

# Sicherheitsforschung zur Endlagerung

K. Gompper, R. Klenze, H. Geckeis, B. Kienzler, T. Fanghänel, INE

## Einleitung

Die Endlagerung radioaktiver Abfälle soll in Deutschland in tiefen geologischen Formationen erfolgen, um sicherzustellen, dass diese Abfälle auch zukünftig zu keiner unzulässigen Belastung der Biosphäre führen. Die Verantwortung für die sichere Endlagerung liegt dabei bei der Bundesregierung. Die FuE-Arbeiten zur Langzeitsicherheit der Endlagerung, die im Institut für Nukleare Entsorgung (INE) durchgeführt werden, sind gesellschaftliche Vorsorgeforschung und langfristig angelegt.

Die technischen Fragen für den Bau und Betrieb eines Endlagers

sind heute weitgehend geklärt. Die Langzeitsicherheit eines Endlagers für hochradioaktive Abfälle ist jedoch durch technische Systeme allein nicht nachweisbar. Vielmehr muss das Verhalten langlebiger Radionuklide unter den geochemischen Bedingungen eines Endlagers in tiefen geologischen Formationen verstanden werden, um Werkzeuge und Daten für eine belastbare Langzeitsicherheitsanalyse bereitzustellen.

Da in Deutschland noch keine Entscheidung über den Standort eines Endlagers für hochradioaktive Abfälle getroffen wurde, sind alle derzeit international diskutierten Wirtsgesteinsformationen (Salz, Hart-

gestein, Ton) in die Untersuchungen einbezogen. Die FuE-Arbeiten des INE fokussieren sich dabei auf die Actiniden und langlebigen Spaltprodukte (Abb. 1). Nach dem Abklingen des Hauptteils der Spaltprodukte (300 Jahre) bestimmen die Actiniden das Radiotoxizitätspotential der hochradioaktiven Abfälle über hunderttausende von Jahren.

## Grundlegende Untersuchungen

Belastbare Voraussagen zur Radionuklidfreisetzung über große Zeiträume, wie sie für Langzeitsicherheitsanalysen gefordert werden, lassen sich nicht durch die zeitliche Extrapolation makroskopisch beobachteter Phänomene erhalten. Prognosen können nur auf Basis des Verständnisses relevanter Prozesse auf molekularem Niveau und der Anwendung der Kenntnisse auf natürliche Systeme erfolgen. Das Konzept eines geochemisch geführten Sicherheitsnachweises basiert auf der Identifizierung und Quantifizierung der für die Mobilisierung oder Immobilisierung von Radionukliden verantwortlichen Reaktionen unter den geochemischen Bedingungen des Nah- und Fernbereichs eines Endlagers. Der Vorteil dieses Ansatzes liegt darin, dass die Aussagen weitgehend auf fundamentalen Gesetzmäßigkeiten (Gleichgewichtsthermodynamik) basieren. Die Qualität der Aussagen hängt dabei in erster Linie vom Grad des mechanistischen Verständnisses und der Belastbarkeit und Verfügbarkeit thermodynamischer Daten ab.

So wurde beispielsweise mit der Aufklärung wesentlicher Mecha-

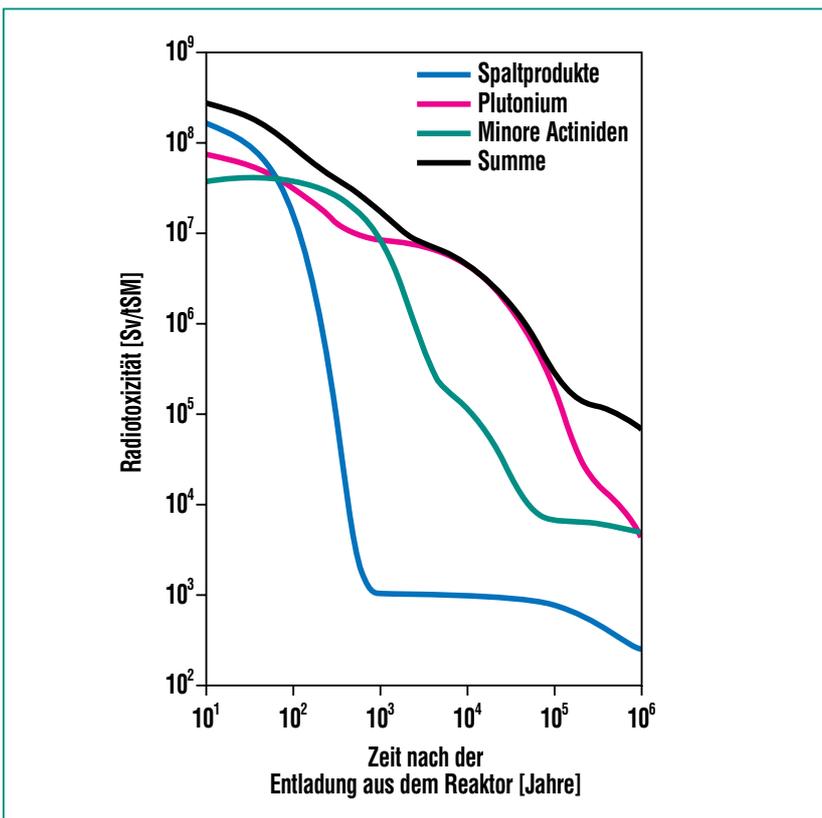
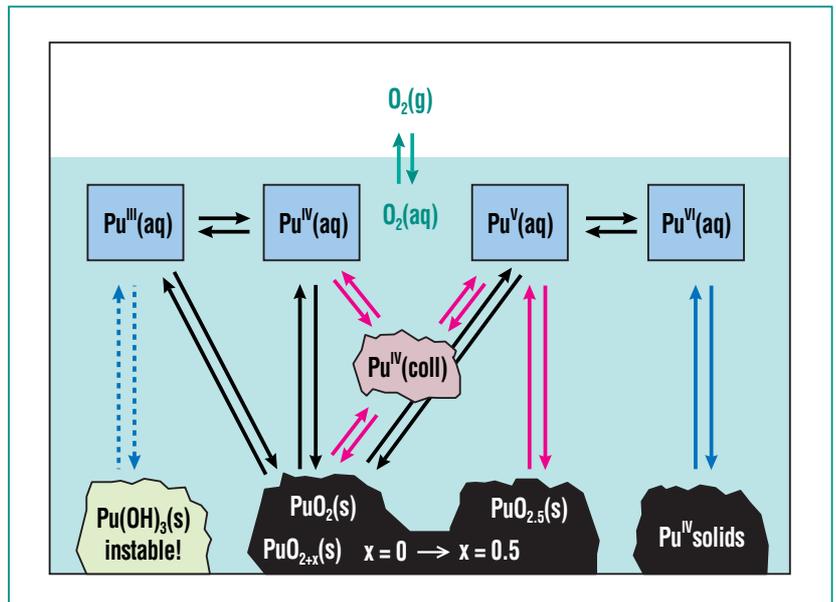


Abb. 1: Verlauf der Radiotoxizität von 1 Tonne abgebranntem Kernbrennstoff (Anreicherung: 4,2 % <sup>235</sup>U; Abbrand: 50 GWd/t) mit der Zeit. Beiträge von Spaltprodukten, Plutonium und Minoren Actiniden.

nismen zu den Redox-, Hydrolyse- und Fest/Flüssig-Reaktionen von Plutonium (Pu) im letzten Jahr ein Durchbruch erzielt (Abb. 2). Erstmals konnte die Bildung von amorphen Oxiden/Hydroxiden der allgemeinen Form  $\text{PuO}_{2+x}$  ( $x < 0.25$ ) in wässriger Lösung eindeutig nachgewiesen werden. Ferner wurde als wichtiger Reaktionspartner kolloidales Pu(IV)-Hydroxid identifiziert. Die ablaufenden Reaktionen der Pu-Spezies sind durchweg Gleichgewichtsreaktion und lassen sich thermodynamisch quantifizieren. Damit konnten seit Jahren offene Fragen der Pu-Chemie gelöst und der Weg für eine weitergehende Aufklärung der Redox- und Komplexbildungsreaktionen von Pu unter endlagerrelevanten Bedingungen geebnet werden.

### Anwendungsorientierte Untersuchungen

Die Isolierung radioaktiver Abfälle von der Biosphäre in tiefen geologischen Formationen über Zeiträume von mehreren hunderttausend Jahren bietet ein Höchstmaß an Sicherheit. Durch ein Multibarriersystem bestehend aus technischer Barriere (Abfallprodukt, Behälter), geotechnischer Barriere (Versatzmaterial, Dammbauwerke) und geologischer Barriere (Wirtsgestein, Deckgebirge) soll die Radionuklidfreisetzung aus einem Endlager wirkungsvoll verhindert werden. Die anwendungsorientierten Untersuchungen haben zum Ziel, die Radionuklidmobilität bzw. -rückhaltung in den verschiedenen Barrieren als Funktion der geochemischen Bedingungen zu quantifizieren und durch



**Abb. 2:** Löslichkeits- und Redoxpotenzial bestimmende Gleichgewichtsreaktionen (Pfeile) der gelösten (aq), festen (s) und kolloidalen (coll) Pu-Spezies (Wertigkeitsstufen III bis VI) in saurer Lösung an Luft.

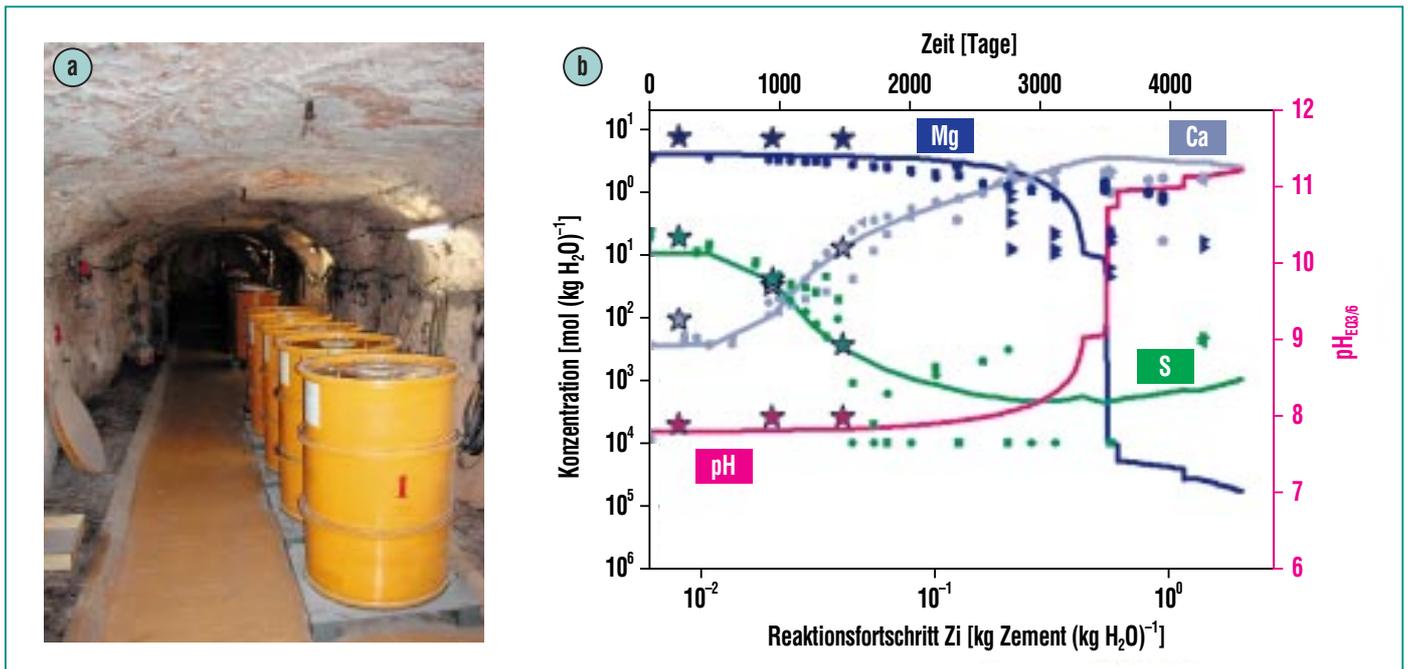
geeignete Maßnahmen zu optimieren.

Die Freisetzung von Radionukliden aus Abfällen in einem Endlager hängt entscheidend davon ab, welches geochemische Milieu sich nach einem Wasserzutritt einstellt. Das INE untersucht diese Fragestellung in einem Langzeitversuch im Forschungsbergwerk Asse, einem ehemaligen Salzbergwerk, in dem zwischen 1967 und 1978 schwach- und mittelradioaktive Abfälle eingelagert wurden. Bei den Experimenten wurden zementhaltige Abfallprodukte über viele Jahre konzentrierter Salzlauge ausgesetzt (Abb. 3a) und die Korrosion des Zementproduktes ebenso verfolgt wie die Entwicklung der Lösungszusammensetzung und die Änderung physikochemischer Eigenschaften, wie etwa pH-Wert und Redoxpotenzial. Die experimentellen Ergebnisse zeigen, dass

sich die ablaufenden chemischen Reaktionen relativ schnell Gleichgewichtszuständen annähern (Abb. 3b), was durch Modellrechnungen bestätigt wurde. Dies eröffnet die Möglichkeit, durch thermodynamische Gleichgewichtsrechnungen die Wirksamkeit der (geo-)technischen Barrieren im Nahbereich der Abfälle belastbar abzuschätzen. Auf der Basis dieses Ansatzes wurde für das Forschungsbergwerk Asse ein Verfüllkonzept erarbeitet, das Bestandteil des Langzeitsicherheitsnachweises ist.

### Entwicklung und Anpassung von Speziationsmethoden

Die Mobilisierung und Immobilisierung von Radionukliden im Nah- und Fernbereich eines Endlagers wird durch eine Vielzahl komplexer



**Abb. 3: Langzeit-Korrosionsexperimente mit zementierten schwach- und mittelradioaktiven Abfallsimulaten:**  
**a) Versuchsanordnung auf der 490-Meter-Sohle im Forschungsbergwerk Asse;**  
**b) Entwicklung der Lösungszusammensetzung bei Korrosionsexperimenten mit  $MgCl_2$ -reicher Salzlösung: die Symbole kennzeichnen die gemessenen pH-Werte sowie die Lösungskonzentration an Calcium, Magnesium und Schwefel, die Linien kennzeichnen die durch geochemische Modelle vorhergesagten Veränderungen des pH-Werts sowie der Lösungskonzentrationen.**

Reaktionen kontrolliert, zu denen beispielsweise Auflösung, Hydrolyse, Redox- und Komplexbildungsreaktionen, Sorption, Bildung von sekundären Phasen oder Kolloidbildung gehören. Zur Quantifizierung und Charakterisierung der Radionuklide und zur Aufklärung der Reaktionsmechanismen werden hoch sensitive und selektive Speziationmethoden eingesetzt. Die am INE verfügbaren spektroskopischen Methoden zur Actinidenspeziation stellen modernste, sich ergänzende Techniken dar, die für die Vielzahl von Problemstellungen der nuklearen Entsorgung kontinuierlich weiterentwickelt und angepasst werden. Im Jahr 2005 erfolgte die aktive Inbetriebnahme der INE-Beamline zur

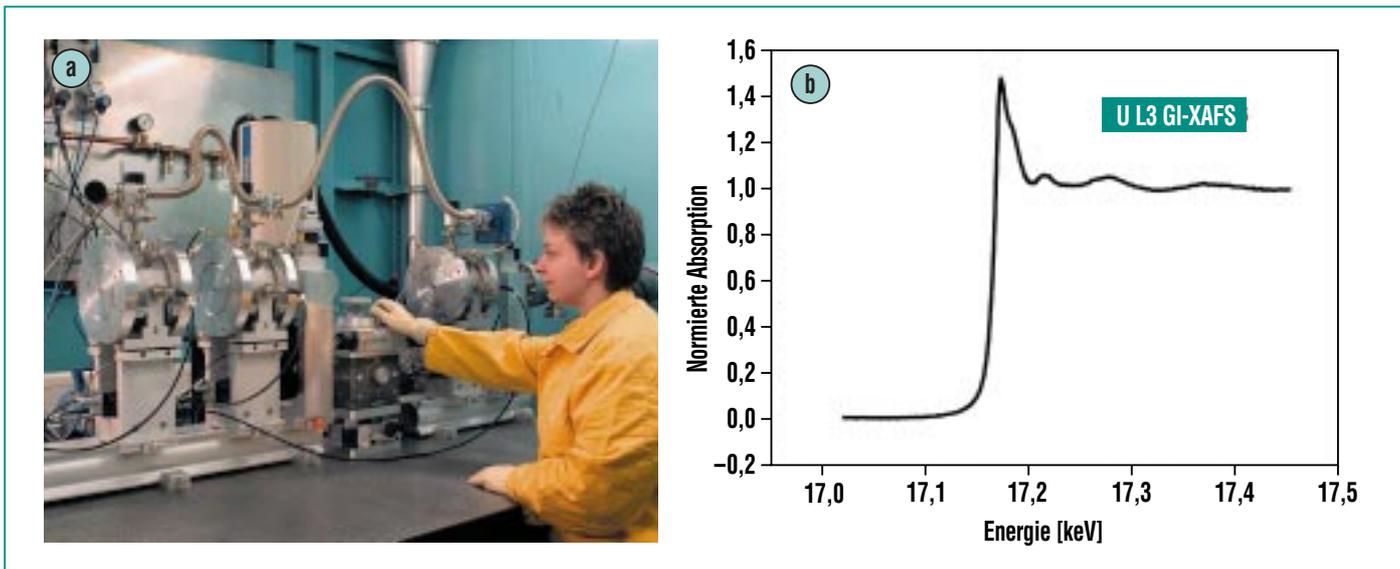
Actinidenforschung an der ANKA, die international große Beachtung fand, und bereits im ersten Jahr zu einer Vielzahl an Kooperationen mit in- und ausländischen Wissenschaftlern führte. Durch die Kombination mit den experimentellen und analytischen Einrichtungen in den aktiven Laboratorien des INE wurde damit eine in Europa einmalige Einrichtung zur Actinidenforschung geschaffen (Abb. 4).

### Zusammenfassung und Ausblick

Die FuE-Arbeiten im INE zur Sicherheitsforschung der Endlagerung radioaktiver Abfälle liefern Beiträge zu einem geochemisch

fundierten Langzeitsicherheitsnachweis. Sie sind so ausgerichtet, dass grundlegende Untersuchungen zur aquatischen Chemie der Actiniden und langlebigen Spaltprodukte mit anwendungsorientierten Untersuchungen an realen Systemen (z. B. in Untertage-labors) synergistisch verknüpft werden. Unverzichtbar ist dabei die konsequente Nutzung und Weiterentwicklung hochempfindlicher und selektiver Speziationmethoden.

Der Zeithorizont für die Standortfindung, die Errichtung und den Betrieb eines Endlagers für hochradioaktive Abfälle reicht bis über die Mitte des Jahrhunderts hinaus. Die geochemisch orientierten grundlegenden und anwendungs-



**Abb. 4: INE-Beamline zur Actinidenforschung an der Synchrotronstrahlenquelle ANKA:**  
a) Blick in die Messhütte; b) Beispiel eines Uran-Röntgenabsorptionsspektrums in der Korrosionsschicht eines simulierten hochradioaktiven Glasproduktes. Durch die spezielle Aufnahmetechnik – streifender Einfall des Röntgenlichtes (grazing incidence x-ray absorption fine structure, GI-XAFS) wurden nur die Uranatome in der bei der Korrosion entstandenen Gelschicht detektiert.

orientierten Arbeiten des INE werden die Bewertung und Erkundung von Standorten und Wirtsformationen für ein deutsches Endlager mit hochradioaktiven Abfällen unterstützen. Nach Auswahl des Endlagerstandortes wird eine konsequente Fokussierung auf standortspezifische Untersuchungen erfolgen und die Errichtung und der

Betrieb des Endlagers werden wissenschaftlich begleitet.

Der Beibehaltung der Kompetenz und der internationalen Spitzenstellung auf dem Gebiet der geochemisch orientierten Endlagersicherheitsforschung kommt dabei entscheidende Bedeutung zu. Die Förderung des wissenschaftlichen

Nachwuchses wird eine der Zentralaufgaben sein, wobei die schon jetzt bestehende enge Einbindung des INE in Lehre und Ausbildung an den Universitäten verstärkt wird.