanistisches Verständnis zu demonstrieren und die Vertrauenswürdigkeit der abstrahierten Vorhersagen zu erhöhen (King et al. 2024a; King et al. 2024b).

Prominente Beispiele für komplexe mechanistische Korrosionsmodelle sind das „Copper Corrosion Model for Uniform Corrosion“ (CCM-UC) (King et al. 2008), das „Copper Sulphide Model“ (CSM, Abb. 2-1) (King et al. 2011; King & Kolář 2019a) und das „Steel Corrosion Model“ (SCM) (King et al. 2014). Die in die Modelle integrierten Reaktionen berücksichtigen die verschiedensten chemischen, mikrobiologischen, Sorptions-/Desorptions-, Lösungs-/Fällungs-, Redox- und Massentransportprozesse, die sich an der Behälteroberfläche und im angrenzenden Buffer abspielen.

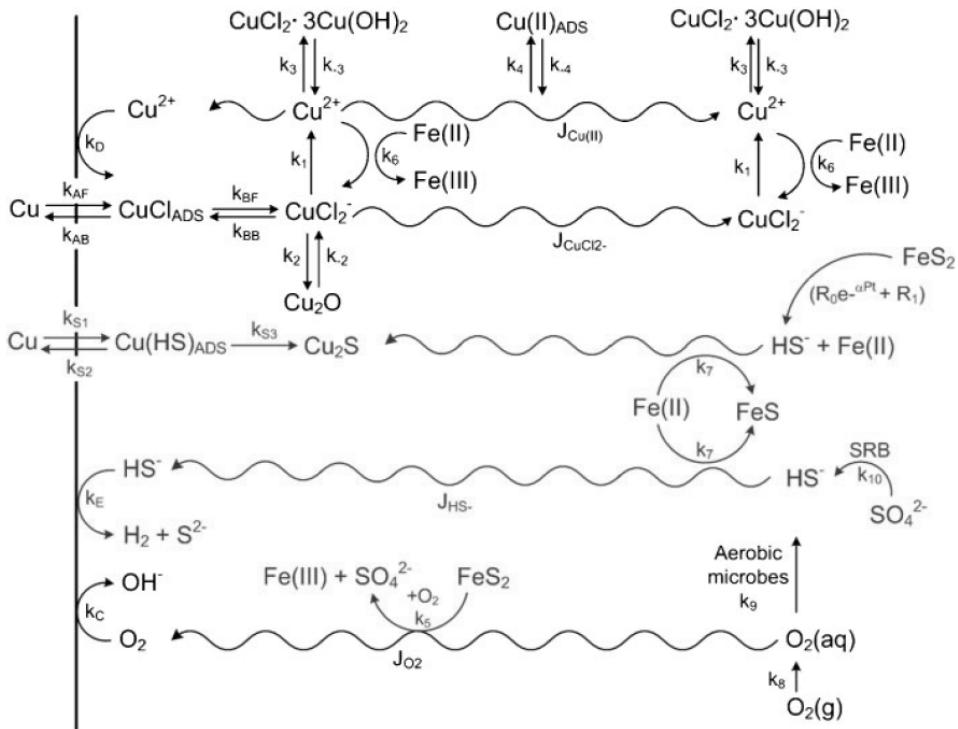


Abb. 2-1: Copper Sulphide Model (CSM) zur Modellierung der gleichmäßigen Korrosion von Kupfer in einer Bentonitumgebung unter Einwirkung von Sulfid (King et al. 2011) (Legende: k_n = Gleichgewichtskonstanten, J_x = Stofffluss).

2.5 Vorhersage des elektrochemischen Korrosionspotentials

Ein mechanistischer Ansatz zur Prognose des Auftretens von lokaler Korrosion ist die Betrachtung des elektrochemischen Korrosionspotentials an der Behälteroberfläche. Das Korrosionspotential muss einen bestimmten Schwellenwert überschreiten, damit die lokale Korrosion initiiert wird bzw. voranschreitet. Bei dieser Methode geht es also nicht darum, das Ausmaß einer a priori angenommenen lokalen Korrosion vorherzusagen, sondern um die Einschätzung, ob lokale Korrosion unter den zu erwartenden elektrochemischen Bedingungen überhaupt zu erwarten ist. Dadurch ist der Informationsgehalt dieses Ansatzes zwar limitiert, das Auftreten von Korrosion bei transienten Bedingungen kann bei guter Kenntnis der (zukünftigen) Umgebungsbedingungen sehr verlässlich vorhergesagt werden (King 2014; Abdelouas et al. 2022).

2.6 Statistische Methoden

Ein Ansatz zur Vorhersage von lokaler Korrosion ohne mechanistische Basis ist die Nutzung statistischer Methoden. Weit verbreitet ist vor allem die Extremwertanalyse, mit der basierend auf der statistischen Auswertung von experimentellen Daten eine maximale lokale Korrosionstiefe vorhergesagt werden kann. Dabei wird eine Extremwertverteilung, z. B. eine Gumbel-Verteilung (Gumbel 1958), an gemessenen Korrosionstiefen gefittet. Auf Basis dieser Funktion erfolgt eine

Extrapolation auf den Extremwert. Der Ansatz ist sehr konservativ, da Tiefen für Lochfraß vorhergesagt werden, die in realen Systemen aufgrund physikochemischer Beschränkungen in der Regel nicht erreicht werden können (Abdelouas et al. 2022).

Ein weiterer statistischer Ansatz ist die Wahrscheinlichkeitsabschätzung für lokale Korrosionstiefen. Briggs et al. (2021) haben ein probabilistisches Modell entwickelt, das basierend auf dem elektrochemischen Potential für den Zusammenbruch und die Wiederherstellung einer Passivschicht und der modellierten Entwicklung der elektrochemischen Umgebung an der Behälteroberfläche eine Tiefeverteilung für die lokale Korrosion an Kupferbehältern berechnet.

2.7 Argumentativer Ausschluss von Korrosionsmechanismen

Streng genommen kein Modellierungsansatz und dennoch eine wichtige und oft genutzte Herangehensweise bei der Vorhersage der Behälterintegrität und Behälterlebensdauer ist der argumentative Ausschluss von bestimmten Korrosionsmechanismen. Dabei wird geschlussfolgert, dass bestimmte Prozesse unter den im Endlager zu erwartenden Umgebungsbedingungen gänzlich ausgeschlossen oder sehr unwahrscheinlich sind. Ein solcher Ausschluss erfordert oft genauso viel (oder sogar mehr) mechanistisches Verständnis wie die Entwicklung eines Korrosionsmodells (King & Kolář 2019b) und kann sowohl auf quantitativen als auch auf qualitativen Untersuchungen basieren (King et al. 2023).

Ein prominentes Beispiel ist, dass in kompaktiertem Bentonit die mikrobielle Aktivität soweit unterdrückt wird, dass eine mikrobiell-induzierte Korrosion (z. B. Korrosion unter einem Biofilm) ausgeschlossen werden kann (King 2009).

Ein weiterer Anwendungsfall ist der Ausschluss von Spannungsrißkorrosion in den meisten Sicherheitsanalysen (z. B. Kanada, Finnland, Schweden), da die dafür notwendigen Voraussetzungen (oxidierende Bedingungen, Anwesenheit aggressiver Ionen und mechanische Beanspruchung) nicht dauerhaft gegeben sind (King et al. 2012; Posiva Oy 2013; Abdelouas et al. 2022).

2.8 Fazit

Zur Extrapolation der Korrosion von Endlagerbehältern existieren zahlreiche Modelle und Modellansätze, die für die potentiellen Behältermaterialien und zu erwartenden Korrosionsmechanismen geeignet sind und jeweils verschiedene Vor- und Nachteile mit sich bringen. Eine Bewertung des Langzeitkorrosionsverhaltens lässt sich aufgrund der Vielzahl an in Sicherheitsanalysen zu berücksichtigenden Prozessen nur mit einer Kombination mehrerer Methoden erreichen. Nicht zuletzt ist eine Anwendung verschiedener Methoden auch für ein und denselben Korrosionsmechanismus erforderlich. Bei der Berechnung der Behälterkorrosion bei der

Sicherheitsanalyse des gesamten Endlagersystems werden in der Regel durch Abstraktionen vereinfachte Modelle verwendet. Diese sollten durch die Entwicklung komplexerer mechanistischer Prozessmodelle und dem dabei gewonnenen Prozessverständnis plausibel sein.

Detaillierte Beschreibungen zu den verschiedenen methodischen Ansätzen, die von simplen empirischen oder statistischen Modellen, über Modelle auf Basis von Massenbilanzierung und Massentransport, bis hin zu komplexen reaktiven Transportmodellen reichen, finden sich in umfangreichen Review-Studien wie z. B. (King et al. 2024a).

Der wichtigste Schritt bei Rechtfertigung von Vorhersagen zur Behälterlebensdauer ist die Demonstration eines grundlegenden mechanistischen Verständnisses der Korrosionsprozesse. Unabhängig davon, ob die Vorhersagen in Sicherheitsanalysen auf empirischen Untersuchungen (z. B. Extrapolation von gemessenen Korrosionsraten) oder komplexen mechanistischen Modellen (z. B. reaktive Transportmodelle) beruhen, ist es von essentieller Bedeutung die zu Grunde liegenden Mechanismen erklären zu können. Dies ist auch die Voraussetzung für einen Ausschluss bzw. die Nicht-Berücksichtigung bestimmter Korrosionsmechanismen und eine belastbare Prognose von Korrosionstiefen über extrem lange Zeiträume von bis zu 1 Million Jahre.

Die konkrete Modellierung der Behälterkorrosion in einem potentiellen Endlager für hochradioaktive Abfälle in kristallinem Wirtsgestein in Deutschland ist zum jetzigen Zeitpunkt im Standortauswahlverfahren weder sinnvoll noch möglich, da die wesentlichen Randbedingungen, wie z. B. die hydrochemischen Bedingungen (Philipp & Weyand 2024) oder die Eigenschaften des Buffers und die Auswahl des Behälters noch nicht festgelegt oder bekannt sind. Aktivitäten zur Modellierung von Behälterkorrosion können sich zum aktuellen Zeitpunkt also nur auf generische Untersuchungen beschränken. Diese können aber dabei helfen, die Materialauswahl und das Behälterdesign einzuschränken.

Bei zukünftigen Modellierungen zur Korrosion und Behälterlebensdauer im Rahmen von Sicherheitsuntersuchungen kann auf eine umfangreiche Wissensbasis und Erfahrungswerte aus wissenschaftlichen Publikationen und Berichten von an dieser Thematik arbeitenden Organisationen zurückgegriffen werden. Die verschiedenen Ansätze wurden mittlerweile über viele Jahrzehnte weiterentwickelt und bieten einen guten Ausgangspunkt für weitere spezifische Betrachtungen im Rahmen der tiefen geologischen Endlagerung in Deutschland.

3 Vorschlag zur Berechnung des Austrags von Radionukliden bei Teilausfall der (geo-)technischen Barrieren

3.1 Einleitung

Modelle und Annahmen für eine rechnerische Sicherheitsanalyse von Endlagersystemen beruhen in aller Regel auf einer Szenarienentwicklung (Kuhlman et al. 2024; OECD-NEA 2016; EndSiUntV 2020). Eine Langzeitsicherheitsanalyse umfasst daher:

1. generische geologische Standortmodelle
2. Einlagerungskonzepte mit Verfüll- und Verschlusskonzepten basierend auf den geologischen Modellen
3. Identifizierung und Beschreibung der Entwicklung des Endlagersystems (Szenarienentwicklung)
4. Anwendung von Modellen zur rechnerischen Sicherheitsanalyse

Die Szenarienentwicklung wiederum greift auf Eigenschaften, Ereignisse und Prozesse (im Englischen: FEP = *Features, Events and Processes*) für Endlagersysteme zurück, die in FEP-Datenbanken geführt werden (OECD-NEA 2019; RWMC 2024). Diese Datenbanken können für die spezifischen Bedingungen eines generischen oder realen Standorts angepasst werden. Das CHRISTA-II-Projekt stellte beispielsweise einen FEP-Katalog für Kristallingestein zusammen (Jobmann et al. 2021).

Trotz einer detaillierten Szenarienentwicklung nutzen die Modelle für rechnerische Sicherheitsanalysen oft sehr vereinfachte Annahmen für den Ausfall der (geo-)technischen Barrieren (siehe Kapitel 2). Dabei wird die Zeitdauer für den vollständigen Einschluss der Radionuklide durch Endlagerbehälter entweder vergleichsweise gering angenommen (Müller & Tholen 2009), wenn der sichere Einschluss durch das Wirtsgestein gewährleistet werden sollte oder es wird ein vollständiger Ausfall der technischen Behälterbarriere mit anschließendem, direktem Übergang der Radionuklide durch die Bentonitbarriere in das Wirtsgestein angenommen. Modellrechnungen zur Radionuklidfreisetzung aus einem "technisch auf Dichtheit ausgelegten Behälter" werden nicht als sinnvoll angesehen werden (Wolf et al. 2021) und ein Totalausfall eines Behälters nach 100.000 Jahren wird angenommen. Die rechnerische Konsequenzenanalyse erfolgt dann nur mit Annahmen zum Radionuklidtransport im kristallinen Wirtsgestein.

Im Folgenden werden die (geo-)technischen Barrieren eines hypothetischen Endlagers für eine rechnerische Analyse des Austrags eines Radionuklidinventars in

das angrenzende Wirtsgestein abstrakt betrachtet. Weitere Annahmen zur Ausbreitung von Radionukliden im (kristallinen) Wirtsgestein werden nicht getroffen.

Der hier vorgestellte rechnerische Ansatz zur Modellierung des Austrags eines Radionuklidinventars geht von der Annahme aus, dass die (geo-)technischen Barrieren auch nach einem Ausfall noch zu einer Teilrückhaltung von Radionukliden beitragen können.

Der rechnerische Ansatz bildet die realen Prozesse stark vereinfacht ab. Dies wird aber als ausreichend angesehen, um die prinzipielle Vorgehensweise eines rechnerischen Ansatzes zu testen und eine Machbarkeit aufzuzeigen. Der Ansatz ist nicht dafür geeignet, einen Austrag des Radionuklidinventars realitätsnah zu quantifizieren oder zu extrapoliieren.

3.2 Methodischer Ansatz und Parameter

Es wird der Teil eines Endlagerkonzepts betrachtet, der sich für den Einschluss der radioaktiven Abfälle auf die technischen und geotechnischen Barrieren abstützt, da diese nach den Kriterien der Endlagersicherheitsanforderungsverordnung (EndlSiAnfV 2020) bewertet werden könnten. Der potentielle Einlagerungsbereich, der sich ca. 600 m bis max. 1.500 m unter Geländeoberkante befinden soll (BGE 2020b), und das umgebende kristalline Wirtsgestein spielen für diese Be- trachtung keine Rolle.

Ohne die Wahrscheinlichkeit im Sinne einer Szenarienentwicklung zu betrachten wird hypothetisch untersucht, wie ein Austrag des Radionuklidinventars bei einem unterstellten Integritätsverlust bzw. Veränderung der Eigenschaften verschiedener (geo-)technischer Barrieren (Pellets, Brennstabumschließungen aus Zirkalloy, Behälter, Bentonit) ermittelt werden könnte.

Als Integritätsverlust wird eine Beeinträchtigung des Einschlussvermögens der (geo-)technischen Barrieren verstanden. Es wird nicht der vollständige Ausfall bzw. Wegfall aller oder einzelner Barrieren unterstellt. Dies deckt sich mit der For- derung nach (EndlSiAnfV 2020) „*Hinsichtlich der Integrität des Systems der wesentlichen technischen und geotechnischen Barrieren ist zu prüfen und darzustellen, dass die Sicherheitsfunktionen der wesentlichen technischen und geotechnischen Barrieren nicht erheblich beeinträchtigt werden*“.

Es kann angenommen werden, dass z. B. eine Behälterwandung oder dessen Korrosionsprodukte noch eine verbleibende, wenn auch mit der Zeit abnehmende, Restwirksamkeit haben. Den (geo-)technischen Barrieren kann somit weiterhin eine Rückhaltewirkung (Sicherheitsfunktion) für Radionuklidinventar zugeschrie- ben, die oft in rechnerischen Modellierungen eines Radionuklidaustrags nicht be- rücksichtigt wurde (Wolf et al. 2021). Diese Rückhaltewirkung wird lediglich verbal- argumentativ berücksichtigt.

Bisher liegen noch keine endgültigen Endlagerkonzepte mit (geo-)technischen Barrieren für kristalline Wirtsgesteine in Deutschland vor (Becker *et al.* 2020b). Oft wird für kristallines Wirtsgestein Bezug genommen auf das schwedische und finnische Behälterkonzept KBS-3 mit einem kupferummantelten Gusseisenbehälter. Die im Pellet bzw. im Brennstab vorliegenden Radionuklide sind von der Zirkalloyhülle (*Fuel rod*) als Umschließung, einem Innenbehälter (*Canister insert*), dem Behälter (*Container overpack*) und Bentonit als (geo-)technische Barrieren umgeben (Abb. 3-1). Erst bei einem Ausfall aller dieser Barrieren erfolgt ein Austrag von Radionukliden in das Wirtsgestein und potentiell weiterem Transport in die Biosphäre.

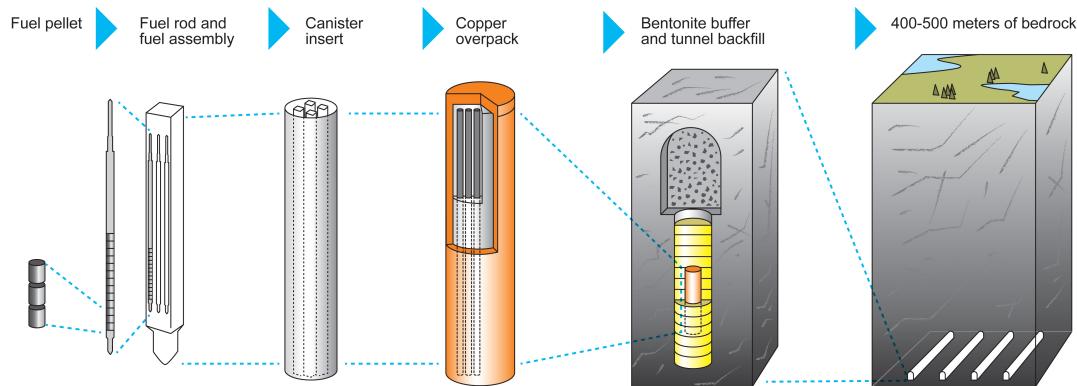


Abb. 3-1: Multi-Barrierensystem im KBS-3-Konzept (Posiva Oy 2020)

In Deutschland hat man in der Vergangenheit oft den POLLUX®-Behälter als Planungsgrundlage für Endlagerkonzepte herangezogen (Bollingerfehr *et al.* 2011; Bertrams *et al.* 2017). Herold *et al.* (2020) zog diesen für ein generisches Endlagerkonzept im kristallinen Wirtsgestein in Betracht, da dieser Behälter einen äußeren Behälter als Abschirm- und Korrosionsschutz und einen inneren Behälter für die mechanische Stabilität vorsieht (Abb. 3-2). Der Behälter selbst besteht aus einem äußeren Abschirmbehälter aus Gusseisen mit Kugelgraphit, einem darin befindlichen Innenbehälter aus Schmiedestahl mit Einbauten für die Aufnahme der Brennstäbe. Die dichte Umschließung der Brennstäbe wird durch den Innenbehälter, einen verschraubten Primärdeckel und einen darüber liegenden, eingeschweißten Sekundärdeckel gewährleistet. Der Abschirmbehälter wird mit einem eingeschraubten Deckel verschlossen. In der Behälterwandung befinden sich Neutronenmoderatoren.

Der POLLUX®-Behälter wird exemplarisch den nachfolgenden Überlegungen zu grunde gelegt.

Schematisch können die (geo-)technischen Barrieren auch als stilisierte Quadern dargestellt werden (Abb. 3-3). Der Transport eines Radionuklides vom Pellet bis in das kristalline Wirtsgestein kann nur durch Defekte der jeweiligen Barrieren erfolgen.

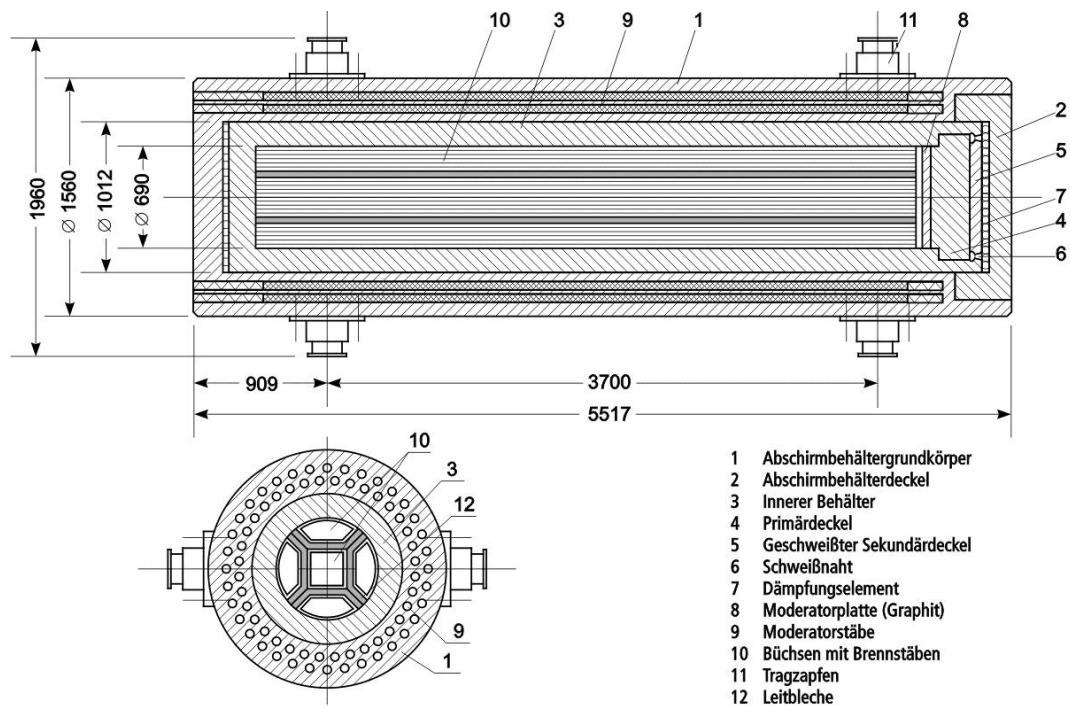


Abb. 3-2: POLLUX®-9 Behälter mit äußerem Abschirmbehälter (1) und innerem Behälter (3) (Bertrams et al. 2017)

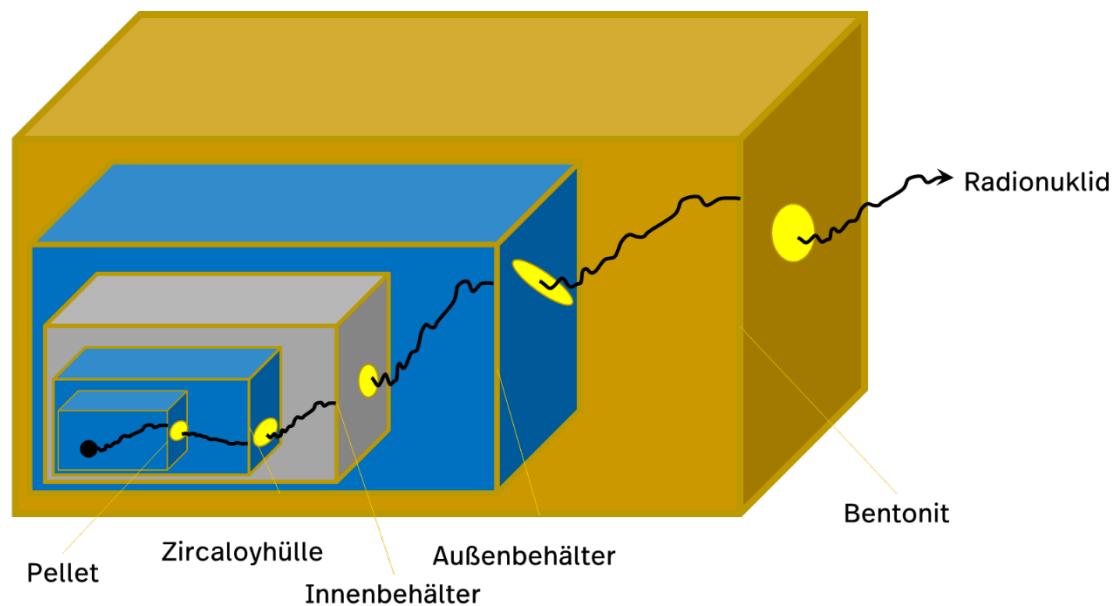


Abb. 3-3: (Geo-)technisches Multi-Barrikenkonzept als stilisierte Quader (nicht maßstabsgetreu) mit Defekten (gelb)

Um die Teil- oder Restwirksamkeit der Barrieren (Pellet, Zirkalloyhülle, Innen-/Außenbehälter, Bentonit) über die Zeit zu beschreiben, werden mathematische Funktionen unterstellt. Diese sollen eine Auflösung des Radionuklidinventars aus dem Pellet, eine Korrelation des Austrags mit den Defekten der Umschließungen (fehlende Wandungsfläche der Zirkalloyhüllen und des Außenbehälters) sowie Diffusions- und Sorptionsprozesse in Korrosionsprodukten des Innenbehälters und im Bentonit beschreiben.

Der Transport der Radionuklide durch Korrosionsprodukte und Bentonit erfolgt aufgrund eines Konzentrationsgradienten diffusiv. Sorption findet während der Diffusion statt. Ein advektiver Transport wird innerhalb der (geo-)technischen Barrieren nicht betrachtet.

Die Ursachen für den Zeitpunkt des Auftretens und für das Ausmaß des Integritätsverlusts an Wandungsflächen, z. B. durch Korrosionsprozesse, mechanische Lasten oder aufgrund anderer technischer Defekte oder Einwirkungen, sind nicht definiert. Die mathematischen Funktionen für Zeitpunkt und Ausmaß des Integritätsverlusts der Wandungen der Zirkalloyhülle der Brennstäbe bzw. des Außenbehälters sind daher unabhängig voneinander.

Der Austrag des Radionuklidinventars in das umgebende Kristallingestein ergibt sich durch eine lineare Kombination der (hypothetischen) zeitabhängigen Funktionen.

Weitere folgende Annahmen und Randbedingungen liegen der rechnerischen Modellierung der Barrierenwirksamkeit (d. h. Pellet, Zirkalloyhülle, Innen-/Außenbehälter und Bentonit) zugrunde:

- Radionuklide in den hochradioaktiven Abfällen liegen in zwei wesentlichen Teilbereichen vor: in der Brennstoffmatrix (Pellet) gebunden und als leicht mobilisierbar z.B. gasförmig in den Hohlräumen der Brennstäbe oder adsorbiert. Das als sofort (d.h. innerhalb von Tagen bis Monaten) aus dem Pellet/Brennstab freisetzbar angenommene Radionuklidinventar wird als *Instant Release Fraction* (IRF) bezeichnet (Serrano-Purroy et al. 2012). Das übrige Radionuklidinventar unterliegt weiteren Auflösungsprozessen. Die Aktivierungsprodukte in den Zirkalloyhüllen sind nicht gesondert betrachtet.
- Die element- bzw. verbindungsspezifischen Löslichkeiten der Radionuklide des Inventars sind nicht berücksichtigt.
- Die Mobilisierung/Freisetzung des Radionuklidinventars beginnt, wenn Defekte in den Zirkalloyhüllen und Außenbehältern auftreten. Der weitere Austrag korreliert mit der Defektgröße.
- Die Defekte der Zirkalloyhülle und Außenbehälter treten unabhängig voneinander auf. Es ist keine Korrelation hergestellt. Wechselwirkungen, dass beispielsweise der Verlust der Dichtigkeit der Behälteraußenwandungen den

Verlust der Dichtigkeit der Zirkalloyhüllen beschleunigen könnte, sind daher nicht berücksichtigt.

- Die Auffüllung der Poren- bzw. Hohlräume der Brennstäbe und der Behälter mit Lösung erfolgt nach dem Auftreten eines Defekts sofort (instantan) und ist vollständig. Der Bentonit wird von Anfang an als vollständig gesättigt angenommen.
- Der Transport von Radionukliden erfolgt durch Diffusion in den Korrosionsprodukten der Innenbehälter sowie im Bentonit aufgrund eines Konzentrationsgradienten.
- Für die Diffusionslänge im Korrosionsprodukt des Innenbehälter und im Bentonit wird die jeweilige Dicke auf Basis des POLLUX-Behälters angenommen.
- Die Sorption von Radionukliden an Korrosionsprodukten und im Bentonit wird mit der Anwendung einer scheinbaren Diffusionskonstante berücksichtigt (siehe Abschnitt 3.2.5).
- Der Rand des Modells ist die äußere Grenze des Bentonits zum kristallinen Wirtsgestein. Die Konzentration der Radionuklide dort wird als null angenommen.
- Wirkungen von großräumigen Prozessen, wie Hebung oder Senkung des Gebirges, Scherung der Behälter und Abfälle, Temperaturänderungen, Grundwasserfluss, Grundwasserzusammensetzung, werden im Modell nicht abgebildet.
- Die Funktionen für die Pelletauflösung, für die Beschreibung des Integritätsverlusts der Umschließungen, des Radionuklidtransports sowie die Parameterwerte sind hypothetisch. Da viele (zufällige) Prozesse näherungsweise mit einer Normalverteilung, siehe z. B. (Schlottmann & Schnegas 2016), abgebildet werden können, wurden e-Funktionen gewählt.
- Der radioaktive Zerfall bzw. der Aufbau von Tochternukliden werden im vorgeschlagenen Modellierungsansatz nicht berücksichtigt.

Die realen Prozesse sind mit diesen Annahmen stark vereinfacht. Sie werden aber als ausreichend angesehen, um die prinzipielle Vorgehensweise des rechnerischen Ansatzes zu testen und eine Machbarkeit aufzuzeigen. Der Ansatz ist nicht dafür geeignet, einen Austrag des Radionuklidinventars realitätsnah zu quantifizieren oder zu extrapoliieren.

3.2.1 Hochradioaktiver Abfall

Radionuklidinventar

Bei den hochradioaktiven Abfällen handelt es sich um verglaste Abfälle, abgebrannte Brennelemente sowie Abfälle aus Versuchs- und Forschungsreaktoren. Die Abfälle unterliegen aufgrund ihrer unterschiedlichen materialspezifischen Eigenschaften verschiedenen Korrosionsprozessen unter Freisetzung der Radionuklide. Dies wurde zusammenfassend von Kienzler *et al.* (2012) beschrieben.

Grambow (1998) und Grambow & Müller (2001) wenden eine Funktion für Grenzflächenreaktionen an, die auch die Abhängigkeiten von Diffusionsprozessen und Konzentrationen auf einer kleinräumigen Skala berücksichtigen soll (Formel 3-1), um die Freisetzung von Radionukliden aus verglasten Abfällen anhand von experimentellen Daten zu beschreiben.

$$r_{glass} = \frac{d\xi_r}{s_r dt} = k_r \prod_i a_i^{-\nu_i} \left[1 - \exp \left(-\frac{A_r}{\sigma_r R T} \right) \right] \quad (3-1)$$

A_r = Reaktionstriebkraft, σ_r = Stöchiometriekoeffizient aktivierter Komplex zu Feststoff, R = universelle Gaskonstante, T = Absolute Temperatur, a_i = Aktivität, ν_i = Stöchiometriekoeffizient, k_r = Reaktionskonstante, s_r = Oberfläche, ξ_r = Reaktionsfortschritt, r = Auflösungsreaktion, $i = i$. Spezies

Johnson & McGinnes (2002) schlugen vor für Sicherheitsanalysen bei abgebrannten Brennelementen einen sofort freisetzbaren Anteil des Radionuklidinventars (*Instant Release Fraction*, IRF) sowie eine langsamere, kontinuierliche Freisetzung aus den Pellets in eine Lösung anzunehmen. Die langsame, kontinuierliche Freisetzung aus den Pellets wird als *Fraction of Inventory in the Aqueous Phase* (FIAP) angegeben (Kienzler *et al.* 2012; Kienzler *et al.* 2013; Kienzler *et al.* 2017). Die Geschwindigkeit des Auflösungsprozesses wird als FIAP/Tag definiert. Diese Rate wird bei Bedarf auf die (Ober-)Fläche des Pellet normalisiert. Obwohl die Auflösung der Pellets auch von der Sättigung der Lösung und anderen Effekten (z. B. Wasserstoffpartialdruck) beeinflusst wird, sind diese Effekte nach aktuellem Kenntnistanstand in Sicherheitsanalysen bisher nicht quantitativ berücksichtigt (Larue *et al.* 2013), (SKB 2011b, S. 731).

Die Freisetzung des Radionuklidinventars aus anderen hochradioaktiven Abfällen, z.B. Brennelementen aus Versuchs- und Forschungsreaktoren in einem Endlager ist bisher kaum bzw. nur mit unzureichenden Ansätzen beschrieben worden (Kienzler *et al.* 2013; Neumann *et al.* 2018) und werden deshalb hier nicht in Betracht gezogen.

Für den nachfolgenden Modellierungsansatz wird das Radionuklidinventar R im radioaktiven Abfall (hier als Pellet angenommen) auf $R_0^{Pellet} = 1$ (dimensionslos, 0 für initial) gesetzt. Der Anteil der *Instant Release Fraction* wird pauschal als $R_{IRF}^{Pellet} = 0.2$ angenommen (Johnson *et al.* 2005), obwohl die tatsächliche IRF sehr stark von der jeweiligen Radionuklidspezies abhängig ist und auf das gesamte

Radionuklidinventar deutlich geringer ist. Die weitere Freisetzung aus dem Pellet mit der Zeit erfolgt im Modell kongruent mit der Auflösung des Brennstoffs (Valls et al. 2014). Der mit der Zeit freigesetzte Anteil des Radionuklidinventars aus dem Pellet, R_t^{Pellet} , wird mit einer hypothetischen e-Funktion und dem Parameter λ_1 pauschal beschrieben (Formel 3-2).

$$R_t^{Pellet} = R_0^{Pellet} * (0,2 + 0,8 * (1 - e^{-\lambda_1 t})) \quad (3-2)$$

Für eine fast vollständige Freisetzung nach 100.000 Jahren wird ein fiktiver Wert für $\lambda_1 = 5 \cdot 10^{-5}$ gewählt. Zusammenhänge mit anderen Prozessen sind in dieser Funktion nicht berücksichtigt.

3.2.2 Zirkalloyhülle

Der Korrosionsprozess und der Ausfall der Zirkalloyhülle als Umschließung der Pellets ist vorwiegend abhängig von geochemischen Bedingungen wie z. B. Lösungszusammensetzung oder Wasserstoffpartialdruck (Fraker 1989) und Vorschädigungen aus dem Reaktorbetrieb, Transport- und Zwischenlagerungsphasen sowie gegebenenfalls Konditionierungsvorgängen. Lediglich die Freisetzung von ^{14}C aus Zirkalloy wurde in einigen Studien näher untersucht (Johnson & Schwyn 2008). Die einschließende Wirkung der Zirkalloyhülle wurde bisher nicht in Sicherheitsanalysen berücksichtigt und lediglich verbal-argumentativ als Sicherheitsreserve bezeichnet (NWMO 2018), (SKB 2011b, S. 731).

Letztlich ermöglicht erst ein Defekt der Zirkalloyhülle einen Austrag des Radionuklidinventars in den Innenbehälter (Abb. 3-4). Der Austrag beginnt mit dem Zeitpunkt des Auftretens des ersten Defekts und ist proportional zum Anteil der fehlenden bzw. ausgefallenen Wandungsfläche der Zirkalloyhülle.

Die Gesamtanzahl der Zirkalloyhüllen wird auf $N_0^{Zircaloy} = 1$ normiert. Der Anteil der defekten Zirkalloyhüllen, $N_t^{Zircaloy}$, wird mit einer hypothetischen e-Funktion und mit dem Parameter λ_2 ermittelt (Formel 3-3). Der gewählte Parameterwert $\lambda_2 = 0,0002$ bedeutet, dass fast alle Zirkalloyhüllen nach ca. 50.000 Jahren defekt sind. Korrosionsraten aufgrund von Passivität lassen sogar wesentlich längere Standzeiten erwarten (Shoesmith & Zagidulin 2011; Christian 1999).

$$N_t^{Zircaloy} = N_0^{Zircaloy} * (1 - e^{-\lambda_2 t}) \quad (3-3)$$

Die Gesamtfläche der Wandung der Zirkalloyhüllen ist auf $F_0^{Zircaloy} = 1$ normiert. Die ausgefallene Fläche der Zirkalloyhülle zum Zeitpunkt t , $F_t^{Zircaloy}$, aufgrund eines Defektwachstums wird mit einer hypothetischen e-Funktion ermittelt (Formel 3-4). Dabei wird angenommen, dass der ausgetragene Anteil der Radionuklide mit dieser Fläche korreliert. Der gewählte Parameterwert $\lambda_3 = 0,0001$ bedeutet den fast

vollständigen Verlust der Zirkalloyhüllenfläche nach 100.000 Jahren (Shoemith & Zagidulin 2011).

$$F_t^{\text{Zircaloy}} = F_0^{\text{Zircaloy}} * (1 - e^{-\lambda_3 t}) \quad (3-4)$$



Abb. 3-4: Brennstab mit Pellets und Anschnitt der Zirkalloyhülle (The Board of Trustees of the Science Museum 2025)

3.2.3 Innen-/Außenbehälter

Kohlenstoffstahl und Gusseisen sind gängige Behältermaterialien, deren Korrosionsverhalten für verschiedene Endlagerbedingungen gut untersucht ist (siehe „Behälterkorrosion und Hydrogeochemie im Kontext der Endlagerung im Kristallinestein in Deutschland“ (Philipp & Weyand 2024) und Kapitel 2 dieses Berichts). Die wichtigsten Prozesse sind die flächige Korrosion sowie die Lochkorrosion, die zum Verlust der Behälterintegrität unter Bildung von Korrosionsprodukten führen. Korrosionsprodukte weisen Eigenschaften auf, die zu einem Rückhalt von Radionukliden durch Sorption beitragen können (King 2014).

Beispielhaft werden die Angaben eines POLLUX®-Behälter zugrunde gelegt (Abb. 3-2). Der Innenbehälter hat einer Wandstärke $d_{\text{innen}} = 0,16 \text{ m}$ und der Außenbehälter eine Wandstärke $d_{\text{außen}} = 0,27 \text{ m}$ (Bertrams et al. 2017). Der Innenbehälter aus Gusseisen wird im Modellansatz instantan als vollständig korrodiert angenommen. Die Diffusion eines Radionuklids durch den korrodierten Innenbehälter wird durch die Diffusions- und Sorptionseigenschaften des Korrosionsprodukts bestimmt (siehe weiter unten). Eine weitere Einschlusswirkung des Innenbehälters wird nicht angenommen.

Erst ein Defekt des Außenbehälters ermöglicht den weiteren Austrag des Radionuklidinventars in den umgebenden Bentonit. Der Austrag beginnt mit dem Zeitpunkt des Auftretens eines Defekts und der Anteil am Radionuklidinventar korreliert mit der fehlenden bzw. ausgefallenen Wandungsfläche des Außenbehälters.

Die Gesamtanzahl der Behälter ist auf $N_0^{\text{Behälter}} = 1$ normiert. Der Anteil der defekten Außenbehälter zum Zeitpunkt t , $N_t^{\text{Außenbehälter}}$, wird mit einer zeitabhängigen e-Funktion beschrieben (Formel 3-5). Der gewählte Parameterwert $\lambda_4 = 0,001$ bedeutet, dass fast alle Außenbehälter nach ca. 10.000 Jahren als defekt angenommen werden. Entsprechende Annahmen in dieser Größenordnung sind üblich (Christian 1999; King 2017).

$$N_t^{\text{Außenbehälter}} = N_0^{\text{Behälter}} * (1 - e^{-\lambda_4 t}) \quad (3-5)$$

Die Wandungsfläche W der Außenbehälter ist auf $W_0^{\text{Außenbehälter}} = 1$ normiert. Die fehlende bzw. ausgefallene Wandungsfläche $W_t^{\text{Außenbehälter}}$ aufgrund des Defektwachstums wird hypothetisch mit einer e-Funktion ermittelt (Formel 3-6). Der gewählte Parameterwert $\lambda_5 = 0,0005$ bedeutet den fast vollständigen Verlust der Wandungsfläche nach 20.000 Jahren. Der Austrag des Radionuklidinventars aus dem Behälter ist mit der ausgefallenen Wandungsfläche korreliert.

$$W_t^{\text{Außenbehälter}} = W_0^{\text{Außenbehälter}} * (1 - e^{-\lambda_5 t}) \quad (3-6)$$

3.2.4 Lösungskonzentrationen

Die tatsächliche Auflösungskinetik und Lösungskonzentration C des Radionuklidinventars ist abhängig von den physikochemischen Bedingungen, der Speziationen und der Löslichkeit der jeweiligen Radionuklide im Gleichgewicht sowie vom verfügbaren Lösungsvolumen. Da diese Angaben nicht bekannt sind, wird das verfügbare Lösungsvolumen V im Innenbehälter ($V_{\text{Innenbehälter}}$) und zwischen Innen- und Außenbehälter ($V_{\text{Außenbehälter}}$) jeweils auf 1 normiert. Die Speziation, tatsächliche Löslichkeit oder physikochemische Bedingungen werden vernachlässigt.

Die normierte Lösungskonzentration z. B. im Innenbehälter ergibt sich somit aus der Auflösungsrate R_t^{Pellet} , dem Anteil der defekten Zirkalloyhüllen und der fehlenden Zirkalloyfläche (Formeln 3-4, 3-5, 3-6) nach Formel 3-7.

$$C_t^{\text{Innenbehälter}} = R_t = R_t^{\text{Pellet}} * N_t^{\text{Zircaloy}} * F_t^{\text{Zircaloy}} \quad (3-7)$$

Die initialen Lösungskonzentrationen $C_0^{\text{Innenbehälter}}$ und $C_0^{\text{Aussenbehälter}}$ sind null. Die normierte Lösungskonzentration kann maximal 1 werden. Die Lösungskonzentration außerhalb des Bentonits (kristallines Wirtsgestein) bleibt als Randbedingung ebenfalls null.

3.2.5 Diffusion (scheinbare)

Der Transport eines Radionuklids im Korrosionsprodukt des Innenbehälters zum Außenbehälter sowie in der umgebenden Bentonitbarriere erfolgt durch Diffusion aufgrund eines Konzentrationsgradienten. Dies wird nach dem Fick'schen Gesetz mit einem Diffusionskoeffizienten beschrieben (Formel 3-8).

Um die Diffusion mit (linearer) Sorption eines Radionuklids durch die Korrosionsprodukte des Innenbehälters und an Mineralphasen im Bentonit zu beschreiben, wird ein scheinbarer Diffusionskoeffizient verwendet. Ein Konzentrationsgradient wird somit für den korrodierten Innenbehälter und den Bentonit ermittelt. Die weiteren Parameter (Porosität, Konstriktivität, Tortuosität), die in einen Diffusionskoeffizienten eingehen, werden nicht spezifiziert oder hergeleitet, da der Wert für den scheinbaren Diffusionskoeffizienten in einer Größenordnung ($10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$) gewählt wird, die für einige Radionuklide realitätsnah ist.

$$\frac{dc}{dt} = D \frac{d^2 c}{dx^2}, D_e = \frac{\varepsilon_t \delta}{\tau} D, D_\alpha = \frac{D_e}{1 + \frac{K_d \rho}{\epsilon}} \quad (3-8)$$

D = Diffusionskoeffizient, D_e = effektiver Diffusionskoeffizient, D_α = scheinbarer Diffusionskoeffizient, c = Konzentration, t = Zeit, x = Diffusionsstrecke, ε_t = Porosität für Transport, δ = Konstriktivität, τ = Tortuosität, K_d = linearer Sorptionskoeffizient, ρ = Rohdichte, ϵ = Porosität

Der Radionuklidstrom wird als proportional zur fehlenden bzw. ausgefallenen Fläche der Zirkalloyhülle bzw. Wandung der Außenbehälter (Flächen A in Abb. 3-5) angenommen, anhand der Diffusionslänge d im korrodierten Innenbehälter und im Bentonit (Abb. 3-5) berechnet.

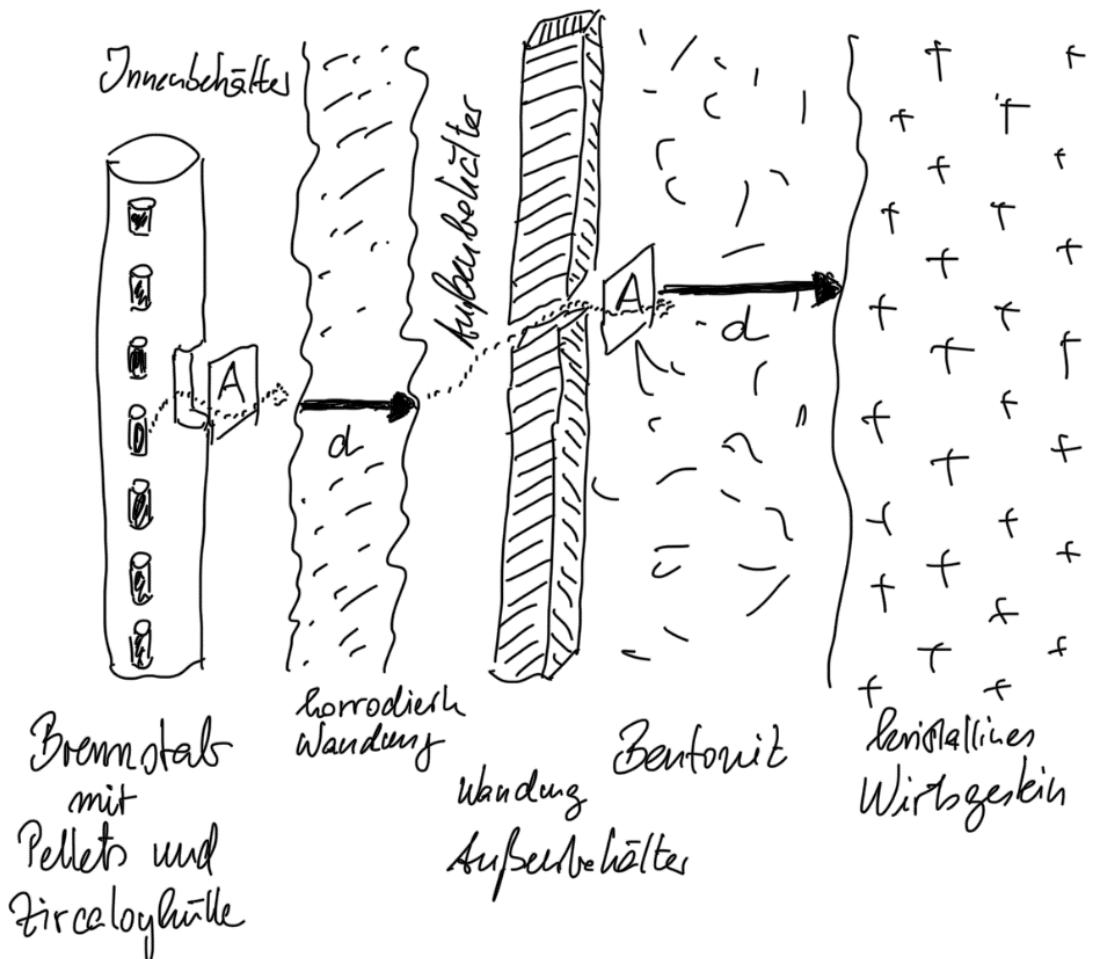


Abb. 3-5: Austrag des Radionuklidinventar durch Zirkalloyhülle und Wandung des Außenbehälters sowie Diffusion mit Sorption im korrodierten Innenbehälter und Bentonit

Korrodiertes Innenbehälter

Während der Diffusion durch die Korrosionsprodukte (Magnetit, Hämatit, usw.) der Wandung des Innenbehälters findet Sorption statt. Der Radionuklidtransport wird gemäß dem Fick'schen Gesetz mit dem scheinbaren Diffusionskoeffizienten ermittelt (Formel 3-9).

$$R_t^{\text{Innenbehälter}} = D_a * \frac{(C_t^{\text{Innenbehälter}} - C_t^{\text{Außenbehälter}})}{d^{\text{Innenbehälter}}} * t \quad (3-9)$$

D_a = scheinbarer Diffusionskoeffizient, C = Konzentration, t = Zeit,
 d = Diffusionsstrecke in korrodiertener Wandung des Innenbehälters (0,16 m)

Der scheinbare Diffusionskoeffizient wird als $D_a = 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ angenommen. Experimentelle Untersuchung hierzu weisen sogar unter Strahlungseinfluss auf geringere Werte Hämatit hin (Yano et al. 2022). Magnetit als Bestandteil der Korrosionsprodukte ist als starkes Adsorbens für Radionuklide bekannt (Husnain et al. 2018). Der tatsächliche scheinbare Diffusionskoeffizient ist nuklidspezifisch und unter anderem abhängig von Temperatur, pH, Porosität, Speziation sowie Sorption an verfügbaren Oberflächen (Ma et al. 2019).

Die Stärke des Innenbehälters von 0,16 m ist die kürzeste zu erwartende Diffusionsdistanz eines korrodierten Innenbehälters in einem POLLUX-Behälter.

Bentonit

Bentonit bzw. tonbasiertes Material wird in den meisten Endlagerkonzepten im kristallinen Wirtsgestein als geotechnische Barriere verwendet. Der Bentonit soll einerseits durch Quellwirkung gegen einen Lösungszutritt abdichten und so den Transport von Lösungen zu bzw. von den Behältern minimieren. Der Transport von Lösung bzw. Ionen findet diffusiv abhängig von der Porosität statt, wenn die Barriere nicht durch einen Grundwasserfluss erodiert wird. Die Tonminerale bewirken aufgrund von Sorption eine Rückhaltung der Radionuklide.

Der Radionuklidtransport aufgrund von Diffusion von der Wandung des Außenbehälters durch den Bentonit bis zur Grenze des kristallinen Wirtsgesteins wird gemäß dem Fick'schen Gesetz ermittelt (Formel 3-10).

$$R_t^{\text{Wirtsgestein}} = D_a * \frac{(C_t^{\text{Außenbehälter}} - C_0^{\text{Wirtsgestein}})}{d^{\text{Bentonit}}} * t \quad (3-10)$$

D_a = scheinbarer Diffusionskoeffizient, C = Konzentration, t = Zeit, d = Diffusionsstrecke im Bentonit (0,16 m)

Es wird $D_a = 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ der Anlage 1 (StandAG 2017) angenommen. Dieser Wert liegt in einer realitätsnahen Größenordnung, um Diffusion mit linearer Sorption für Radionuklide an Bentonit zu beschreiben (Yu & Neretnieks 1997). Der tatsächliche scheinbare Diffusionskoeffizient ist nuklidspezifisch und unter anderem abhängig

von Temperatur, pH, Porosität, Speziation sowie Sorption an verfügbaren Oberflächen.

Die Stärke des Bentonits von 0,5 m entspricht der kürzesten denkbaren Diffusionsdistanz eines Endlagerkonzepts (SKB 2011a; Faß 2023).

3.2.6 Berechnung des anteiligen Austrags des Radionuklidinventars in das kristalline Wirtsgestein

Es werden drei Fälle unterschieden:

1. Auflösung der Pellets und Wirkung der Zirkalloyhüllen und der Außenbehälter. Der diffusive Transport mit Sorption in Korrosionsprodukten und Bentonit wird nicht berücksichtigt. Damit geht ein sofortiger Austrag des Radionuklinventars gekoppelt an den Defekt der beiden Barrieren in das Wirtsgestein einher.

Der Austrag des Radionuklidinventars in das Wirtsgestein wird mit den Defekten und den ausgefallenen Wandungsfläche der Zirkalloyhüllen und der Außenbehälter korreliert. Daher können diese Funktionen miteinander multipliziert werden. Der Austrag des Radionuklidinventars in das kristalline Wirtsgestein zum Zeitpunkt t berechnet sich nach Formel 3-11.

$$R_t = R_t^{\text{Pellet}} * N_t^{\text{Zircaloy}} * F_t^{\text{Zircaloy}} * N_t^{\text{Aussenbehälter}} * W_t^{\text{Aussenbehälter}} \quad (3-11)$$

2. Auflösung der Pellets und Wirkung der Zirkalloyhüllen und der Außenbehälter sowie zusätzlich mit Sorption beim diffusiven Transport durch den Bentonit.

Die Rückhaltewirkung des Bentonits für Radionuklide verringert den Austrag des Radionuklidinventars. Der Austrag des Radionuklidinventars zum Zeitpunkt t_n in das kristalline Wirtsgestein wird iterativ berechnet (Formel 3-12 und 3-13).

$$C_{t_n}^{\text{Aussenbehälter}} = C_{t_{n-1}}^{\text{Aussenbehälter}} + R_{t_n}^{\text{Pellet}} * N_{t_n}^{\text{Zircaloy}} * F_{t_n}^{\text{Zircaloy}} - R_{t_{n-1}}^{\text{Aussenbehälter}} \quad (3-12)$$

$$R_{t_n} = N_{t_n}^{\text{Aussenbehälter}} * W_{t_n}^{\text{Aussenbehälter}} * D_a * \frac{(C_{t_n}^{\text{Aussenbehälter}})}{d^{\text{Bentonit}}} * (t_n - t_{n-1}) \quad (3-13)$$

3. Auflösung der Pellets und Wirkung der Zirkalloyhüllen und der Außenbehälter sowie zusätzlich mit Sorption beim diffusiven Transport in Korrosionsprodukten des Innenbehälters und im Bentonit.

Der Austrag des Radionuklidinventars korreliert mit den Defekten und der ausgefallenen Wandungsfläche der Zirkalloyhüllen und Außenbehälter sowie der Diffusion durch die Korrosionsprodukte der Innenbehälter und des Bentonits mit Sorption. Die jeweiligen Funktionen können miteinander

multipliziert werden. Der Austrag des Radionuklidinventars zum Zeitpunkt t_n in das kristalline Wirtsgestein wird iterativ berechnet (Formeln 3-14 bis 3-17).

$$C_{t_n}^{Innenbehälter} = C_{t_{n-1}}^{Innenbehälter} + R_{t_n}^{Pellet} * N_{t_n}^{Zircaloy} * F_{t_n}^{Zircaloy} - R_{t_{n-1}}^{Innenbehälter} \quad (3-14)$$

$$R_{t_n}^{Innenbehälter} = D_a * \frac{(C_{t_n}^{Innenbehälter} - C_{t_n}^{Außenbehälter})}{d^{Innenbehälter}} * (t_n - t_{n-1}) \quad (3-15)$$

$$C_{t_n}^{Außenbehälter} = C_{t_{n-1}}^{Außenbehälter} + R_{t_n}^{Innenbehälter} - R_{t_n} \quad (3-16)$$

$$R_{t_n} = N_{t_n}^{Außenbehälter} * W_{t_n}^{Außenbehälter} * D_a * \frac{(C_{t_n}^{Außenbehälter})}{d^{Bentonit}} * (t_n - t_{n-1}) \quad (3-17)$$

Die Rechnungen erfolgten in einem Excel-Spreadsheet. Die Zeitschritte wurden in logarithmischen Abständen zwischen 1 und $1,3 \cdot 10^6$ Jahren gewählt.

3.3 Ergebnisse

Die Anteile defekter Zirkalloyhüllen und Außenbehälter sowie die Anteile der jeweils ausgefallenen Wandungsfläche dieser Umschließungen nimmt erwartungsgemäß im Zeitverlauf zu (Abb. 3-6). Da die gewählten λ -Werte (0,0001, 0,0002, 0,0005, 0,001) unterschiedlich sind, erlauben sie bei prinzipiell gleichem Verlauf eine Unterscheidung der e-Funktionen.

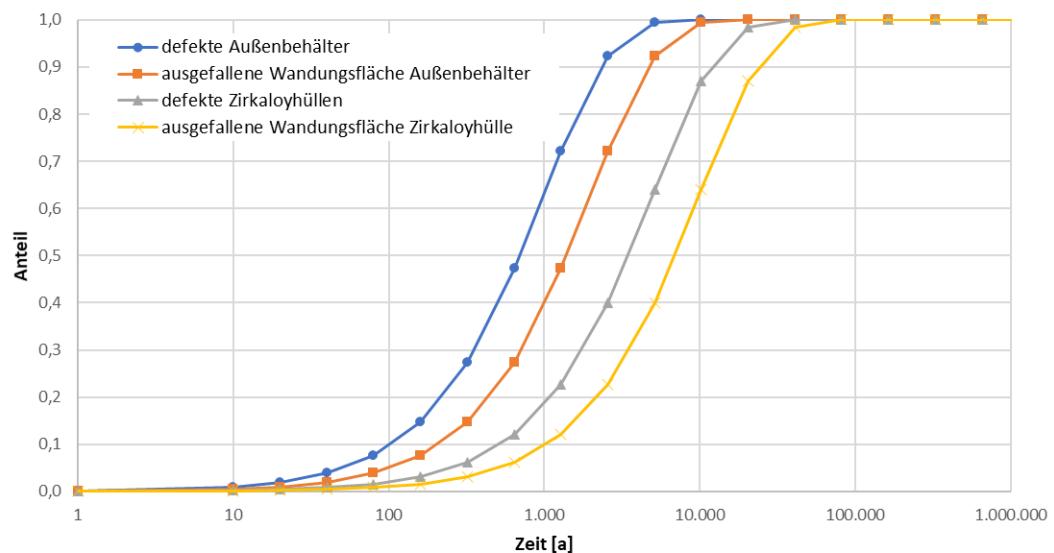


Abb. 3-6: Anteil defekter Zirkalloyhüllen und Außenbehälter sowie ausgefallener Wandungsfläche der Zirkalloyhülle und Außenbehälter in Abhängigkeit von der Zeit (hypothetische Annahmen).

Abb. 3-7 zeigt zeitabhängig den Anteil der IRF und den Anteil durch Auflösung freigesetzte Radionuklidinventar der Pellets innerhalb der Zirkaloyhülle. Der Anteil

der IRF beträgt fest 0,2. Der aufgelöste Anteil des Radionuklidinventars ist mit einer e-Funktion ermittelt.

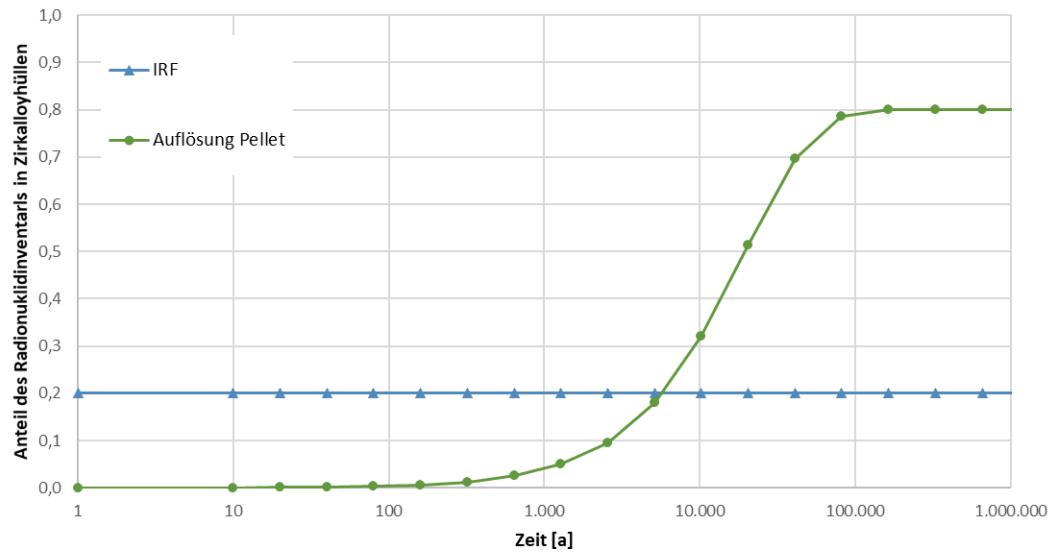


Abb. 3-7: Radionuklidanteile, basierend auf dem Modell mit IRF und Auflösung der Pellets im Brennstab (hypothetische Annahmen).

Der in den Innenbehälter ausgetragenen Anteil der Radionuklidinventars ergibt sich dann aus der initialen Defektrate und der ausgefallenen Wandungsfläche der Zirkalloyhülle (Abb. 3-8).

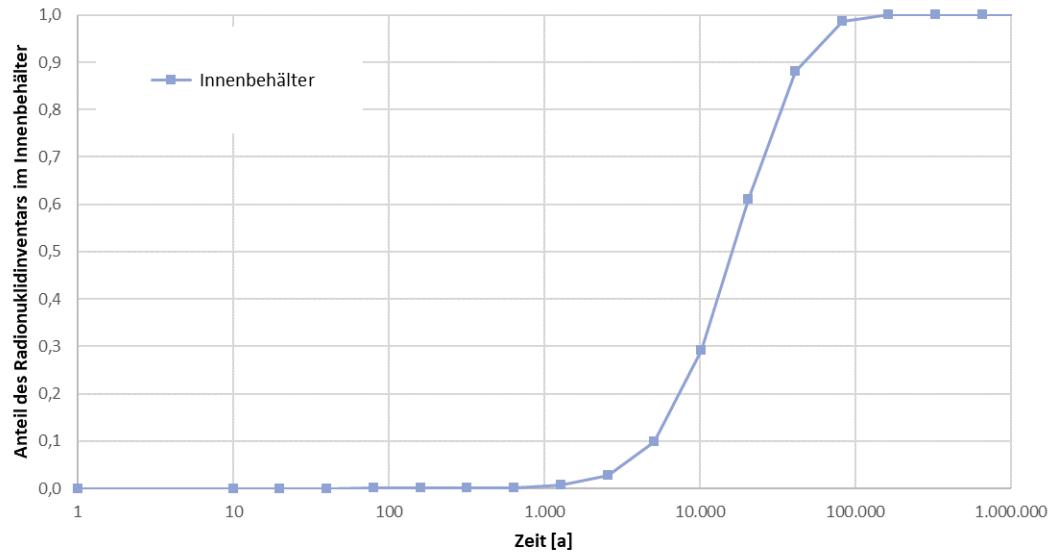


Abb. 3-8: Anteil des Radionuklidinventars im Innenbehälter nach Austrag aus den Zirkalloyhüllen (ohne weiteren Austrag).

Der Austrag des Radionuklidinventars in das kristalline Wirtsgestein gegen die Zeit ist für drei Rechenfälle entsprechend Kap. 3.2.6 ermittelt (Abb. 3-9):

Rechenfall 1: IRF und Auflösung der Pellets sowie Ausfall der Zirkalloyhülle und der Außenbehälter

Rechenfall 2: Zusätzlich mit Berücksichtigung der Diffusion mit Sorption an Bentonit,

Rechenfall 3: Zusätzlich mit Berücksichtigung einer Diffusion mit Sorption an Korrosionsprodukten der Innenbehälter und an Bentonit.

Ergänzend ist der Austrag des Radionuklidinventars in das Wirtsgestein für die Annahmen nach einer Modellrechnung nach SKB (2011b) und nach einer Modellrechnung und eines Ergebnisses nach Wolf et al. (2021) skizziert. Der *Postulated failure at 100,000 years* (SKB 2011b, S. 695) für eine Konsequenzenanalyse entspricht einem anteiligen Austrag von $1,6 \cdot 10^{-4}$ des Radionuklidinventars in das kristalline Wirtsgestein ab diesem Zeitpunkt. Der Ausfall eines Behälters (von ca. 2.000) nach 100.000 Jahren (Wolf et al. 2021) führt einem anteiligem Austrag von $5 \cdot 10^{-4}$ des Radionuklidinventars. Die Berücksichtigung der Diffusion mit Sorption an Bentonit ergibt nach Wolf et al. (2021) in der Modellrechnung einen Anteil von ca. 10^{-8} für den Austrag des Radionuklidinventars in das kristalline Wirtsgestein.

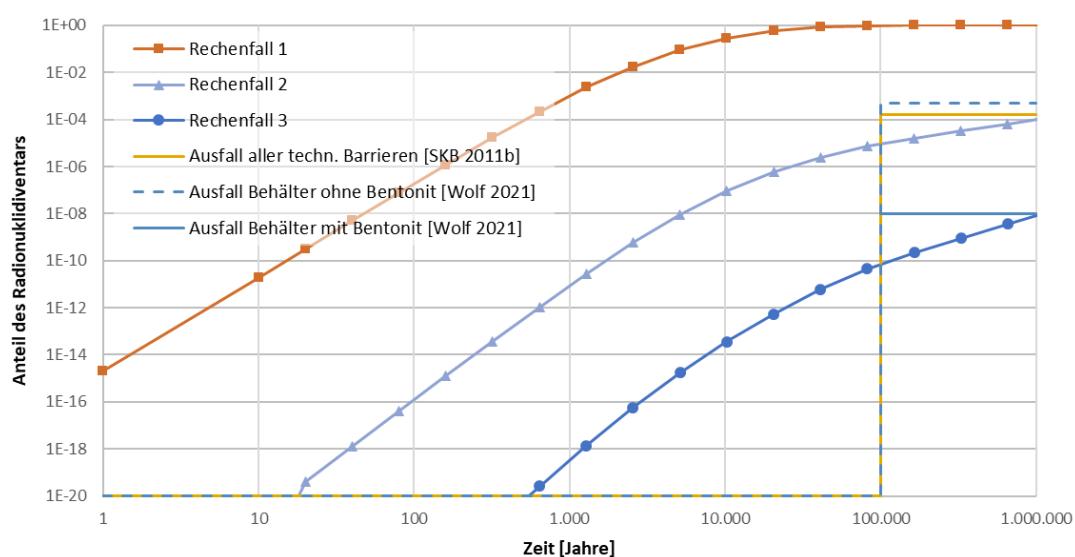


Abb. 3-9: Austrag des Radionuklidinventars in das kristalline Wirtsgestein ohne bzw. mit Diffusion und Sorption (hypothetische Annahmen).

Rechenfall 1: Wenn nur Pellets, Zircaloyhüllen und Außenbehälter berücksichtigt werden, aber keine Diffusion und Sorption im Korrosionsprodukten des Innenbehälters und im Bentonit, wird mit den hypothetischen Annahmen das Radionuklidinventar nach ca. 10.000 Jahren fast vollständig in das kristalline Wirtsgestein ausgetragen. Dies ist deutlich früher im Vergleich zu den Annahmen von SKB (2011b) und Wolf *et al.* (2021) für den (vollständigen) Ausfall einiger Behälter nach 100.000 Jahren.

Rechenfall 2: Bei Berücksichtigung der Diffusion mit Sorption an Bentonit wird ein Anteil des Radionuklidinventar von 10^{-4} nach 1 Mio. Jahren in das kristalline Wirtsgestein ausgetragen. Dies entspricht in etwa Werten, die sich aus den Annahmen von SKB (2011b) und Wolf *et al.* (2021) ergeben.

Rechenfall 3: Bei Berücksichtigung der Diffusion mit Sorption sowohl an Korrosionsprodukten des Innenbehälters und als auch am Bentonit wird nur ein Anteil des Radionuklidinventars von ca. 10^{-8} nach 1 Mio. Jahren in das kristalline Wirtsgestein ausgetragen. Dies entspricht in etwa Werten, die sich aus den Annahmen Wolf *et al.* (2021) mit Berücksichtigung der Bentonitbarriere ergeben.

Für den Rechenfall 3 liegt der Anteil von ca. 10^{-8} nach 1 Mio. Jahren für den Austrag des Radionuklidinventars deutlich unter dem Indikator von 10^{-4} nach EndSiAnfV (2020) nach 1 Million Jahren. Der jährliche Austrag des Radionuklidinventars (nicht gezeigt) liegt erst nach 1 Million Jahren etwas über der jährlichen Menge von 10^{-9} pro Jahr.

3.4 Diskussion und Schlussfolgerungen

Mit den hypothetischen Funktionen, Annahmen und Parametern wurde eine Verzögerung des Austrags eines Radionuklidinventars durch die (geo-)technischen Barrieren modelliert. Die Diffusion mit Sorption an Bentonit und Korrosionsprodukten verzögert den Austrag bei den gewählten Funktionen und Parametern am stärksten. Der Modellansatz kann zeitabhängig eine mögliche Wirkung der Pelletauflösung sowie des Ausfalls der Zirkalloyhüllen und der Außenbehälter auf den Austrag berücksichtigen. Es wurde dafür ein Zusammenhang des Austrags mit der Zahl der Defekte der Umschließungen und deren Größe unterstellt. Die Plausibilitäten der verwendeten Funktionen, Annahmen und Parameter sind noch zu zeigen.

Dennoch könnte dieser Ansatz eine weitere Möglichkeit bieten, zwischen extrem starker Vereinfachung eines vollständigen Ausfalls von Barrieren (z. B. what-if Szenarien für Konsequenzenanalysen) und den sehr aufwendigen und detaillierten Prozessmodellen dennoch zusätzliche Sicherheitsfunktionen rechnerisch zu untersuchen. Dieser Modellansatz könnte je nach Erkenntnisfortschritt (z. B. zu

Korrosionsprozessen oder Endlagerkonzepten) und wechselseitigen Abhängigkeiten weiterentwickelt werden. Der Ansatz bietet somit perspektivisch einen Weg, um Sicherheitsreserven für einen Vergleich oder eine Optimierung von Endlagerkonzepten aufzuzeigen.

Wesentliche Limitierungen des Ansatzes sind allerdings auch offensichtlich: Die (geo-)technischen Barrieren (Korrosionsprodukte, Bentonit) verzögern den Austrag des Radionuklidinventars aus dem Endlager beispielsweise aufgrund von Sorption. Die lineare Sorptionsisotherme, die einem scheinbaren Diffusionskoeffizienten zugrunde liegt, führt bei hohen Radionuklidkonzentrationen/-mengen zu einer Überschätzung dieser Wirkung. Die reale Sorptionskapazität der Korrosionsprodukte und des Bentonits ist für Radionuklide begrenzt. Auch wurde der scheinbare Diffusionskoeffizient bislang nicht radionuklidspezifisch angewendet. Ebenso wurde der Einfluss der Löslichkeit unterschiedlicher Radionuklid-Spezies und der Kinetik von Prozessen nicht in den Funktionen für die Rechenfälle abgebildet.

Die exemplarischen und hypothetischen Funktionen können und sollten bei Vorliegen weiterer Erkenntnisse durch geeignete und belastbarere Funktionen ersetzt werden. Der Ablauf einer lokalen oder einer flächigen Korrosion kann beispielsweise durch geeignete Funktionen mit angepassten Parametern aus experimentellen Untersuchungen beschrieben werden und so Eingang in die Modellrechnung finden. Auch weitere Abhängigkeiten könnten berücksichtigt werden.

Aufgrund der hypothetischen und pauschalen Modellannahmen können die dargestellten Ergebnisse derzeit keinesfalls zur Bewertung von (geo-)technischen Barrieren oder einer belastbaren Quantifizierung des Austrags des Radionuklidinventars herangezogen werden. Die Ergebnisse zeigen aber die Möglichkeit auf, durch Modellrechnungen Endlagerkonzepte mit mehreren (geo-)technischen Barrieren sicherheitsanalytisch mit weiteren Komponenten zu untersuchen. Der aufgezeigte Ansatz für Modellrechnungen zum Austrag des Radionuklidinventars in das Wirtsgestein bei Teilausfall von (geo-)technischen Barrieren benötigt somit noch umfangreiche Weiterentwicklungen auf Basis eines Prozess- und Systemverständnisses.

4 Fazit und Ausblick

Die Integrität von Endlagerbehältern als Radionuklidbarriere ist von zentraler Bedeutung in Sicherheitsanalysen für ein Endlager im kristallinen Wirtsgestein, wenn der sichere Einschluss der Abfälle von den (geo-)technischen Barrieren gewährleistet werden soll.

Zur Modellierung des Korrosionsablaufs der etablierten Behältermaterialien existieren verschiedene Ansätze, um der Vielzahl an möglichen Korrosionsmechanismen und unterschiedlichen Anforderungen an den Detaillierungsgrad gerecht werden zu können. Verbreitet sind zum einen empirische Ansätze, bei denen experimentell bestimmte Raten oder Koeffizienten auf lange Zeiträume extrapoliert werden. Ebenfalls oft genutzt sind Ansätze auf Basis von Massenbilanzierung und Massentransport. Diese Ansätze, die eine Reihe von Vereinfachungen und Abstrahierungen enthalten finden rechnerisch Eingang in Langzeitsicherheitsanalysen. Darüber hinaus wurden sehr komplexe mechanistische Modelle (z. B. reaktive Transportmodelle) entwickelt, die eine große Anzahl an Reaktionen an der Metalloberfläche und in der Umgebung mit einbeziehen. Diese Prozessmodelle sind oft zu umfangreich, für eine Implementierung in Langzeitsicherheitsanalysen, sind jedoch von zentraler Bedeutung zur Demonstration von Prozessverständnis und zur Rechtfertigung der getroffenen Abstrahierungen in den numerischen Modellen. Solange ein Verständnis der zugrunde liegenden Korrosionsprozesse nachgewiesen werden kann, ist es von untergeordneter Bedeutung, ob eine Behälterlebensdauer auf Basis von empirischen oder deterministischen Modellen ermittelt.

Zu den verschiedenen Modellierungsansätzen existiert eine Fülle an Literatur und Erfahrungswerten aus anderen Ländern (z. B. Schweden, Finnland, Kanada), auf denen die Betrachtungen zur Korrosionsmodellierung aufbauen können. Trotz des guten Wissensstands und der Existenz einer Vielzahl von weit entwickelten Korrosionsmodellen, gibt es noch spezifische Ansatzpunkte für Forschung zur weiteren Optimierung, z. B. bei der Berücksichtigung realitätsnaher Oberflächenstrukturen (King et al. 2024a; Abdelouas et al. 2022).

Konkrete Modellrechnungen zur Behälterkorrosion in einem Endlager in Deutschland können erst zu einem späteren Zeitpunkt im Standortauswahlverfahren angestellt werden, wenn standortspezifische Randbedingungen wie z. B. hydrogeochemische Bedingungen im Endlager und die bevorzugten Behältermaterialien ausgewählt sein werden. Bis dahin beschränken sich mögliche Aktivitäten auf generische Betrachtungen.

Die Art der Korrosion und das damit verbundene Behälterversagen hat Auswirkungen auf das Freisetzungsvorhalten der Radionuklide. Bei einem lokalen Defekt dieser technischen Barriere kann zumindest noch teilweise eine Rückhaltung unterstellt werden. Dies wurde in einem Vorschlag für einen Modellierungsansatz zum Austrag des Radionuklidinventars berücksichtigt.

Modellrechnungen mit exemplarischen Funktionen, Annahmen und Parameter untersuchten die Wirkung (geo-)technischer Barrieren im Hinblick auf den Austrag des Radionuklidinventars. Die Restwirksamkeit defekter technischer Barrieren führt zu einem zeitabhängigen Austrag des Radionuklidinventars. Insbesondere Diffusion mit Sorption an Korrosionsprodukten und an Bentonit verzögert den Austrag des Radionuklidinventars. Mit dem hier vorgestellten Modellierungsansatz können möglicherweise Sicherheitsreserven rechnerisch untersucht werden, die bei Ausfall von Umschließungen, Behältern und anderen Barrieren vorhanden sind und Eingang in Sicherheitsbewertungen finden könnten.

Aufgrund der hypothetischen und vereinfachten Modellannahmen können die dargestellten Ergebnisse jedoch in dieser Form nicht zur Bewertung der Wirkung von (geo-)technischen Barrieren oder einer belastbaren Quantifizierung des Austrags des Radionuklidinventars herangezogen werden. Der Ansatz benötigt noch umfangreiche Weiterentwicklungen auf Basis eines Prozess- und Systemverständnisses. Die verwendeten Funktionen und Parameter sollten bei Vorliegen weiterer Erkenntnisse durch geeignete und belastbarere Funktionen und Parameter ersetzt werden.

5 Abkürzungsverzeichnis

BASE

Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung

BGE

Bundesgesellschaft für Endlagerung mbH

CHRISTA

Machbarkeitsuntersuchung zur Entwicklung einer Sicherheits- und Nachweismethodik für ein Endlager für Wärme entwickelnde radioaktive Abfälle im Kristallingestein in Deutschland

EndlSiAnfV

Verordnung über Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung hochradioaktiver Abfälle

EndlSiUntV

Verordnung über Anforderungen an die Durchführung der vorläufigen Sicherheitsuntersuchungen im Standortauswahlverfahren für die Endlagerung hochradioaktiver Abfälle

EURAD

European Joint Programme on Radioactive Waste Management

ewG

einschlussswirksamer Gebirgsbereich

FEP

Features, Events and Processes

FIAP

Fraction of Inventory in the Aqueous Phase

FKZ

Forschungskennzahl

IRF

Instant Release Fraction

KBS-3

KärnBränsleSäkerhet (Kernbrennstoffsicherheit) vorgestellt im dritten Hauptbericht des KBS-Projektes (Birgersson 2016)

LaKris

Forschungsvorhaben „Langzeitintegrität von Behältern in Kristallingestein“

POLLUX

Behälter zur direkten Endlagerung von bestrahlten Brennelementen in einer Salzformation

SKB

Svensk Kärnbränslehantering AB

StandAG

Gesetz zur Suche und Auswahl eines Standortes für ein Endlager für hochradioaktive Abfälle

6 Literaturverzeichnis

Abdelouas et al. (2022)

Abdelouas, A., Alonso, U., Bernier-Latmani, R., Bosch, C., Cherkouk, A., Dobrev, D., Fernández, A. M., Finck, N., Gaggiano, R., Havlova, V., Hesketh, J., Idiart, A., Mijnendonckx, K., Montoya, V., Muñoz, A. G., Padovani, C., Pont, A., Rajala, P., Riba, O., Sarrasin, L., Sayenko, S., Smart, N., Texier-Mandoki, N. & Wersin, P.: Initial State-of-the-art of WP ConCorD. HORIZON 2020 project EURAD, deliverable D15.1, 17. August 2022.

Becker et al. (2020a)

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., Schubarth-Engelschall, N., Simo, E., Thiedau, J., Thiemeyer, T., Weber, J. R. & Wolf, J.: Grundlagen zur Bewertung eines Endlagersystems in einer Kristallingesteinsformation mit mehreren einschlusswirksamen Gebirgsbereichen (K1). Ergebnisse aus dem Vorhaben RESUS. ENTWURF, BGE TECHNOLOGY GmbH (BGE TEC), Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR), Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit gGmbH (GRS), 118 S., 2020.

Becker et al. (2020b)

Becker, D.-A., Bertrams, N., Bollingerfehr, W., Frenzel, B., Krumpholz, M., Maßmann, J., Mayer, K.-M., Mönig, J., Müller-Hoeppe, N., Reinhold, K., Rübel, A., Schubarth-Engelschall, N., Simo, E., Thiedau, J., Weber, J. R. & Wolf, J.: Grundlagen zur Bewertung eines Endlagersystems in einer Kristallingesteinsformation mit Einschluss der Radionuklide durch technische und geotechnische Barrieren. RESUS, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit gGmbH (GRS), GRS-577, 125 S., ISBN 978-3-947685-63-9: Köln, August 2020.

Bertrams et al. (2017)

Bertrams, N., Herold, P., Herold, M., Krone, J., Lommerzheim, A., Prignitz, S. & Kuate, E. S.: Entwicklung eines technischen Konzeptes für ein generisches Endlager für wärmeentwickelnde Abfälle und ausgediente Brennelemente im Kristallingestein in Deutschland (KONEKD), DBE TECHNOLOGY GmbH (DBE-TEC), TEC-20-2017-AB, 240 S.: Peine, September 2017.

Birgersson (2016)

Birgersson, L.: UVE für das KBS-3-System – nichttechnische Zusammenfassung, Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB), 17 S.: Stockholm, 25. Januar 2016.

Bollingerfehr et al. (2011)

Bollingerfehr, W., Filbert, W., Lerch, C. & Tholen, M.: Endlagerkonzepte. Bericht zum Arbeitspaket 5. Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben, DBE TECHNOLOGY GmbH (DBETEC). GRS-Bericht, GRS-272, 187 S., ISBN 978-3-939355-48-9, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 2011.

Bollingerfehr et al. (2020)

Bollingerfehr, W., Prignitz, S., Wunderlich, A., Herold, C., Orellana Pérez, T., Völzke, H. & Wolff, D.: Anforderungen und Konzepte für Behälter zur Endlagerung von Wärme entwickelnden radioaktiven Abfällen und ausgedienten Brennelementen in Steinsalz, Tonstein und Kristallingestein. Abschlussbericht zum FuE-Verbundvorhaben KoBrA, FKZ: 02E11527 und 02E11537, BGE TECHNOLOGY GmbH (BGE TEC), Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung (BAM), BGE TEC 2020-19; BAM 3.4/3205-1, 110 S.: Peine und Berlin, 11. September 2020.

Braden & Macfarlane (2023)

Braden, Z. & Macfarlane, A.: The final countdown to site selection for Canada's nuclear waste geologic repository. Bulletin of the Atomic Scientists 79(1), 22–27, DOI 10.1080/00963402.2022.2155007, 2023.

Briggs et al. (2021)

Briggs, S., Lilja, C. & King, F.: Probabilistic model for pitting of copper canisters. Materials and Corrosion 72(1-2), 308–316, DOI 10.1002/maco.202011784, 2021.

BGR (2007)

Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR): Endlagerung radioaktiver Abfälle in Deutschland. Untersuchung und Bewertung von Regionen mit potenziell geeigneten Wirtsgesteinsformationen, 17 S.: Hannover / Berlin, April 2007.

BGE (2020a)

Bundesgesellschaft für Endlagerung mbH (BGE): Begriffsbestimmung. Kristallines Wirtsgestein, 4 S.: Peine, 28. Mai 2020.

BGE (2020b)

Bundesgesellschaft für Endlagerung mbH (BGE): Anwendungsmethodik der Mindestanforderungen nach § 23 Standortauswahlgesetz, 19. Juni 2020.

BGE (2022)

Bundesgesellschaft für Endlagerung mbH (BGE): Entwicklung von Endlagerbehälterkonzepten für die geologische Tiefenlagerung von hochradioaktiven Abfällen in kristallinem Wirtsgestein. ELBRock. Projektbeschreibung, 2 S.: Peine, 19. Mai 2022.

Christian (1999)

Christian, J. D.: Zircaloy Corrosion in a Repository Environment. Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXXI 556, DOI 10.1557/PROC-556-935, 1999.

Diomidis (2014)

Diomidis, N.: Scientific basis for the production of gas due to corrosion in a deep geological repository, Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA). Nagra Arbeitsbericht, NAB 14-21, 64 S.: Wettingen, Februar 2014.

Eckel et al. (2019)

Eckel, J., Weyand, T. & Navarro, M.: Integritätskriterien für ein Endlagersystem im Kristallin- gestein. In: Bundesgesellschaft für Endlagerung mbH (BGE): Tagungsband, 3. Fach- workshop der Bundesgesellschaft für Endlagerung. Tage der Standortauswahl, Braunschweig, 12. - 14. Dezember 2019, 22: Peine, 2019.

EndlSiAnfV (2020)

Verordnung über Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung hochradioaktiver Abfälle - Endlagersicherheitsanforderungsverordnung (EndlSiAnfV) in der Fassung vom 6. Oktober 2020 (BGBl. I 45, S. 2094-2103).

EndlSiUntV (2020)

Verordnung über Anforderungen an die Durchführung der vorläufigen Sicherheitsuntersuchungen im Standortauswahlverfahren für die Endlagerung hochradioaktiver Abfälle - Endlagersicherheitsuntersuchungsverordnung (EndlSiUntV) in der Fassung vom 6. Oktober 2020 (BGBl. I 45, S. 2094-2103).

Faß (2023)

Faß, T.: Stand von Wissenschaft und Technik zu Behälterkonzepten im Kristallin- gestein. Forschungsbericht 1 von 3 zum Projekt „Langzeitintegrität von Behältern in Kristallin- gestein“ (LaKris), Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung (BASE). BASE-Forschungsbericht, BASE-006/25: Berlin, Mai 2023.

Fraker (1989)

Fraker, A. C.: Corrosion of Zircaloy Spent Fuel Cladding in a Repository. U.S. Department of Commerce (Hrsg.). NISTIR, 89-4114, 20 S.: Galtersburg, Maryland, United States, Juli 1989.

Grambow & Müller (2001)

Grambow, B. & Müller, R.: First-order dissolution rate law and the role of surface layers in glass performance assessment. Journal of Nuclear Materials 298(1-2), 112-124, DOI 10.1016/s0022-3115(01)00619-5, 2001.

Grambow (1998)

Grambow, B.: Vorläufiger Quellterm Glas. Beschreibung der kinetischen Barrierenwirkung von HAW-Glas im integrierten Nahfeldmodell. PSP Element: 213 532 100: Erstellung eines integrierten Nahfeldmodells von Gebinden hochaktiver Abfälle im Salzstock Gorleben: geochemisch fundierter Quellterm für HAW-Glas, abgebrannte Brennelemente und Zement, Institut für Nukleare Entsorgung (INE), Forschungszentrum Karlsruhe, FZK-INE 015/97: Karlsruhe, 11. November 1998.

Gumbel (1958)

Gumbel, E. J.: Statistics of Extremes, DOI 10.7312/gumb92958, Columbia University Press, 1958.

Hall et al. (2021)

Hall, D. S., Behazin, M., Jeffrey Binns, W. & Keech, P. G.: An evaluation of corrosion processes affecting copper-coated nuclear waste containers in a deep geological repository. Progress in Materials Science 118(3), 1-28, DOI 10.1016/j.pmatsci.2020.100766, 2021.

Herold et al. (2020)

Herold, C., Orellana Pérez, T., Völzke, H., Wolff, D., Bollingerfehr, W., Prignitz, S. & Wunderlich, A.: Erarbeitung von Vorschlägen für mögliche Behälterkonzepte in den drei potenziellen Wirtsgesteinen Steinsalz, Tonstein und Kristallingestein. FuE-Verbundvorhaben KoBrA: Bericht zum Arbeitspaket 4, BAM, BGE TECHNOLOGY GmbH (BGE TEC). FuE-Verbundvorhaben KoBrA, BAM 3.4/3205-3: Berlin, 30. September 2020.

Hung et al. (2017)

Hung, C.-C., Wu, Y.-C. & King, F.: Corrosion assessment of canister for the disposal of spent nuclear fuel in crystalline rock in Taiwan. Corrosion Engineering, Science and Technology 52(sup1), 194–199, DOI 10.1080/1478422X.2017.1285855, 2017.

Husnain et al. (2018)

Husnain, S. M., Um, W., Woojin-Lee & Chang, Y.-S.: Magnetite-based adsorbents for sequestration of radionuclides: a review. RSC advances 8(5), 2521–2540, DOI 10.1039/C7RA12299C, 2018.

Jobmann et al. (2016)

Jobmann, M., Becker, D.-A., Hammer, J., Jahn, S., Lommerzheim, A., Müller-Hoeppke, N., Noseck, U., Krone, J., Weber, J. R., Weitkamp, A. & Wolf, J.: Projekt CHRISTA. Machbarkeitsuntersuchung zur Entwicklung einer Sicherheits- und Nachweismethodik für ein Endlager für Wärme entwickelnde radioaktive Abfälle im Kristallingestein in Deutschland. Abschlussbericht, FKZ: 02E11375A/B, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit gGmbH (GRS), Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR), DBE TECHNOLOGY GmbH (DBE-TEC), TEC-20-2016-AB, 122 S.: Peine, 24. Oktober 2016.

Jobmann et al. (2021)

Jobmann, M., Burlaka, V., Flügge, J., Frank, T., Frenzel, B., Hassanzadegan, A., Johnen, M., Krumbholz, M., Vargas, R. P. L., Lommerzheim, A., Maßmann, J., Mayer, K.-M., Meleshyn, A., Morel, C. G., Mrugalla, S., Müller, C. & Noseck, U.: CHRISTA-II. Methodisches Vorgehen zur sicherheitlichen Bewertung von Endlagersystemen im Kristallin in Deutschland. Synthesebericht; FKZ: 02E11617A (BGETEC), 02E11617B (GRS), BGE TECHNOLOGY GmbH (BGE TEC), BGE TEC 2021-17, 119 S.: Peine, 21. Dezember 2021.

Johnson & King (2008)

Johnson, L. & King, F.: The effect of the evolution of environmental conditions on the corrosion evolutionary path in a repository for spent fuel and high-level waste in Opalinus Clay. Journal of Nuclear Materials 379(1-3), 9–15, DOI 10.1016/j.jnucmat.2008.06.003, 2008.

Johnson & McGinnes (2002)

Johnson, L. H. & McGinnes, D.: Partitioning of Radionuclides in Swiss Power Reactor Fuels, Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA). Nagra Technischer Bericht, NTB 02-07, 27 S.: Wettingen / Schweiz, 01. August 2002.

Johnson & Schwyn (2008)

Johnson, L. & Schwyn, B. (Hrsg.): Proceedings of a Nagra/RWMC Workshop on the release and Transport of C-14 in Repository Environments, Release and Transport of C-14 in Repository Environments, 27. - 28. Oktober 2003. Nagra Arbeitsbericht, NAB 08-22, Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA): Wettingen, Schweiz, 2008.

Johnson et al. (2005)

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 346, 10, 2005.

Kienzler et al. (2012)

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.

Kienzler et al. (2013)

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.

Kienzler et al. (2017)

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 198(3), 260–276, DOI 10.1080/00295450.2017.1326271, 2017.

King & Kolář (2019a)

King, F. & Kolář, M.: Copper Sulfide Model (CSM) – Model improvements, sensitivity analyses, and results from the Integrated Sulfide Project inter-model comparison exercise, SKB. Technical Report, TR-18-08, 205 S., 2019.

King & Kolář (2019b)

King, F. & Kolář, M.: Lifetime Predictions for Nuclear Waste Disposal Containers. Corrosion 75(3), 309–323, DOI 10.5006/2994, 2019.

King (2009)

King, F.: Microbiologically Influenced Corrosion of Nuclear Waste Containers. Corrosion 65(4), 233–251, April 2009.

King (2014)

King, F.: Predicting the Lifetimes of Nuclear Waste Containers. JOM 66(3), 526–537, DOI 10.1007/s11837-014-0869-3, 2014.

King (2017)

King, F.: Corrosion of disposal containers. Lifetime prediction for carbon steel canisters. ENSI (Hrsg.), Integrity Corrosion Consulting Ltd., 2017.

King et al. (2008)

King, F., Kolar, M. & Maak, P.: Reactive-transport model for the prediction of the uniform corrosion behaviour of copper used fuel containers. Journal of Nuclear Materials 379(1-3), 133–141, DOI 10.1016/j.jnucmat.2008.06.017, 2008.

King et al. (2011)

King, F., Kolar, M., Vähänen, M. & Lilja, C.: Modelling long term corrosion behaviour of copper canisters in KBS-3 repository. Corrosion Engineering, Science and Technology 46(2), 217–222, DOI 10.1179/18211Y.0000000004, 2011.

King et al. (2012)

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, Posiva Oy. Posiva Report, POSIVA 2011-01, 246 S., ISBN 978-951-652-178-0: Olkiluoto, July 2012.

King et al. (2014)

King, F., Kolář, M. & Keech, P. G.: Simulations of long-term anaerobic corrosion of carbon steel containers in Canadian deep geological repository. Corrosion Engineering, Science and Technology 49(6), 455–459, DOI 10.1179/1743278214Y.0000000187, 2014.

King et al. (2023)

King, F., Diomidis, N., Hesketh, J., Smart, N. R. & Padovani, C.: EURAD State of Knowledge (SoK) Report HLW/SF Containers Domain 3.2.1, EURAD WP ConCorD, 2023.

King et al. (2024a)

King, F., Kolář, M., Briggs, S., Behazin, M., Keech, P. & Diomidis, N.: Review of the Modelling of Corrosion Processes and Lifetime Prediction for HLW/SF Containers–Part 1: Process Models. Corrosion and Materials Degradation 5(2), 124–199, 2024.

King et al. (2024b)

King, F., Kolář, M., Briggs, S., Behazin, M., Keech, P. & Diomidis, N.: Review of the Modelling of Corrosion Processes and Lifetime Prediction for HLW/SF Containers–Part 2: Performance Assessment Models. Corrosion and Materials Degradation 5(2), 289–339, DOI 10.3390/cmd5020013, 2024.

Kuhlman et al. (2024)

Kuhlman, K. L., Bartol, J., Carter, A., Lommerzheim, A. & Wolf, J.: Scenario development for safety assessment in deep geologic disposal of high-level radioactive waste and spent nuclear fuel: A review. Risk Analysis, DOI 10.1111/risa.14276, 2024.

Kursten et al. (2004)

Kursten, B., Smailos, E., Azkarate, I., Werme, L., Smart, N. R. & Santarini, G.: COBECOMA. State-of-the-art document on the COrossion BEhaviour of COntainer Materials. 5th Euratom Framework Programme 1998-2002 Contract N° FIKW-CT-20014-20138, European Commission (EC). Final Report, Oktober 2004.

Larue et al. (2013)

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-Bericht, GRS-289, 267 S., ISBN 978-3-939355-65-6, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 2013.

Ma et al. (2019)

Ma, B., Charlet, L., Fernandez-Martinez, A., Kang, M. & Madé, B.: A review of the retention mechanisms of redox-sensitive radionuclides in multi-barrier systems. *Applied Geochemistry* 100, 414–431, DOI 10.1016/j.apgeochem.2018.12.001, 2019.

Mrugalla et al. (2020)

Mrugalla, S., Frenzel, B., Jobmann, M., Lommelzheim, A., Meleshyn, A., Noseck, U., Rübel, A., Weitkamp, A. & Wolf, J.: CHRISTA-II. FEP-Katalog zum Endlagersystem „überlagernder ewG“. Technischer Bericht; FKZ: 02E11385A/B, BGE TECHNOLOGY GmbH (BGE TEC), BGE TEC 2020-22, 312 S., 02. Juli 2020.

Müller & Tholen (2009)

Müller, W. & Tholen, M.: Abschätzung der Standzeit von Endlagergebinden in einem zukünftigen HAW-Endlager im Salzgestein unter dem Einfluss der Korrosion. *atw - Internationale Zeitschrift für Kernenergie* 54(5), 303–306, 2009.

Neumann et al. (2018)

Neumann, A., Klinkenberg, M. & Curtius, H.: Analysis of the Secondary Phases Formed by Corrosion of U₃Si₂-Al Research Reactor Fuel Elements in the Presence of Chloride Rich Brines. *Materials* (Basel, Switzerland) 11(7), DOI 10.3390/ma11071121, 2018.

NWMO (2018)

Nuclear Waste Management Organization (NWMO): Évaluation de la sûreté post-fermeture d'un dépôt de combustible irradié en roche sédimentaire, WMO-TR-2018-08, 2018.

OECD-NEA (2016)

Organisation for Economic Co-operation and Development - Nuclear Energy Agency (OECD-NEA): Scenario Development Workshop Synopsis. Integration Group for the Safety Case. Radioactive Waste Management, NEA/RWM/R(2015)3: Paris, März 2016.

OECD-NEA (2019)

Organisation for Economic Co-operation and Development - Nuclear Energy Agency (OECD-NEA): NEA Feature, Event and Process (FEP) Database, <https://www.oecd-nea.org/fepdb>, abgerufen am 21. April 2022, Stand von 2019

Philipp & Weyand (2024)

Philipp, T. & Weyand, T.: Behälterkorrosion und Hydrogeochemie im Kontext der Endlagerung im Kristallingestein in Deutschland. Forschungsbericht im Rahmen des Projekts Langzeitintegrität von Behältern in Kristallingestein (LaKris). Forschungskennzahl 4722B10401, Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung (BASE). BASE-Forschungsbericht, BASE-007/25: Berlin, März 2024.

Posiva Oy & SKB (2017)

Posiva Oy & Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB): KBS-3H System Design Phase. 2011–2016: Final Report, Posiva SKB Report 06, 159 S.: Eurajoki / Stockholm, Juli 2017.

Posiva Oy (2013)

Posiva Oy: Safety case for the disposal of spent nuclear fuel at Olkiluoto. Performance Assessment 2012. POSIVA, 2012-04, 520 S., ISBN 978-951-652-185-8, Eurajoki, Finland: Olkiluoto, February 2013.

Posiva Oy (2020)

Posiva Oy: Image Gallery, https://www.posiva.fi/material/sites/posivaextra/20201009131250/7KyIuY9mD/monieste_ylatekstit.jpg, abgerufen am 12. Juni 2025

RWMC (2024)

Radioactive Waste Management Committee (RWMC): International Features, Events and Processes (IFEP) List for the Deep Geological Disposal of Radioactive Waste. Version 3.1, NEA/RWM/R(2024)2, November 2024.

Schlottmann & Schnegas (2016)

Schlottmann, D. & Schnegas, H.: Schädigung und Versagen technischer Gebilde. In: Schlottmann, D. & Schnegas, H. (Hrsg.): Auslegung von Konstruktionselementen. 67–122, ISBN 978-3-662-48806-5, DOI 10.1007/978-3-662-48807-2_3, Springer Berlin Heidelberg: Berlin, Heidelberg, 2016.

Serrano-Purroy et al. (2012)

Serrano-Purroy, D., Clarens, F., González-Robles, E., Glatz, J. P., Wegen, D. H., Pablo, J. de, Casas, I., Giménez, J. & Martínez-Esparza, A.: Instant release fraction and matrix release of high burn-up UO₂ spent nuclear fuel: Effect of high burn-up structure and leaching solution composition. *Journal of Nuclear Materials* 427(1-3), 249–258, DOI 10.1016/j.jnucmat.2012.04.036, 2012.

Shoesmith & Zagidulin (2011)

Shoesmith, D. W. & Zagidulin, D.: The corrosion of zirconium under deep geologic repository conditions. *Journal of Nuclear Materials* 418(1-3), 292–306, DOI 10.1016/j.jnucmat.2011.07.028, 2011.

SKB (2010)

Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB): Corrosion calculations report for the safety assessment SR-Site. SKB Technical Report, TR-10-66, 52 S.: Stockholm, Sweden, Dezember 2010.

SKB (2011a)

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.

StandAG (2017)

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 5. Mai 2017 (BGBl. I 2017, Nr. 26, S. 1074-1100).

SKB (2011b)

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, 555-893: Stockholm, Sweden, März 2011.

Swedish Corrosion Institute (1978)

Swedish Corrosion Institute: Copper as Canister Material for Unreprocessed Nuclear Waste - Evaluation with Respect to Corrosion, KBS, KBS-TR-90, 1978.

The Board of Trustees of the Science Museum (2025)

The Board of Trustees of the Science Museum: Section of zircaloy fuel rod, 1982. CC BY-NC-SA 4.0 Licence, <https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/4.0/legalcode.en>, Science Museum Group, https://coimages.science museum group.org.uk/58/224/large_1982_1446.jpg, abgerufen am 4. Februar 2025

Valls et al. (2014)

Valls, A., Duro, L. & González-Robles, E.: IRF Database. In: State of the Art report. Deliverable D5.1, 3rd update., 2014.

Vondrovic et al. (2020)

Vondrovic, L., Augusta, J., Vokál, A., Havlová, V., Konopáčová, K., Lahodová, Z., Popelová, E., Urík, J., Baier, J., Bukovská, Z., Bureš, P., Buriánek, D., Butovič, A., Černý, M., Dušek, K., Franěk, J., Grünwald, L., Gvoždík, L., Hanzl, P., Holeček, J., Hrdličková, K., Hroch, T., Hubáček, O., Jelének, J., Jelínek, J., Kachlíková, R., Kobylka, D., Kryštofová, E., Kučera, R.: Kunceová, E., Jankovec, J., Krajíček, L., Marek, P., Martinčík, J., Milícký, M., Mixa, P., Nahodilová, R., Pertoldová, J., Petyniak, O., Polák, M., Rukavičková, L., Sedláčková, I., Skořepa, Z., Soejono, I., Šír, P., Špinka, O., Štědrá, V., Švagera, O., Uhlík, J., Verner, K., Vojtěchová, H., Zahradník, O., Žáček, V. & Žáčková, E.: The selection of potential sites for the Czech deep geological repository in the next stage of research from 2020, Czech Radioactive Waste Repository Authority (SÚRAO). Technical Report, TZ465/2020, 288 S., 2020.

Weihmann et al. (2020)

Weihmann, S., Loeckle, F. & Kumar, V.: Kristallines Wirtsgestein in der Endlagerung: Überblick zu Standortverfahren, Datenerhebung und Modellierung. Ergebnisbericht, Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR), 58 S.: Hannover, 16. November 2020.

Weyand & Kock (2016)

Weyand, T. & Kock, I.: Integritätsgefährdende Prozesse in internationalen Sicherheitskonzepten für die Wirtsgesteine Tonstein und Kristallin. Bericht zum Arbeitspaket 3. Weiterentwicklung des internationalen Stands von Wissenschaft und Technik zu Methoden und Werkzeugen für Betriebs- und Langzeitsicherheitsnachweise, GRS-428, 71 S., ISBN 978-3-946607-10-6, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Köln, September 2016.

Wolf et al. (2021)

Wolf, J., Becker, D., Flügge, J., Frank, T. & Jönen, M.: Bewertung des sicheren Einschlusses von Radionukliden in Endlagersystemen im Kristallingestein. Ergebnisse aus dem Vorhaben CHRISTA-II; FKZ: O2E11617B, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit gGmbH (GRS). GRS-Bericht, GRS-658, 129 S., ISBN 978-3-949088-49-0: Köln, November 2021.

Yano et al. (2022)

Yano, K. H., Kohnert, A. A., Kaspar, T. C., Taylor, S. D., Spurgeon, S. R., Kim, H., Wang, Y., Uberuaga, B. P. & Schreiber, D. K.: Dose rate dependent cation & anion radiation enhanced diffusion in hematite. *Journal of Materials Chemistry A* 10(45), 24167–24177, DOI 10.1039/D2TA03403D, 2022.

Yu & Neretnieks (1997)

Yu, J.-W. & Neretnieks, I.: Diffusion and Sorption Properties of Radionuclides in Compacted Bentonite. Department of Chemical Engineering and Technology (Hrsg.), Royal Institute of Technology (KTH), TR 97-12, 1997.

7 Abbildungsverzeichnis

Abb. 2-1:	Copper Sulphide Model (CSM) zur Modellierung der gleichmäßigen Korrosion von Kupfer in einer Bentonitumgebung unter Einwirkung von Sulfid (King et al. 2011)	12
Abb. 3-1:	Multi-Barrierensystem im KBS-3-Konzept (Posiva Oy 2020).....	17
Abb. 3-2:	POLLUX®-9 Behälter mit äußerem Abschirmbehälter (1) und innerem Behälter (3) (Bertrams et al. 2017)	18
Abb. 3-3:	(Geo-)technisches Multi-Barrierenkonzept als stilisierte Quader mit Defekten (gelb)	18
Abb. 3-4:	Brennstab mit Pellets und Anschnitt der Zirkalloyhülle (Science Museum Group 2025).....	23
Abb. 3-5:	Radionuklidtransport durch Zirkalloyhülle und Wandung des Außenbehälters sowie Diffusion mit Sorption im korrodierten Innenbehälter und Bentonit.....	25
Abb. 3-6:	Anteil defekter Zirkalloyhüllen und Außenbehälter sowie fehlender Wandung in Abhängigkeit von der Zeit (hypothetische Annahmen).....	28
Abb. 3-7:	Radionuklidanteile der IRF und durch Auflösung der Pellets im Brennstab (hypothetische Annahmen).....	29
Abb. 3-8:	Anteil der Radionuklide im Innenbehälter.....	29
Abb. 3-9:	Austrag von Radionukliden in das kristalline Wirtsgestein ohne bzw. mit Diffusion und Sorption (hypothetische Annahmen)	30

8 Tabellenverzeichnis

Tabelle 1:	Methodische Ansätze zur Modellierung der Korrosion von Endlagerbehältern aus Kupfer und Kohlenstoffstahl, basierend auf (King & Kolář 2019b; King et al. 2023; Abdelouas et al. 2022)	8
------------	---	---