



BUNDESGESELLSCHAFT
FÜR ENDLAGERUNG

Deckblatt

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd.Nr.	Rev.	Seite: I
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

Titel der Unterlage:

ISTSTANDSANALYSE ZUM GEOCHEMISCHEN MILIEU UND DEM RADIONUKLIDVERHALTEN IN DEN EINLAGERUNGSKAMMERN DER SCHACHTANLAGE ASSE II

Ersteller:

KIT-INE/

Stempelfeld:

bergrechtlich verantwortliche
Person:

atomrechtlich verantwortliche
Person:

Projektleitung:

Freigabe zur Anwendung:

Diese Unterlage unterliegt samt Inhalt dem Schutz des Urheberrechts sowie der Pflicht zur vertraulichen Behandlung auch bei Beförderung und Vernichtung und darf vom Empfänger nur auftragsbezogen genutzt, vervielfältigt und Dritten zugänglich gemacht werden. Eine andere Verwendung und Weitergabe bedarf der ausdrücklichen Zustimmung der BGE.



Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: II
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	

Titel der Unterlage:

ISTSTANDSANALYSE ZUM GEOCHEMISCHEN MILIEU UND DEM RADIONUKLIDVERHALTEN IN DEN EINLAGERUNGSKAMMERN DER SCHACHTANLAGE ASSE II

Rev.	Rev.-Stand Datum	UVST	Prüfer	Rev. Seite	Kat.*	Erläuterung der Revision

*) Kategorie R = redaktionelle Korrektur
Kategorie V = verdeutlichende Verbesserung
Kategorie S = substantielle Änderung
mindestens bei der Kategorie S müssen Erläuterungen angegeben werden

 Bundesamt für Strahlenschutz				Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II			
Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 1 von 67 Stand: 28.02.2017	
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Karlsruher Institut für Technologie (KIT) - Institut für Nukleare Entsorgung (INE)

Eggenstein-Leopoldshafen, 22.3.2017



Bundesamt für Strahlenschutz

**Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu
und dem Radionuklidverhalten in den
Einlagerungskammern der Schachtanlage
Asse II**

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 2 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

Impressum:

Auftraggeber: Bundesamt für Strahlenschutz
Willy-Brandt-Str. 5
38226 Salzgitter
Telefon: 030 18333-0
Telefax: 030 18333-1885
E-Mail: epost@bfs.de
Internet: www.bfs.de

Ersteller:

Karlsruher Institut für Technologie (KIT) Institut für Nukleare Entsorgung (INE)
Internet: www.kit.edu

* Mitarbeit von bis zum 31.12. 2016

Der Bericht wurde im Auftrag des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) erstellt. Das BfS behält sich alle Rechte vor. Insbesondere darf dieser Bericht nur mit Zustimmung des BfS zitiert, ganz oder teilweise vervielfältigt bzw. Dritten zugänglich gemacht werden.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 3 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		Stand: 28.02.2017
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		

Revisionsblatt

Rev.	Rev.-Stand Datum	revidierte Seite	Kat. *)	Erläuterung der Revision

*) Kategorie R = redaktionelle Korrektur
Kategorie V = verdeutlichende Verbesserung
Kategorie S = substantielle Revision
Mindestens bei der Kategorie S müssen Erläuterungen angegeben werden



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 4 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

KURZFASSUNG

Autoren:

Titel: Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Stand: 28.02.2017

Im Rahmen der Notfallplanung für die Schachtanlage Asse II, als auch im Rahmen des bisher vorliegenden Konzepts einer Vollverfüllung der Schachtanlage als Rückfalloption bei Verbleib radioaktiver Abfälle, ist das Langzeitverhalten der Radionuklide in den Einlagerungskammern zu analysieren. Hierfür ist der Zutritt von Salzlösungen zu den Abfällen zu betrachten, in dessen Folge geochemische Prozesse einsetzen, die zur Mobilisierung von Radionukliden führen können. Generell ist der Kenntnisstand für die Beschreibung der kammerspezifischen Bedingungen ausreichend, um zu einer belastbaren Bewertung verschiedener geochemischer Prozesse zu kommen.

In der hier vorliegenden Iststandsanalyse werden der Kenntnisstand und die Datenlage nach aktuellem Stand von Wissenschaft und Technik zum geochemischen Milieu, zur Anwendbarkeit des Modellansatzes eines quasi-geschlossenen Systems, zur aquatischen Chemie und Thermodynamik relevanter Radionuklide, zur Wechselwirkung organischer Abbauprodukte mit Radionukliden, zur Rückhaltung von Radionukliden an Mineraloberflächen und zur möglichen Rekritikalität in den Einlagerungskammern dargestellt. Identifizierte Kenntnisdefizite werden hinsichtlich ihrer erwarteten Relevanz für eine Sicherheitsbetrachtung bewertet. Darüber hinaus wird der Stand bzw. der Bedarf an Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zum Abbau von Ungewissheiten bezüglich der geochemischen / radiochemischen Beschreibung von Prozessen in den Einlagerungskammern ausgewiesen.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 5 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

INHALTSVERZEICHNIS

KURZFASSUNG	4
INHALTSVERZEICHNIS	5
ANHANGSVERZEICHNIS	6
ABKÜRZUNGSVERZEICHNIS	7
1 VERANLASSUNG UND AUFGABENSTELLUNG	9
2 EINLEITUNG	11
3 VORGEHENSWEISE	14
4 ENTWICKLUNG DES GEOCHEMISCHEN MILIEUS UND RADIONUKLIDMOBILISIERUNG IN DEN EINLAGERUNGSKAMMERN	18
4.1 VERTEILUNG DES STOFFLICHEN INVENTARS UND DES RADIONUKLIDINVENTARS IN DEN EINLAGERUNGSKAMMERN	19
4.2 KORROSION VERLORENER BETONABSCHIRMUNGEN IN KAMMERSPEZIFISCHEN LÖSUNGEN.....	20
4.3 RADIONUKLIDMOBILISIERUNG AUS BITUMINIERTEN ABFALLGEBINDEN	22
4.4 ABHÄNGIGKEIT DER METALLKORROSION UND GASBILDUNG VOM GEOCHEMISCHEN MILIEU	23
4.5 SULFATREDUKTION	24
4.6 ABHÄNGIGKEIT DER LÖSUNGSDICHTE VOM GEOCHEMISCHEN MILIEU	25
4.7 GEOCHEMISCHE WIRKSAMKEIT UND STABILITÄT Mg(OH) ₂ -BASIERTER BAUSTOFFE	27
5 ZULÄSSIGKEIT DES MODELLANSATZES EINES QUASI-GESCHLOSSENEN SYSTEMS FÜR DIE ANWENDUNG AUF DIE EINLAGERUNGSKAMMERN	29
6 AQUATISCHE CHEMIE UND THERMODYNAMIK RELEVANTER RADIONUKLIDE IN DER SCHACHTANLAGE ASSE II	31
6.1 AKTUALISIERUNG DES KENNTNISSTANDES ZUR RADIONUKLIDLÖSLICHKEIT UND VORLIEGENDER KAMMERSPEZIFISCHER RADIONUKLIDQUELLTERME	32
6.2 REDOXCHEMIE VON RADIONUKLIDEN UND REDOXKONTROLLIERENDE PROZESSE	33
6.3 PRIMÄR RELEVANTE ANORGANISCHE LIGANDEN: HYDROXID, CARBONAT	35
6.4 SEKUNDÄR RELEVANTE ANORGANISCHE LIGANDEN.....	37
6.5 RADIONUKLIDRÜCKHALTUNG DURCH WECHSELWIRKUNG AN MINERALOBERFLÄCHEN	38
7 DEGRADATION ORGANISCHER KAMMERINHALTSTOFFE SOWIE WECHSELWIRKUNG ORGANISCHER ABBAUPRODUKTE MIT RADIONUKLIDEN	40
7.1 EFFEKT VON ORGANIK AUF DIE ABLEITUNG VON RADIONUKLIDLÖSLICHKEITEN	40
7.2 BEWERTUNG MIKROBIELLER PROZESSE UND ORGANISCHER ABBAUPRODUKTE.....	42
7.3 SORPTIONSRÜCKHALTUNG VON RADIONUKLIDEN BEI ANWESENHEIT VON ORGANIK	43
7.4 DEGRADATION VON ORGANIK.....	44



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 6 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

8	REKRITIKALITÄT IN DEN EINLAGERUNGSKAMMERN	45
	LITERATURVERZEICHNIS.....	47
	ANHANG	52

ANHANGSVERZEICHNIS

Defizitanalyse Asse Sicherheitsbetrachtung – Geochemie. Karlsruher Institut für Technologie (KIT), Institut für Nukleare Entsorgung (INE), Angaben in tabellarischer Form auf Anforderung des Bundesamts für Strahlenschutz, Stand 5. Dezember 2011 (unveröffentlicht).

Gesamtseitenzahl: 67

Stichworte: Schachtanlage Asse II, Stilllegung, Einlagerungskammern, geochemisches Milieu, Radionuklidquellterme, Iststandsanalyse



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 7 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

ABKÜRZUNGSVERZEICHNIS

AGO	Arbeitsgruppe Optionenvergleich
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
bzw.	beziehungsweise
EDTA	Ethylendiamintetraessigsäure
ELB	Einlagerungsbereich
ELK	Einlagerungskammer
FB Asse	Forschungsbergwerk Asse
F&E	Forschungs- und Entwicklungsarbeiten
FEP	Features, Events, Processes
ggf.	gegebenenfalls
GRS	Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit gGmbH
GSF	Gesellschaft für Strahlenforschung
HMGU	Helmholtz Zentrum München - Deutsches Forschungszentrum für Gesundheit und Umwelt
Hrsg.	Herausgeber
INE	Institut für Nukleare Entsorgung
ISA	Isosaccharinsäure
k_{inf}	Neutronenmultiplikationsfaktor
KIT	Karlsruher Institut für Technologie
LAW/MAW	schwach-/mittelradioaktiver Abfall
NAPL	non aqueous phase liquid („nicht-wässrige flüssige Phasen“)
QCS	quasi-closed system ("quasi-geschlossenes System")
Q-Lösung	Lösung im Gleichgewichtspunkt "Q" des quinären Systems Halit-Sylvin-Carnallit-Kainit-H ₂ O
TBP	Tri-n-butyl-phosphat
u.a.	und and[e]re, und and[e]res, unter ander[e]m, unter ander[e]n
VBA	"Verlorene Betonabschirmung", armierter Behältertyp für radioaktive Abfälle
VSG	Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 8 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

W&T Wissenschaft und Technik

W/Z Wasser/Zement-Verhältnis bei der Herstellung von Zementleim

WIPP Waste Isolation Pilot Plant, Endlager für radioaktive Abfälle in New Mexico/USA



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 9 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

1 VERANLASSUNG UND AUFGABENSTELLUNG

In Brennecke et al. (2007) wurden u.a. die beiden Prüfunterlagen des INE zum geochemischen Milieu und zu Quelltermen für die Radionuklide Am, Np, Pu, Ra, Sr, Th und U in den Einlagerungskammern (ELK) der Schachtanlage Asse II (Lützenkirchen et al., 2006; Metz et al., 2006) im Hinblick auf die Anforderungen eines atomrechtlichen Planfeststellungsverfahrens geprüft. Die Autoren wiesen darauf hin, dass beide Prüfunterlagen einen Ansatz zeigten, um bestehende Unsicherheiten zu benennen und in die Betrachtungen zur Abschätzung kammerspezifischer Radionuklidquellterme zu integrieren. Gemäß Brennecke et al. (2007) ermöglichte der von Lützenkirchen et al. (2006) und Metz et al. (2006) gewählte Weg einen ausreichenden Tiefgang. Die Richtigkeit der getroffenen Aussagen und die Vollständigkeit der durchgeführten Rechnungen bezüglich der Unsicherheiten konnten jedoch von Brennecke et al. nicht beurteilt werden. Die Autoren schlussfolgerten, dass in Lützenkirchen et al. (2006) und Metz et al. (2006) bei der Ermittlung der ELK-Radionuklidquellterme plausibel und mit einem für ein atomrechtliches Planfeststellungsverfahren ausreichenden Tiefgang vorgegangen wurde. Jedoch wiesen Brennecke et al. darauf hin, dass es auf Basis der beiden Prüfunterlagen des *Instituts für Nukleare Entsorgung* (INE) nicht nachvollziehbar sei, ob die erzielten Ergebnisse tatsächlich belastbar wären. Im Dezember 2011 wurde vom INE in tabellarischer Form auf Stellungnahmen der *Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit* (GRS), der *Arbeitsgruppe Optionenvergleich* (AGO) sowie des *Bundesamts für Strahlenschutz* (BfS) zu den Prüfunterlagen Lützenkirchen et al. (2006) und Metz et al. (2006) sowie weiterer Berichte des INE eingegangen, die vor dem Jahr 2007 im Zusammenhang mit dem Schließungskonzept der Schachtanlage Asse II des damaligen Betreibers *Helmholtz Zentrum München - Deutsches Forschungszentrum für Gesundheit und Umwelt* (HMGU) erstellt wurden. Dieser Text zur „Defizitanalyse Asse Sicherheitsbetrachtung – Geochemie“ wurde seinerzeit dem BfS übermittelt. Die damaligen Aussagen (siehe Anhang) wurden im Rahmen der vorliegenden Iststandsanalyse überprüft und aktualisiert, insofern es sich um inhaltliche Themen handelt. Neben den damals in den Stellungnahmen behandelten Themen zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II wurden in der Zwischenzeit weitere geochemische, biochemische/mikrobielle und radiochemische Themen identifiziert, die für die Quantifizierung einer potentiellen Radionuklidmobilisierung, die Entwicklung des geochemischen Milieus und den damit verbundenen Auswirkungen auf die Sicherheit in den Einlagerungskammern von Relevanz sind.

Am 29. Mai 2015 wurde das INE vom BfS aufgefordert, eine schriftliche Analyse zum Kenntnisstands und zur Datenlage des geochemischen Milieus sowie der Radionuklidmobilisierung in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II zu erstellen. Diese Iststandsanalyse soll nach derzeitigem Stand von Wissenschaft und Technik (W&T) erfolgen, und identifizierte Kenntnisdefizite sollen hinsichtlich ihrer erwarteten Relevanz für eine Sicherheitsanalyse bewertet werden. Darüber hinaus soll auf Konsequenzen für eine Sicherheitsanalyse hingewiesen werden, falls die jeweiligen Defizite nicht behoben werden. Der Zeitbedarf zum Beheben des Defizits in Asse-relevanten Untersuchungen soll mit den Begriffen „kurzfristig“ (zwei bis drei Jahre), „mittelfristig“ (vier bis fünf Jahre) und „langfristig“ (mehr als fünf Jahre) gekennzeichnet werden. Weitere Forschungs- & Entwicklungsarbeiten (F&E) können dazu dienen, realistischere Einschätzungen der physiko-chemischen Prozesse in den Einlagerungskammern bzw. Einlagerungsbereichen zu erzielen, wodurch gegebenenfalls Konservativitäten reduziert, Anforderungen an technische Barrieren genauer formuliert sowie Optimierungspotentiale hinsichtlich der Schadensvorsorge identifiziert werden können. Im Einzelnen sollen folgende Themen behandelt werden:

- Iststandsanalyse zur Entwicklung des geochemischen Milieus und insbesondere zum Einfluss der Verteilung des stofflichen Inventars auf das geochemische Milieu sowie die



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 10 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

damit verbundene Gasbildung in den Einlagerungskammern bzw. den Einfluss auf den kammer-spezifischen Radionuklidquellterm (Kapitel 4);

- Iststandsanalyse zur Anwendbarkeit des Modellansatzes eines quasi-geschlossenen Systems auf die Einlagerungskammern (Kapitel 5);
- Iststandsanalyse zur aquatischen Chemie und Thermodynamik von Asse-relevanten Radionukliden (Kapitel 6);
- Iststandsanalyse zur Degradation organischer Kammerinhaltsstoffe sowie zur Wechselwirkung organischer Abbauprodukte (u.a. Komplexbildner) mit Radionukliden (Kapitel 7);
- Iststandsanalyse zur möglichen Rekritikalität in den Einlagerungskammern unter Berücksichtigung aktualisierter Kernbrennstoffinventare und -verteilungen (Kapitel 8).



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 11 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

2 EINLEITUNG

In den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II befinden sich radioaktive Elemente, die im Falle eines auftretenden Notfalls durch einen auslegungsüberschreitenden Lösungszutritt und einer nachfolgenden Mobilisierung aus dem Grubengebäude potentiell eine Gefährdung der Biosphäre bewirken können. Entsprechend wichtig ist es, eine auf dem aktuellen Stand von W&T beruhende und belastbare Bewertung verschiedener möglicher Entwicklungen zu schaffen und insbesondere quantitative Aussagen zu der Menge potentiell mobilisierter Radionuklide zu erhalten.

Die Geochemie bzw. Radiochemie liefert auf Basis naturwissenschaftlicher Daten und Prinzipien die Möglichkeit, für verschiedene Entwicklungsstufen das Radionuklidverhalten belastbar einschätzen und quantifizieren zu können. In vielen Fällen, wie beispielsweise im Fall von Löslichkeitsbegrenzungen, können explizite Einflussgrößen identifiziert werden, welche allein auf Grund fundamentaler, naturgesetzmäßiger Stoffeigenschaften eine Rückhaltung der Radionuklide in den Einlagerungsbereichen bewertbar machen. Es handelt sich bei den nachfolgend behandelten geochemischen Prozessen somit um passive, den Bedingungen in den Einlagerungsbereichen der Schachtanlage Asse II inhärente Sicherheitsfunktionen.

Die Menge der verschiedenen Radionuklide ist sehr gering im Vergleich zu den Mengen anderer Kammerinhaltsstoffe, die als Hauptkomponenten in großen Mengen vorhanden sind. Hierzu gehören Misch- und Laborabfälle, Filterabfälle, Metallabfälle, Bauschutt und Verbrennungsrückstände. Neben den Abfällen liegen in großen Mengen Konditionierungsmaterialien wie Zementstein oder Bitumen vor. Als weitere Hauptkomponenten sind die metallischen Behälter, Betonabschirmungen sowie der Salzversatz und gegebenenfalls zutretende Salzlösung zu berücksichtigen. Nach Zutritt der Lauge zu den Abfallgebinden werden verschiedene Prozesse ablaufen, die Mobilisierung von Radionukliden kontrollieren und auf Basis der Geochemie belastbar eingeschätzt werden können. Obwohl es die in diesem Bericht erwähnten Optionen zum Abbau von Unsicherheiten bezüglich der geochemischen Beschreibung von Prozessen in der Schachtanlage Asse II gibt, ist der Kenntnistand im Allgemeinen auch für die erwarteten hochsalinaren Bedingungen eindeutig ausreichend, um zu einer belastbaren Bewertung verschiedener geochemischer Prozesse zu kommen, wie sie beispielsweise im Rahmen der Lizenzierung der US-amerikanischen WIPP (Waste Isolation Pilot Plant) durchgeführt wird. Die Beschreibung des Verhaltens von Radionukliden und deren potentielle Mobilisierung aus den Einlagerungskammern ist von hoher Bedeutung für die Sicherheitsanalyse der Schachtanlage Asse II.

Im Rahmen geochemischer Analysen können verschiedene Prozesse und mögliche Entwicklungen belastbar bewertet werden. Im Kontext dieses Berichts sollen drei wesentliche Einflussfaktoren explizit herausgestellt werden:

- **Entwicklung des geochemischen Milieus.** Die in die Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II zutretende Lauge ist chemisch keinesfalls inert und wird primär mit den Hauptkomponenten der Einlagerungskammern, unter anderem Zementstein und Metalle, reagieren. Als Resultat der verschiedenen Wechselwirkungen zwischen zutretender Lauge und den Hauptkomponenten in den Einlagerungskammern kommt es zu Änderungen der Lösungszusammensetzung und ggf. des pH-Werts der Lösungen. Die Entwicklung des geochemischen Milieus liefert zentrale Parameter, die insbesondere für Prozesse wie Radionuklidmobilisierung oder Gasproduktion von zentraler Relevanz sind. Die Entwicklung des geochemischen Milieus ist im Rahmen gezielter geochemischer



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 12 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

Analysen für diverse Entwicklungszustände belastbar einschätzbar, wobei die geochemische Modellierung mit einer geeigneten thermodynamischen Datenbasis sowie experimentellen Analysen bzw. Validierung etablierte Arbeitstechniken sind. In den nachfolgenden Kapiteln „Entwicklung des geochemischen Milieus und Radionuklidmobilisierung in den Einlagerungskammern“ und „Zulässigkeit des Modellansatzes eines quasi-geschlossenen Systems für die Anwendung auf die Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II“ dieses Berichts werden spezifische Optimierungsmöglichkeiten hinsichtlich des Abbaus von Unsicherheiten, insbesondere für die Bestimmung des geochemischen Milieus in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II, detailliert dargestellt.

- **Begrenzung der Löslichkeit von Radionukliden.** Die Löslichkeit eines beliebigen Stoffes in einer gegebenen wässrigen Lösung ist eine fundamentale chemische Größe und als solche anhand von thermodynamischen Daten zu berechnen oder gegebenenfalls experimentell zu bestimmen. Letztlich wird anhand von Löslichkeiten das Verteilungsverhältnis von gelöstem Material zu in fester Form vorhandenem Material angegeben. Das Löslichkeitsverhalten eines Materials entwickelt sich generell systematisch als Funktion der (geo)chemischen Randbedingungen. Somit ist es möglich, bei entsprechender Kenntnis der möglichen geochemischen Randbedingungen (siehe oben), für die Radionuklide in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II maximale Löslichkeitskonzentrationen der Radionuklide zu bestimmen, die potentiell mit der Lösung aus dem Einlagerungsbereich mobilisiert werden können. Das restlich vorhandene Inventar des Radionuklids wird als Festkörper in der Einlagerungskammer verbleiben und kann gegebenenfalls nachgelöst werden. Im Unterschied zu leichtlöslichen Radionukliden wie Co-60, Cs-137 und Sr-90 wird beispielsweise ein Großteil des Americiums, Plutoniums und anderer Actiniden als Festkörper vorliegen und nicht mit der Lösung transportiert werden. Hierdurch ist für die Bedingungen der Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II ein intrinsischer passiver Rückhalte Mechanismus für schwerlösliche Radionuklide gegeben, der für die Bewertung einer potentiellen Radionuklid Ausbreitung entscheidend ist. Spezifische Möglichkeiten zum Abbau vorhandener Unsicherheiten bei der Bestimmung von Radionuklidlöslichkeitsgrenzen und Radionuklidquelltermen unter den Bedingungen in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II werden im Kapitel „Aquatische Chemie und Thermodynamik relevanter Radionuklide in der Schachtanlage Asse II“ dieses Berichts diskutiert. Die Einschätzung von Radionuklidlöslichkeiten und belastbaren ELK-Radionuklidquelltermen ist unverzichtbar für die quantitative Beschreibung von Ausbreitungsprozessen und die Bewertung der Sicherheit der Schachtanlage Asse II.
- **Sorptionsrückhaltung von Radionukliden.** Gelöste Radionuklide verhalten sich keinesfalls inert, sondern gehen Wechselwirkungen mit verschiedenen vorhandenen Oberflächen ein. Zusätzlich zu den Löslichkeitsphänomenen führen Sorptionsprozesse zu einem weiteren Verteilungsprozess zwischen gelösten (in Lösung mobilen) und sorbierten (auf den Oberflächen zurückgehaltenen) Radionuklidspezies. Auch in diesem Fall entwickelt sich die Sorptionsrückhaltung systematisch als Funktion der geochemischen Bedingungen, sowie der Charakteristik von vorhandenen Feststoffen. Auf Basis von geochemischen Analysen bzw. im Rahmen von spezifischen experimentellen Untersuchungen sind belastbare Aussagen zur Rückhaltung von Radionukliden durch Sorptionsprozesse ableitbar. Möglichkeiten zum Abbau von spezifischen Unsicherheiten werden in den Abschnitten „Radionuklidrückhaltung durch Wechselwirkung an Mineraloberflächen“ und „Sorptionsrückhaltung von Radionukliden bei Anwesenheit von Organik“ dieses Berichts diskutiert. Da Sorptionsprozesse zu einer Verringerung der Menge



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 13 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

an gelösten (mobilen) Radionuklidspezies führen, stellt die Sorptionsrückhaltung von Radionukliden an Festkörperoberflächen einen zweiten intrinsischen, passiven Rückhaltemechanismus dar. Als solcher ist die belastbare Bewertung der Sorptionsrückhaltung von Radionukliden ebenfalls von Bedeutung für die quantitative Beschreibung der Ausbreitungsprozesse und damit für die Bewertung der Sicherheit der Schachtanlage Asse II.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 14 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

3 VORGEHENSWEISE

Für die Bewertung der geochemischen, biochemischen/mikrobiellen und radiochemischen Prozesse auf eine potentielle Radionuklidmobilisierung sind diese im Zusammenhang mit dem Systemverhalten der jeweiligen Einlagerungskammern bzw. des gesamten Grubengebäudes zu betrachten. Für ein potentielles Endlager für wärmeentwickelnde radioaktive Abfälle im Salzgestein wurden von Wolf et al. (2012a; 2012b) ein Katalog der auf das Endlagersystem möglicherweise Einfluss nehmenden Merkmale, Ereignisse und Prozesse (FEP, Features, Events, Processes) zusammengestellt, wobei in dieser Studie die geochemischen, biochemischen/mikrobiellen und radiochemischen FEPs vom INE beschrieben wurden. Dieser FEP-Katalog des Projekts „Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben“ (VSG) wird als derzeitiger Stand von Wissenschaft und Technik hinsichtlich der Berücksichtigung der Inhalte der FEPs und deren Verknüpfung untereinander in einer Sicherheitsanalyse für ein neu zu errichtendes Endlager in Salzgestein angesehen. Der Kenntnisstand des FEP-Katalogs von Wolf et al. (2012a; 2012b), insbesondere die Koppelung verschiedener FEPs mit geochemischen, biochemischen/mikrobiellen und radiochemischen Prozessen, wurde in der aktuellen Iststandsanalyse berücksichtigt. Obwohl der FEP-Katalog für ein neu zu errichtendes Endlager für wärmeentwickelnde radioaktive Abfälle entwickelt wurde, sind eine Reihe der behandelten FEPs auch für die Systembeschreibung der Einlagerungskammern in der Schachtanlage Asse II von Relevanz. Im Hinblick auf die geochemischen, biochemischen/mikrobiellen und radiochemischen Prozesse in den Einlagerungsbereichen der Schachtanlage Asse II sind dies die in Tabelle 1 aufgeführten FEPs.

Zu den FEPs 2.1.03.02 (Sonstige Endlagerbehälter), 2.1.07.04 (Nicht thermisch induzierte Volumenänderung von Materialien), 2.1.13.03 (Radiolyse), 3.2.04.01 (Kolloide), 3.2.07.01 (Radionuklidtransport in der flüssigen Phase), 3.2.07.02 (Advektion), 3.2.07.04 (Diffusion) und 3.2.07.06 (Sonstige Transportprozesse) werden in dieser Iststandsanalyse keine Bezüge hergestellt, da die zugehörigen geochemischen und radiolytischen Prozesse als nicht relevant auf die Radionuklidfreisetzung bzw. -rückhaltung in den Einlagerungskammern betrachtet werden. Die FEPs 3.2.07.01 bis 3.2.07.06 sind allerdings von hoher Bedeutung für die Radionuklidausbreitung im Grubengebäude.

Diese Iststandsanalyse beinhaltet keine Begutachtung („review“) der verfügbaren Publikationen zum Radionuklidverhalten oder zur chemischen Umsetzung von Kammerinhaltsstoffen in salinaren Lösungen, jedoch wird die Analyse auf Grundlage veröffentlichter Studien zu geochemischen, biochemischen/mikrobiellen und radiochemischen Prozessen in salinaren Systemen durchgeführt und solche mit Relevanz für die Einlagerungskammern benannt. Die vorgestellten Prozesse und Zusammenhänge werden im Rahmen der aktuellen Iststandsanalyse nicht mittels eigener Modellrechnungen oder experimenteller Studien überprüft.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 15 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

Tabelle 1: Auf ein Endlagersystem möglicherweise Einfluss nehmende Merkmale, Ereignisse und Prozesse, FEPs, aus Wolf et al. (2012a; 2012b) und Bezüge zu Abschnitten in der Iststandsanalyse.

FEP-Nr.	FEP-Name	Abschnitt in Iststandsanalyse
2.1.01.01	Inventar: Radionuklide	"Verteilung des stofflichen Inventars und des Radionuklidinventars in den Einlagerungskammern"
2.1.01.02	Inventar: Metalle	"Verteilung des stofflichen Inventars und des Radionuklidinventars in den Einlagerungskammern"
2.1.01.03	Inventar: Organika	"Verteilung des stofflichen Inventars und des Radionuklidinventars in den Einlagerungskammern"
2.1.01.04	Inventar: Sonstige Stoffe	"Verteilung des stofflichen Inventars und des Radionuklidinventars in den Einlagerungskammern"
2.1.02.01	Abfallmatrix	„Korrosion Verlorener Betonabschirmungen in kammer-spezifischen Lösungen“ und „Radionuklidmobilisierung aus bituminierten Abfallgebänden“
2.1.03.02	Sonstige Endlagerbehälter	kein Bezug, da nicht sicherheitsrelevant auf die Radionuklidfreisetzung bzw. – Rückhaltung in Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II
2.1.07.04	Nicht thermisch induzierte Volumenänderung von Materialien	kein direkter Bezug zu Abschnitten in Iststandsanalyse
2.1.08.07	Strömungsvorgänge im Grubengebäude	"Abhängigkeit der Lösungsdichte vom geochemischen Milieu"
2.1.09.01	Geochemisches Milieu im Grubenbau	"Entwicklung des geochemischen Milieus und Radionuklidmobilisierung in den Einlagerungskammern" und „Verteilung des stofflichen Inventars und des Radionuklidinventars in den Einlagerungskammern“
2.1.09.02	Auflösung und Ausfällung	"Aquatische Chemie und Thermodynamik relevanter Radionuklide in der Schachtanlage Asse II" und "Redoxchemie von Radionukliden und redoxkontrollierende Prozesse"
2.1.09.03	Metallkorrosion	"Abhängigkeit der Metallkorrosion und Gasbildung vom geochemischen Milieu"
2.1.09.06	Korrosion von Materialien mit Zement- oder Sorelphasen	"Korrosion Verlorener Betonabschirmungen in kammer-spezifischen Lösungen" und "Geochemische Wirksamkeit und Stabilität Mg(OH) ₂ -basierter Baustoffe"



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 16 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

Tabelle 1 (Fortsetzung): Auf ein Endlagersystem möglicherweise Einfluss nehmende Merkmale, Ereignisse und Prozesse, FEPs, aus Wolf et al. (2012a; 2012b) und Bezüge zu Abschnitten in der Iststandsanalyse.

FEP-Nr.	FEP-Name	Abschnitt in Iststandsanalyse
2.1.10.01	Zersetzung von Organika	"Degradation organischer Kammerinhaltsstoffe sowie Wechselwirkung organischer Abbauprodukte mit Radionukliden" und "Degradation von Organik"
2.1.10.02	Mikrobielle Prozesse im Grubengebäude und im Salzstock	"Bewertung mikrobieller Prozesse und organischer Abbauprodukte"
2.1.12.01	Gasbildung	"Abhängigkeit der Metallkorrosion und Gasbildung vom geochemischen Milieu"
2.1.12.02	Gasmenge im Grubenbau	"Abhängigkeit der Metallkorrosion und Gasbildung vom geochemischen Milieu"
2.1.13.03	Radiolyse	kein Bezug, da nicht sicherheitsrelevant auf die Radionuklidfreisetzung bzw. – Rückhaltung in Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II
2.1.14.01	Erreichen einer kritischen Ansammlung (Kritikalität)	"Rekritikalität in den Einlagerungskammern"
2.2.10.05	Thermochemische Sulfatreduktion	"Sulfatreduktion"
3.2.01.01	Radionuklidmobilisierung	"Radionuklidmobilisierung aus bituminierten Abfallgebänden"
3.2.03.01	Sorption und Desorption	"Radionuklidrückhaltung durch Wechselwirkung an Mineraloberflächen" und "Sorptionsrückhaltung von Radionukliden bei Anwesenheit von Organik"
3.2.04.01	Kolloide	kein Bezug, da nicht relevant auf die Radionuklidfreisetzung bzw. –Rückhaltung in den Einlagerungskammern, allerdings von hoher Bedeutung für die Radionuklidausbreitung im Grubengebäude
3.2.05.01	Komplexbildung	"Primär relevante anorganische Liganden: Hydroxid, Carbonat" und "Effekt von Organik auf die Ableitung von Radionuklidlöslichkeiten"
3.2.07.01	Radionuklidtransport in der flüssigen Phase	kein Bezug, da nicht relevant auf die Radionuklidfreisetzung bzw. –Rückhaltung in den Einlagerungskammern, allerdings von hoher Bedeutung für die Radionuklidausbreitung im Grubengebäude



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 17 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

Tabelle 1 (Fortsetzung): Auf ein Endlagersystem möglicherweise Einfluss nehmende Merkmale, Ereignisse und Prozesse, FEPs, aus Wolf et al. (2012a; 2012b) und Bezüge zu Abschnitten in der Iststandsanalyse.

FEP-Nr.	FEP-Name	Abschnitt in Iststandsanalyse
3.2.07.02	Advektion	kein Bezug, da nicht relevant auf die Radionuklidfreisetzung bzw. –Rückhaltung in den Einlagerungskammern, allerdings von hoher Bedeutung für die Radionuklidausbreitung im Grubengebäude
3.2.07.04	Diffusion	kein Bezug, da nicht relevant auf die Radionuklidfreisetzung bzw. –Rückhaltung in den Einlagerungskammern, allerdings von hoher Bedeutung für die Radionuklidausbreitung im Grubengebäude
3.2.07.06	Sonstige Transportprozesse	kein Bezug, da nicht relevant auf die Radionuklidfreisetzung bzw. –Rückhaltung in den Einlagerungskammern, allerdings von hoher Bedeutung für die Radionuklidausbreitung im Grubengebäude



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 18 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

4 ENTWICKLUNG DES GEOCHEMISCHEN MILIEUS UND RADIONUKLIDMOBILISIERUNG IN DEN EINLAGERUNGSKAMMERN

Durch chemische Reaktionen der in die Einlagerungskammern eindringenden Lösungen mit dem anstehenden Salzgestein und den Kammerinhaltsstoffen (Abfallgebände, Salzversatz und gegebenenfalls Mg-Depot) kommt es zu Veränderungen im kammer-spezifischen geochemischen Milieu. Biotische und abiotische Reaktionen, wie beispielsweise eine Degradation organischer Abfallinhaltsstoffe bzw. eine thermochemische Sulfatreduktion, können das jeweilige geochemische Milieu verändern. Die Entwicklung des geochemischen Milieus manifestiert sich unmittelbar in Änderungen der Lösungszusammensetzung, d.h. in Änderungen der Konzentrationen der gelösten Haupt- und Spurenbestandteile, des pH-Werts, des Redoxpotentials, der Ionenstärke und des Sättigungsgrads gegenüber festen Mineralphasen, in Änderungen der Festphasenzusammensetzungen (Abfallinhaltsstoffe und Behältermaterialien, Salzversatz, Mg-Depot) sowie in Änderungen der Gasphase, insbesondere des Wasserstoffpartialdrucks. Für eine Beschreibung der Prozesse im Nahbereich der Abfallgebände (Einlagerungsbereiche) ist im Fall eines Lösungszutritts auf eine konzeptuelle Koppelung der zu berücksichtigenden geochemischen, biochemischen/mikrobiellen und radio-chemischen Prozesse mit Transportprozessen zu achten. Die Entwicklung des geochemischen Milieus, der durch Dichteunterschiede getriebene Lösungsaustausch, die Produktion von Gasen, der Transport von Gasen und Lösungen sowie die Entwicklung der Volumenverhältnisse von Gasen und Lösungen infolge von Gasspeicherung und Konvergenz sind miteinander verknüpft.

Es bestehen noch offene Fragen zur Entwicklung des geochemischen Milieus im Nahbereich der Abfälle. Diese betreffen zum einen die Koppelung chemischer Prozesse mit Transportprozessen und zum anderen die Reaktivität der Kammerinhaltsstoffe, die in den folgenden Abschnitten benannt werden. Im Hinblick auf die Koppelungen zwischen geochemischen Prozessen und Transportprozessen besteht für die Schachtanlage Asse II ein Bedarf an F&E-Arbeiten zur Anwendbarkeit des Modellansatzes eines quasi-geschlossenen Systems auf die Einlagerungskammern. Dieser Forschungsbedarf ist von hervorgehobener Bedeutung, da das Konzept eines quasi-geschlossenen Systems die Grundlage sowohl für die Beschreibung des geochemischen Milieus als auch der davon abhängigen Prozesse zum Radionuklidverhalten, zur Gasbildung, zum Lösungstransport durch den Gasdruckaufbau, zum Dichte-getriebenen sowie zum diffusiven Transport darstellt. Die Anwendbarkeit des Modellansatzes wiederum basiert auf der Reaktivität der Kammerinhaltsstoffe und deren lokaler Verteilung in den Einlagerungskammern. Der Stand von W&T zu geochemisch-basierten Langzeitsicherheitsanalysen für ein Endlager bezieht sich auf nahezu abgeschlossene Einlagerungsräume radioaktiver Abfälle, während für die Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II nicht von einem geschlossenen System ausgegangen wird. Daher sind für die Anwendbarkeit des Modellansatzes eines quasi-geschlossenen Systems sowie für die Anwendbarkeit der Modellierungen der oben genannten geochemischen Prozesse und Transportprozesse auf die Einlagerungsbereiche und -kammern der Schachtanlage Asse II die offenen Fragen mittels F&E-Arbeiten zu behandeln. Diese offenen Fragen gehen über eine Betrachtung höherer Ungewissheiten für die Schachtanlage Asse II im Vergleich zu einem neu aufzufahrenden und langfristig zu verschließendem Endlager hinaus. Eine Bewertung der Kenntnisdefizite verschiedener FEPs wird im Einzelnen in den folgenden Abschnitten gegeben.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 19 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

4.1 VERTEILUNG DES STOFFLICHEN INVENTARS UND DES RADIONUKLIDINVENTARS IN DEN EINLAGERUNGSKAMMERN

Für ein neu zu errichtendes Endlager bezieht sich der Stand von W&T zu geochemisch-basierten Langzeitsicherheitsanalysen auf gut definierte Bedingungen zur lokalen Anordnungen der stofflichen Inventare im Umfeld der Abfälle. Für die Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II ist die lokale Verteilung der vorhandenen Kammerinhaltsstoffe weitaus weniger gut bekannt. Nach Auskunft des BfS ermöglicht die Dokumentationslage und z.T. die angewandte Einlagerungstechnik keine eindeutige geometrische Zuordnung der eingelagerten Gebinde.

Bei der Einlagerung der Abfälle wurden verschiedene Gebindearten und unterschiedliche Techniken verwendet. Etwa 75 % der gesamten LAW-Gebinde sind 200-l-Fässer, etwa 12 % sind 400-l-Fässer und etwa 12 % sind Verlorene Betonabschirmungen (VBA). 200-l-Fässer mit mittelradioaktiven Abfällen wurden mit einem Kran in die Kammer 8a/511 auf einen Fasskegel abgesenkt bzw. in die Einlagerungskammer fallen gelassen. Pauschale kammer-spezifische Angaben zu Länge, Breite, Höhe, Einlagerungstechnik, Kammerleervolumina, Anzahl der eingelagerten Abfallgebände, Versatzmenge und Kammerzugänge wurden u.a. in Buchheim et al. (2004), Heydorn und Herrmann (2009), DMT/TÜV-NORD (2009) veröffentlicht. In diesen Veröffentlichungen finden sich Skizzen zu ungefähren lokalen Verteilung der Gebinde, des Salzversatzes und der Kammerleervolumina. Aus diesen Skizzen ist zu schließen, dass zumindest in einigen der Einlagerungskammern die Abfallgebände, der Salzversatz und unverfüllte Hohlräume ungleichmäßig verteilt sind. In den jeweiligen Einlagerungskammern sind sowohl die makroskopischen Inhaltsstoffe der Abfallgebände, wie Zement-, Bitumenmatrix und Organika, als auch die Radionuklide unterschiedlich zwischen den verschiedenen Chargen der eingelagerten Abfallgebände verteilt.

Die Abfallgebände enthalten Misch- und Laborabfälle (beispielsweise Papier, Folien, Overalls, Überschuhe, Putzlappen, Holz, Glas), Filterabfälle (Filter, Filterhilfsmittel, Filterrückstände, Schlämme, Verdampferkonzentrate, Harze), Metallabfälle (beispielsweise Schrott, Bleche, Brennelementstrukturteile, Rohre), Bauschutt (beispielsweise Kies, Bodenbeläge) und Verbrennungsrückstände. Flüssige Abfälle, wie sie insbesondere in der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe anfielen, wurden zementiert, einige radioaktive Abfälle wurden in Bitumen verfestigt. Feste Abfälle wurden kompaktiert, einige wurden verbrannt und die Asche fixiert. In den meisten Einlagerungskammern sind mehr als 50 % der Abfallgebände zementierte oder betonierte Abfallprodukte. Daneben sind nicht-fixierte und wenige bituminierte Abfallgebände eingelagert (siehe Abschnitt 4.3 "Radionuklidmobilisierung aus bituminierten Abfallgebänden"). Das Inventar der dosisbestimmenden Actiniden Am, Pu und U befindet sich auch in den Einlagerungskammern mit einem geringen Anteil an zementierten bzw. betonierten Abfallgebänden überwiegend in zementhaltigen Abfallmatrixen (Förster und Marggraf, 2006).

Quantitative Angaben zur Verteilung der Abfallgebände, des Salzgrusversatzes und größerer unverfüllter Resthohlräume konnten nur pauschal für die jeweiligen Einlagerungskammern gemacht werden, ohne Details zur lokalen Verteilung in den Kammern anzugeben. Die Ungenauigkeiten zu den Massenangaben des stofflichen Inventars betragen 10 bis 50%. Entsprechend wurden pauschale Angaben zur Verteilung der Radionuklide in dem Abfallinventar der jeweiligen Kammern gemacht. Es ist ungewiss, ob das gesamte Stoffinventar einer Einlagerungskammer gleichmäßig an den physikochemischen Prozessen beteiligt ist. Die wenigen bekannten dreidimensionalen, geometrischen Angaben zur Verteilung der Kammerinhaltsstoffe (unter Berücksichtigung ihrer Ungenauigkeiten) können genutzt werden, um mittels



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 20 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

Modellrechnungen zu gekoppelten Transportprozessen zu prüfen, inwieweit sich die lokalen Heterogenitäten signifikant auf die Entwicklung des geochemischen Milieus auswirken können.

Der Stand von W&T für ein neu zu errichtendes Endlager bezieht sich auf definierte Radionuklidverteilungen in Abfallgebinden mit bekanntem Stoffinventar. Obwohl dies für die in der Schachtanlage Asse II eingelagerten Abfälle nur eingeschränkt gilt, können dennoch spezifische Abschätzungen zur Radionuklidmobilisierung / -rückhaltung für verschiedene Chargen⁽¹⁾ von Abfallgebinden gemacht werden, um zu prüfen, ob sich diese signifikant von der Radionuklidmobilisierung / -rückhaltung unter Annahme pauschaler Radionuklidverteilungen aus den Gebinden der jeweiligen Kammer unterscheiden. Für die letztere Prozessanalyse ist die genaue Art des Abfallgebindes relevant, beispielsweise ob sich das Inventar dosisbestimmender Radionuklide in zementhaltigen Abfallmatrices oder in nicht-konditionierten Abfallgebinden mit Organika befindet. Eine Neubewertung des vorliegenden Kenntnisstandes über die lokale Verteilung des Radionuklidinventars in den Einlagerungskammern und ein angepasstes, differenziertes Vorgehen kann sich direkt auf die Reduktion von bestehenden Ungewissheiten bei der Ableitung des ELK-Radionuklidquellterms auswirken. Der Kenntnisstand zur lokalen Verteilung des stofflichen Inventars, d.h. zur Verteilung geochemisch-relevanter Makrokomponenten ist wichtig, da dieser Sachverhalt für die Anwendbarkeit des Modellansatzes eines quasi-geschlossenen Systems relevant ist (siehe Abschnitt „Zulässigkeit des Modellansatzes eines quasi-geschlossenen Systems für die Anwendung auf die Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II“).

Defizit	Ausnutzung des Kenntnisstands zur Verteilung des stofflichen Inventars und des Radionuklidinventars in den Einlagerungskammern.
Begründung	Es ist davon auszugehen, dass die Abfallgebinde in den ELK heterogen verteilt sind und das Stoffinventar einer Einlagerungskammer ungleichmäßig an den physikochemischen Prozessen in einer ELK beteiligt ist. Dies führt zu gewissen Ungewissheiten in der Abschätzung des geochemischen Milieus und den davon abhängigen Transportprozessen, dem ELK-Radionuklidquellterm und anderen Abschätzungen zum Systemverhalten.
Relevanz	mittel; F&E.
Konsequenz, wenn Defizit nicht behoben wird	ELK-Radionuklidquellterme mit signifikanten Ungewissheiten; Behandlung der Einlagerungskammern als quasi-geschlossene Systeme beeinträchtigt.
Zeitbedarf zum Beheben des Defizits	kurzfristig

4.2 KORROSION VERLORENER BETONABSCHIRMUNGEN IN KAMMERSPEZIFISCHEN LÖSUNGEN

Im Unterschied zur Kinetik der Reaktion von Salzlösungen (MgCl₂-reiche oder NaCl-reiche Lösungen) mit Zementstein in Abfallfässern ist der Kenntnisstand zur relativ langsamen Kinetik der

⁽¹⁾ Als „Charge von Abfallgebinden“ ist die Menge an Abfallgebinden gemeint, die an den jeweiligen Tagen angeliefert bzw. in die Einlagerungskammern eingelagert wurden.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 21 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

Umsetzung von Verlorenen Betonabschirmungen (VBA) mit den Salzlösungen sehr gering. Die Reaktion von VBA mit quinäer Salzlösung (Q-Lösung) wurde durch Auslaug- und Korrosionsexperimente im Forschungszentrum Karlsruhe untersucht (Kluger et al., 1980). Diese Experimente mit Cs-dotierten VBA erfolgten über eine Zeitspanne von knapp elf Jahren. In dieser Zeitspanne wurde keine Cs-Freisetzung beobachtet. Auf Grundlage der Lösungsanalytik, mineralogischer „post mortem“ Untersuchungen an den Querschnitten und von horizontalen wie vertikalen Bohrkernen sowie mechanischer Untersuchungen wurde gefolgert, dass es mindestens dreißig bis fünfzig Jahre dauert, bis eine durchgehende Korrosion der VBA in Q-Lösung erreicht wird (Kienzler, 2003). Es wird erwartet, dass durch die andauernde mechanische Belastung der VBA in den Einlagerungskammern zunehmend Risse in den Betonabschirmungen entstehen, durch die Salzlösung zu den Abfallfässern im Innern der VBA gelangen könne. Die Kinetik der Betonkorrosion werde dadurch aber nicht signifikant erhöht.

Orientierende Informationen zur Kinetik der Umsetzung von VBA in Salzlösungen wurden von Kienzler et al. (2015) aus den Untersuchungsberichten von Kluger et al. (1980) und Bambauer (1992) zusammengestellt: Seit April 1980 wurden verfestigte LAW/MAW-Verdampferkonzentrate einschließlich ihrer Behälter (Blecfass bzw. verlorene Betonabschirmung) auf die Widerstandsfähigkeit des integralen Systems (Produkt und Verpackung) gegen den Angriff der Auslaugmedien getestet. Dazu wurden inaktive LAW/MAW-Verdampferkonzentratsimulate unter praxiskonformen Bedingungen mit Portlandzement bzw. Hochofenzement in 200-l-Rollreifenfässern zementiert (Wasser/Zement-Verhältnis W/Z = 0.44 l/kg). Die Rollreifenfässer wurden mit Deckeln (einschließlich Doppeldeckel) verschlossen. Nach dem Abbinden des Zementprodukts wurden zwei Probekörper einschließlich ihrer Stahlfässer in Salzlösung gebracht. Zwei weitere verschlossene Rollreifenfässer wurden zusätzlich in VBA einbetoniert. Das Verhalten dieser Gebinde in Kontakt mit Q-Lösung bei einer Temperatur von 40 °C wurde untersucht. Als chemische Indikatoren für die Auslaugung bzw. Korrosion enthielten die Zementkörper Zusätze an inaktiven Cs-Salzen (Kluger et al., 1980). Innerhalb des Versuchszeitraums von mehreren Jahren war bei den Versuchen mit geschlossenem Behälter nur eine geringfügig erhöhte Cs-Konzentration in der Auslauglösung für wenige Zeitpunkte messbar. Diese wurden auf eine Kontamination der äußeren Behälter während der Probenherstellung zurückgeführt (persönliche Aufzeichnungen von W. Kluger, 1980). Bei den Experimenten mit den VBA wurden nach 10,9 Jahren weder Nitrat noch Cs in der Auslauglösung detektiert. Lediglich die Eisenkonzentration in Lösung hatte zugenommen. Mineralogische Untersuchungen an Bohrkernen aus der Betonabschirmung zeigten starke Degradation im äußeren Bereich bis 2,5 cm Tiefe, verbunden mit der Ausfällung von Sorelphasen, Gips, Sylvin und anderen Salzen. Bis etwa 5 cm Tiefe war die Kornbindung zerrüttet und es wurde das Reaktionsprodukt Friedelsches Salz detektiert. Sulfat aus der Q-Lösung war bis etwa 3 cm, Magnesium bis etwa 5 cm und Chlorid bis etwa 11 cm Tiefe eingedrungen. Im Vergussmörtel war eine starke Korrosion zu beobachten (Bambauer, 1992).

Der bisherige Kenntnisstand zur Korrosion Verlorener Betonabschirmungen wird als wenig relevant hinsichtlich der Sicherheit in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II bewertet, da bisher keine verzögerte Radionuklidmobilisierung aus den VBA (im Vergleich zur Mobilisierung aus zementierten Abfallgebinden) im ELK-Radionuklidquellterm berücksichtigt wurde. Die relativ langsame Korrosion der VBA-Gebinde ist jedoch für die Beschreibung der zeitlichen Entwicklung des geochemischen Milieus in den Einlagerungskammern zu beachten.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 22 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

Defizit	Unzureichender Kenntnisstand zur Korrosion Verlorener Betonabschirmungen (VBA) in kammer-spezifischen Lösungen.
Begründung	Da der Kenntnisstands zur Umsetzung von VBA mit Salzlösungen sehr gering ist, wird die relativ langsame Kinetik der Zementkorrosion und die relativ langsame Radionuklidfreisetzung nicht berücksichtigt, d.h. die VBA-Korrosion wird unter den Prozessen zur Korrosion zementierter Abfallprodukte subsumiert.
Relevanz	gering; F&E.
Konsequenz, wenn Defizit nicht behoben wird	Die Freisetzungsrates von Radionukliden aus VBA wird überschätzt; die Ungewissheiten in der Simulation der zeitlichen Entwicklung des geochemischen Milieus werden erhöht.
Zeitbedarf zum Beheben des Defizits	mittelfristig

4.3 RADIONUKLIDMOBILISIERUNG AUS BITUMINIERTEN ABFALLGEBINDEN

In der Schachanlage Asse II sind 305 Mg Bitumen (Masse des organischen Anteils) eingelagert. Ein Drittel der Bitumenfässer sind in den Einlagerungskammern 8a/511 (40 Mg Masse organischer Anteil) und 5/750 (55 Mg Masse organischer Anteil) eingelagert, die anderen zwei Drittel sind mit geringeren Massen jeweils in den übrigen LAW-Kammern eingelagert (Buchheim et al., 2004). Während eine Verzögerung der Radionuklidmobilisierung aus den nicht-konditionierten Abfallgebänden nach Kontakt mit Lösungen nicht angenommen werden kann, wurde die Rückhaltung und das Verhalten des gering-löslichen Fixierungsmaterials Bitumen in zahlreichen Experimenten untersucht (u.a. Flambard et al., 1986). Bisher wurde für die Schachanlage Asse II keine verzögerte Radionuklidmobilisierung aus bituminierten Abfallgebänden berücksichtigt. Organische Materialien wie die Kohlenwasserstoffverbindungen des Bitumens weisen eine deutlich höhere Empfindlichkeit gegenüber ionisierender Strahlung auf als anorganische Fixierungsmaterialien. Die in der Literatur beschriebenen Experimente erstrecken sich hauptsächlich auf die Entwicklung von Wasserstoffgas aus den jeweiligen Abfallprodukten. Wenige Arbeiten liefern Daten zur Bildung von Sauerstoff, Methan und anderen Kohlenwasserstoffen. Der reduzierende/oxidierende Beitrag der wichtigsten Radiolysegase H_2 und O_2 und die damit verbundene Beeinflussung des geochemischen Milieus wird als sehr gering im Vergleich zum Einfluss der H_2 -Produktion durch die Korrosion metallischer Kammerinhaltsstoffe eingeschätzt. Infolge von mikrobieller Umsetzung bituminiertes Abfälle kann CO_2 gebildet werden. Wesentliche Arbeiten hierzu wurden von Aalto (1997) und Wolf (1989) beschrieben. Besonders unter aeroben Bedingungen können langfristig große Mengen CO_2 gebildet und letztendlich das gesamte Inventar an Bitumen durch mikrobiellen Abbau umgesetzt werden. Neuere Arbeiten zu Nitrat-beladenen bituminierten Abfallprodukten befassen sich mit der Wasseraufnahme durch Osmose, dem entstehenden Quelldruck und der Nitratfreisetzung (Mariën et al., 2009; Mariën, 2012). Infolge der durch Radiooxidation verursachten Alterung der bituminierten Abfälle im eigenen Strahlenfeld wird einerseits das Quellvermögen verringert, andererseits die Nitrat-Auslaugrate erhöht.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 23 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

Defizit	Unzureichender Kenntnisstand zur Radionuklidmobilisierung aus bituminierten Abfallgebinden.
Begründung	Da der Kenntnisstand zur Freisetzungsrates von Radionukliden aus bituminierten Abfallgebinden sehr gering ist, wird diese relativ langsame Radionuklidmobilisierung nicht berücksichtigt und eine instantane Freisetzung angenommen.
Relevanz	gering; F&E.
Konsequenz, wenn Defizit nicht behoben wird	Die Freisetzungsrates von Radionukliden aus bituminierten Abfallgebinden wird überschätzt.
Zeitbedarf zum Beheben des Defizits	langfristig

4.4 ABHÄNGIGKEIT DER METALLKORROSION UND GASBILDUNG VOM GEOCHEMISCHEN MILIEU

Die Metallkorrosion und die damit verbundene (Wasserstoff-)Gasproduktion in einem Endlager ist zum einen in Hinblick auf die Integrität der ingenieurtechnischen Barrieren und der geologischen Barriere zu einzuschätzen, zum anderen in Hinblick auf Gase als Transportmedium für gasförmige und volatile Radionuklide zu bewerten. Die Verhältnisse in der Schachtanlage Asse II unterscheiden sich jedoch von denjenigen in einem neu zu errichtenden Endlager dahingehend, dass die Integrität der geologischen Barriere beeinträchtigt ist. Aufgrund der Relevanz für eine Sicherheitsanalyse sind der Kenntnisstand zum geochemischen Milieu mit den Kenntnisständen zur Metallkorrosion sowie zur Gasbildung miteinander zu koppeln, um Ungewissheiten in der Abschätzung der Gasbildungsrates, des ELK-Radionuklidquellterms und des geochemischen Milieus zu reduzieren.

Chemische Reaktionen der eingelagerten Metalle mit Chlorid-reichen Salzlösungen beeinflussen das geochemische Milieu u.a. durch die Umsetzung oxidierender Spezies und der damit verbundenen Änderung des lokalen Redoxmilieus, die Freisetzung gelöster Metallionen sowie durch die Bildung von Korrosionsprodukten. Die Bildung von Metallkorrosionsprodukten, wie Metalloxide, beeinflusst den pH und die Konzentrationen weiterer Lösungskomponenten. Im Anschluss an eine initiale und kurzfristige aerobe Metallkorrosion wird im Verlauf einer anaeroben Metallkorrosion zunehmend Wasserstoff gebildet, und es stellen sich stark reduzierende Bedingungen ein. Umfang und Geschwindigkeit / Kinetik der Korrosion sowie die Zusammensetzung der Korrosionsprodukte werden von den Eigenschaften des eingelagerten Metalls und vom jeweiligen geochemischen Milieu in den Einlagerungskammern bestimmt. Hierbei ist für die Beschreibung der Korrosionskinetik zu beachten, dass Fastsstahl und Edelstahl (der meist in überzementierten Bauteilen vorliegt) unterschiedliche Korrosionsraten aufweisen.

Als wesentlicher Aspekt der Koppelung des geochemischen Milieus mit der Metallkorrosion ist die Entwicklung alkalischer pH-Bedingungen in den Einlagerungskammern infolge der Umsetzung zementhaltiger Abfallprodukte bei der Modellierung der (Wasserstoff-)Gasbildung und für die Abschätzung der Redoxbedingungen zu berücksichtigen. Für Einlagerungskammern mit hohem Zementsteininventar werden (stark) alkalische Bedingungen erwartet, die zu einer Verlangsamung („Inhibierung“) der Metallkorrosion im Vergleich zur Korrosion unter neutralen bis sauren pH-Bedingungen führen. Andererseits ist von Stahlbeton-Bauwerken bekannt, dass Chlorid in oxidische passivierte Deckschichten eindringen kann und somit die Stahlkorrosion begünstigt. Ob und inwieweit sich die Korrosionsrate durch eine Passivierung der Stähle unter den geochemischen Bedingungen der Einlagerungskammern verlangsamt, ist nicht bekannt.

Für die zeitliche Entwicklung des geochemischen Milieus in den jeweiligen Einlagerungskammern von „oxidierend“ zu „Sauerstoff-frei“ zu „reduzierend“ können zwar Redoxbedingungen orientierend abgeschätzt werden, jedoch bestehen noch Ungewissheiten, wie sich die Actiniden-Redoxstufenverteilungen in salinaren Lösungen für verschiedene Redox-Szenarien zeitlich



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 24 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

quantitativ entwickeln (siehe Abschnitt „Redoxchemie von Radionukliden und redoxkontrollierende Prozesse“). Eine Verbesserung des Kenntnisstands zur Koppelung des geochemischen Milieus mit der Metallkorrosion und der davon abhängigen Bildung von Wasserstoffgas wird als sicherheitsrelevant eingeschätzt. Zum einen beeinflusst die Metallkorrosion direkt Redoxreaktionen von Radionukliden und damit deren Quellterm. Zum anderen werden indirekt über die (Wasserstoff-)Gasbildung die Volumen- und Massenverhältnisse innerhalb der Einlagerungskammern sowie durch den gasgetriebenen Lösungs-transport der Lösungsaustausch zwischen den Einlagerungskammern verändert. Diese gasgetriebenen Prozesse haben Einflüsse auf das geochemische Milieu und dadurch indirekt auf die Radionuklidmobilisierung, die Radionuklidlöslichkeit und die Radionuklidadsorption.

Defizit	Ausnutzung des Kenntnisstands zur Abhängigkeit der Metallkorrosion und korrespondierenden (Wasserstoff-) Gasbildung vom geochemischen Milieu.
Begründung	Das Ausmaß und die Geschwindigkeit der Metallkorrosion werden vom jeweiligen geochemischen Milieu der Einlagerungskammern bestimmt. Die Metallkorrosion wiederum kontrolliert das Redoxverhalten und damit die Lösungskonzentration bestimmter Radionuklide (beispielsweise Actiniden).
Relevanz	hoch; W&T.
Konsequenz, wenn Defizit nicht behoben wird	Erhöhte Ungewissheiten in der Abschätzung der Gasbildungsraten, des ELK-Radionuklidquellterms und des geochemischen Milieus.
Zeitbedarf zum Beheben des Defizits	mittelfristig

4.5 SULFATREDUKTION

Mit einer Gesamtmasse von etwa 7 Mg ist Sulfat zwar eine untergeordnete Abfallkomponente (Buchheim et al., 2004), jedoch enthalten das anstehende Salzgestein und der Salzversatz der Einlagerungskammern in unterschiedlichen Mengenanteilen sulfatische Minerale wie Anhydrit (CaSO_4), Kieserit ($\text{MgSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$) und Polyhalit ($\text{K}_2\text{Ca}_2\text{Mg}(\text{SO}_4)_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$). Zusätzlich enthalten die Zementbestandteile der Abfälle und der VBA 3 – 5 Gew.% Ca-Sulfat zur Kontrolle des Abbindeverhaltens. Darüber hinaus ist davon auszugehen, dass in die Einlagerungskammern eindringende Salzlösungen gelöstes Sulfat durch Kontakt mit Anhydrit oder mit anderen Sulfatsalzen enthält. Unter bestimmten Bedingungen kann Sulfat durch biotische oder abiotische (thermochemische) Reduktionsprozesse zu anderen Schwefelverbindungen umgesetzt werden. Der Kenntnisstand zur mikrobiellen Sulfatreduktion unter hochsalinaren Bedingungen ist nicht so weit entwickelt, dass belastbare Modellrechnungen zu diesem Prozess für kammer-spezifische Bedingungen durchgeführt werden können. Andererseits wurde die thermochemische Sulfatreduktion unter ähnlichen Bedingungen im Rahmen der Arbeitsgruppe „Kohlenwasserstoffe“ des Projekts „Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben“ (VSG) intensiv diskutiert (Bracke et al., 2012). Bracke et al. (2012) stellten dar, dass Sulfate prinzipiell in thermochemischer Reaktion durch Wasserstoff, der infolge der Metallkorrosion gebildet wird, zu sulfidischen Verbindungen reduziert werden könnten, wobei Protonen sowie Wasser verbraucht werden. Derartige Prozesse der Sulfatreduktion sind bei Umgebungstemperatur kinetisch stark gehemmt und konnten experimentell lediglich unter sauren Bedingungen ($\text{pH} < 5$) gezeigt werden (Truche et al., 2009). Aus den Kenntnissen zur Kinetik der thermochemischen Sulfatreduktion wurde gefolgert, dass bei einer Temperatur deutlich unterhalb von 80 °C und unter Bedingungen einer Einlagerung in Salzgestein (mit einem nahezu neutralen pH-Wert oder alkalischen Milieu) diese abiotische Sulfatreduktion quasi nicht stattfinden kann (Bracke et al., 2012). Vor dem Hintergrund

 Bundesamt für Strahlenschutz				Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II			
Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 25 von 67	
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017	

der Ergebnisse der „VSG“ werden nach Stand von W&T biotische oder abiotische Sulfatreduktionsprozesse als nicht relevant für die Bedingungen in der Schachtanlage Asse II angesehen.

Defizit	Unzureichender Kenntnisstand zur Sulfatreduktion.
Begründung	Sulfat kann durch biotische oder abiotische Reduktionsprozesse zu anderen Schwefelverbindungen umgesetzt werden. Der Kenntnisstand zur mikrobiellen Sulfatreduktion unter hochsalinaren Bedingungen ist nicht hinreichend entwickelt, um belastbare Modellrechnungen zu diesem Prozess für kammer-spezifische Bedingungen durchführen zu können.
Relevanz	nicht relevant, W&T.
Konsequenz wenn Defizit nicht behoben wird	keine, da nach Stand von W&T für Temperaturen und zu erwartende pH-Bedingungen in der Schachtanlage Asse II nicht relevant
Zeitbedarf	langfristig

4.6 ABHÄNGIGKEIT DER LÖSUNGSDICHTE VOM GEOCHEMISCHEN MILIEU

Dichteunterschiede von Lösungen können einen Antrieb für Strömungen in den Einlagerungskammern bzw. im Grubengebäude der Schachtanlage Asse II bewirken. Daher ist die Entwicklung der Dichte von Salzlösungen in den Einlagerungskammern und deren Umgebung von Interesse. Die in eine Einlagerungskammer zutretende Salzlösung wird durch chemische Reaktionen mit den Kammerinhaltsstoffen ihre Zusammensetzung und somit auch ihre Dichte verändern. Aufgrund der hohen kammer-spezifischen Stoffmengen an Zementstein werden Dichteänderungen im besonderen Maße durch Wechselwirkungen mit zementierten Abfallgebänden und der damit verbundenen Bildung von CaCl₂-haltigen Salzlösungen hervorgerufen. Für den Fall, dass MgCl₂-reiche Salzlösungen in die Einlagerungskammern eindringen werden, sind jedoch die zu erwartenden Dichteänderungen beim Übergang von MgCl₂-reichen zu CaCl₂-MgCl₂-haltigen Salzlösungen als gering einzuschätzen.

Krumgalz et al. (1994; 1995; 2000) parametrisierte Dichteänderungen in Abhängigkeit von der Zusammensetzung von Lösungen des quinären Systems ozeanischer Salze. Allerdings sind die von Krumgalz et al. (1994; 1995; 2000) entwickelten Parametersätze nicht dazu geeignet, Dichten von Salzlösungen nach Wechselwirkungen mit Zementstein zu berechnen (hierzu fehlen Wechselwirkungsparameter und Komplexbildungskonstanten relevanter Elemente / Lösungsspezies). Messungen zur Entwicklung der Dichte von Salzlösungen in Kontakt mit zementierten Abfallsimulaten wurden im Rahmen der „1:1 Gebindeexperimente“ im Auslaugversuchsfeld auf der 490-Meter-Sohle der Schachtanlage Asse II durchgeführt. Die zwischen 2001 und 2013 ermittelten Messwerte wurden für die verschiedenen Lösungs-Feststoffsysteme ausgewertet und mit Literaturdaten verglichen (Kienzler et al., 2015). Abbildung 1 zeigt die bei den „1:1 Gebindeexperimenten“ in MgCl₂-reicher Lösung gemessenen Dichten als Funktion der Ionenstärke im Vergleich mit den in reinen Salzsystemen gemessenen Lösungsdichten nach der Dissertation von Beck (veröffentlicht in Beck et al., 1981a; 1981b). Die Abhängigkeit der Lösungsdichte von der molalen Ionenstärke wird durch folgende Gleichung beschrieben:

$$Dichte[g/dm^3]=\{ (5.8\pm 0.4) \times Ionenstärke[in\ mol/kg\ H_2O] + (1223.1\pm 4.2) \}$$



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 26 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	Stand: 28.02.2017
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	

Weitere Zusammenhänge der Lösungsdichte mit einzelnen Lösungskomponenten wurden in den „1:1 Gebindeexperimenten“ untersucht. Es konnten aber keine belastbaren Korrelationen aufgezeigt werden. Die in den „1:1 Gebindeexperimenten“ gemessenen Lösungsdichten liegen weitgehend im Bereich der bei den jeweiligen Ionenstärken zu erwartenden Werte. Nach weitgehender Annäherung bzw. Erreichen eines Gleichgewichts zwischen Salzlösung und Zementprodukt kommt es zu keiner weiteren Veränderung der Lösungsdichte.

Der Kenntnisstand zur Abhängigkeit der Lösungsdichte vom geochemischen Milieu in den Einlagerungskammern ist gering. Daher liegt bisher kein belastbares Vorgehen bei der Abschätzung der Dichteentwicklung in den Einlagerungskammern vor. Das identifizierte Defizit hinsichtlich der Berechnung der Lösungsdichte wird einerseits als wenig relevant hinsichtlich der Radionuklidlöslichkeiten in den Einlagerungskammern bewertet, da pauschale Veränderungen in der Lösungsdichte die Radionuklidkonzentrationen nicht signifikant beeinflussen. Andererseits ist zu beachten, dass Dichteunterschiede der Salzlösungen in den ELK bzw. Einlagerungsbereichen (ELB) zu Lösungsflüssen führen können, die ihrerseits die Zulässigkeit des Modellansatzes „quasi-closed system“ beeinflussen.

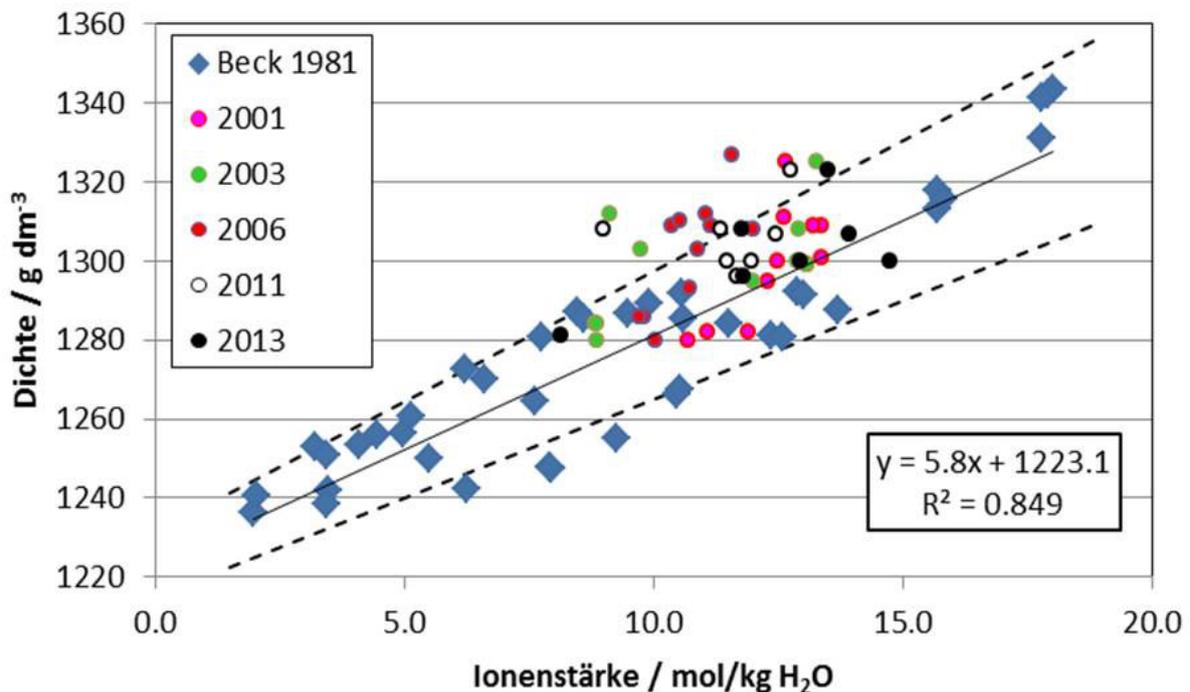


Abbildung 1: Gemessene Lösungsdichten als Funktion der Ionenstärke (aus Kienzler et al., 2015). Dichten der „1:1 Gebindeexperimente“ in MgCl₂-reicher Lösung werden mit Dichten reiner Salzlösungen (Beck et al., 1981a; 1981b) verglichen. Die durchgezogene Linie zeigt die Regressionsgerade der Dichten reiner Salzlösungen, die gestrichelten Linien zeigen den oberen und unteren 2σ-Vertrauensbereich der Regressionsgerade.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 27 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

Defizit	Unzureichender Kenntnisstand zur Abhängigkeit der Lösungsdichte vom geochemischen Milieu.
Begründung	Die auf Untersuchungen zum quaternären System ozeanischer Salze basierenden Parametersätze zur Berechnungen der Lösungsdichte in den Einlagerungskammern sind nicht geeignet, um Dichten von Salzlösungen nach Wechselwirkungen mit Zementstein / zementierten Abfallprodukten zu berechnen. Allerdings werden beim Eindringen MgCl ₂ -reicher Salzlösungen in die Einlagerungskammern geringe Dichteänderungen erwartet, die sich beim Übergang von MgCl ₂ -reichen zu CaCl ₂ -MgCl ₂ -haltigen Salzlösungen einstellen werden.
Relevanz	gering, W&T.
Konsequenz, wenn Defizit nicht behoben wird	Ungenauigkeiten in der Abschätzung des Dichte-getriebenen Lösungstransports.
Zeitbedarf zum Beheben des Defizits	mittelfristig

4.7 GEOCHEMISCHE WIRKSAMKEIT UND STABILITÄT Mg(OH)₂-BASIERTER BAUSTOFFE

Sowohl die Notfallplanung für die Schachtanlage Asse II als auch das bisher vorliegende Konzept der Vollverfüllung der Schachtanlage als Rückfalloption bei Verbleib von radioaktiven Abfällen sieht für einige Einlagerungskammern eine Verfüllung der Resthohlräume mit Mg(OH)₂-basierten Baustoffen vor. Dieses als „Mg-Depot“ bezeichnete Verfüllmaterial soll in den Einlagerungskammern einen günstigen Einfluss auf das geochemische Milieu haben, indem es den pH-Wert der Lösung in einem neutralen bis (schwach) alkalischen pH-Bereich puffert und die Lösungskonzentration von potentiell entstehendem anorganischen Kohlenstoff (CO₂, H₂CO₃, HCO₃⁻, CO₃²⁻) soweit begrenzt, dass eine signifikante Carbonatkomplexierung von Radionukliden verhindert wird. Darüber hinaus soll das Mg-Depot möglichst kompatibel zu einer eindringenden Salzlösung, dem anstehenden Salzgestein, dem Salzversatz und weiteren Kammerinhaltsstoffen sein. Erwünschte Charakteristika des Mg-Depots sind die Rückhaltung von Radionukliden durch Sorption oder den Einbau von Radionukliden in die Festphasen.

Das Mg-Depot basiert auf Brucit bzw. den sich daraus bildenden Sorelphasen. Die Kapazität, den pH-Wert zu puffern und gelösten anorganischen Kohlenstoff auszufällen, ist an die Masse von Brucit bzw. Sorelphase (an die MgO-Stoffmenge) gebunden. Frühere experimentelle Untersuchungen mit Brucit-Mörtel, Brucit-Granulat und Sorelbeton zeigten die Wirksamkeit dieser Baustoffe hinsichtlich der pH-Pufferung und der Begrenzung der Lösungskonzentration von anorganischem Kohlenstoff (u.a. Metz et al., 2004). Die Rückhaltung von Actiniden, Lanthaniden und I-129 durch Brucit, Sorelphase bzw. Sorelbeton wurde in jüngeren Untersuchungen quantifiziert (Kienzler et al., 2012; Wiedemann et al., 2013; 2014). Bisher wurde der Aspekt der chemischen Reaktivität bzw. das Vorhandensein einer ausreichend reaktiven Oberfläche für die pH-Pufferung und die Reaktion von anorganischem Kohlenstoff mit Brucit-Mörtel, Brucit-Granulat, Sorelphase oder einem anderen Mg-Depot-Baustoff unter kammer-spezifischen Bedingungen noch nicht experimentell untersucht. Die Langzeitreaktivität solcher Baustoffe ist noch zu zeigen und damit die benötigte Funktionsdauer der geotechnischen Barriere Mg-Depot zu belegen.

Eine Verbesserung des Kenntnisstands zur Wirksamkeit und Stabilität des Mg-Depots wird als relevant bewertet, da ein geeignetes Mg-Depot die Radionuklidkonzentrationen in den Einlagerungskammern direkt beeinflussen kann. Im Hinblick auf die genannte Bedeutung des Mg-Depots für die Begrenzung einer Carbonatkomplexierung von Radionukliden sowie für die Robustheit des Modells des geochemischen Milieus in den Einlagerungskammern, sind



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 28 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

geochemische Untersuchungen zur Überprüfung der oben genannten Anforderungen und der Langzeitreaktivität des Mg-Depots erforderlich.

Defizit	Unzureichender Kenntnisstand zur geochemischen Wirksamkeit und Stabilität $Mg(OH)_2$ -basierter Baustoffe.
Begründung	Der bisherige Kenntnisstand zu den als Mg-Depot betrachteten $Mg(OH)_2$ -basierten Baustoffen ist nicht ausreichend, um die Langzeitreaktivität hinsichtlich der Umsetzung mit gelöstem anorganischen Kohlenstoff bzw. CO_2 zu belasten. Diese Reaktion ist relevant sowohl für die Pufferung des pH-Werts, als auch die Pufferung der Carbonatkonzentration und somit für die resultierenden Radionuklidkonzentrationen in den Salzlösungen.
Relevanz	hoch, W&T.
Konsequenz, wenn Defizit nicht behoben wird	Hohe Ungewissheiten und damit Einfluss auf Nachweisführung zur Wirksamkeit des Mg-Depots
Zeitbedarf zum Beheben des Defizits	kurzfristig



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 29 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

5 ZULÄSSIGKEIT DES MODELLANSATZES EINES QUASI-GESCHLOSSENEN SYSTEMS FÜR DIE ANWENDUNG AUF DIE EINLAGERUNGSKAMMERN

Im Unterschied zu einem neu zu errichtenden Endlager befinden sich die radioaktiven Abfälle der Schachtanlage Asse II in Einlagerungskammern, deren Integrität beeinträchtigt ist. Selbst durch Einbringen von Versatzstoffen bleiben zwischen den Einlagerungskammern und ihrer Umgebung Wegsamkeiten für zutretende Salzlösungen und austretende kontaminierte Lösungen. Für diesen Lösungstransport sind nicht nur diffusive, sondern auch schnellere (advektive, gasgetriebene) Transportprozesse zu betrachten. Der konzeptuelle Ansatz eines quasi-geschlossenen Systems (quasi-closed system, QCS) wurde bisher für die Einlagerungskammern angewendet, um geochemische, biochemische/mikrobielle, radiochemische und physikochemische Prozesse für die Bedingungen eines – wenn auch eingeschränkten – Lösungsaustausches mit der Umgebung zu modellieren. Der QCS-Ansatz wurde in der Vergangenheit implizit für Modellierungen und Abschätzungen verwendet, die mit dem geochemischen Milieu einer Einlagerungskammer zusammenhängen, u.a. Abschätzungen zum ELK-Radionuklidquellterm, zur Gasbildung, zur Gasspeicherung und zum Gas-getriebenen Lösungstransport, sowie zu Lösungstransportprozessen, die durch Dichteunterschiede oder Diffusion angetrieben werden. Wegen der grundlegenden Bedeutung des kammer-spezifischen geochemischen Milieus als Eingangsgröße für die genannten Modellierungen und Abschätzungen ist die Anwendbarkeit bzw. der Anwendungsbereich des QCS-Modellansatzes entscheidend für die Beschreibung und die quantitative Abschätzung mehrerer sicherheitsrelevanter FEPs (Tabelle 1).

In der Einleitung zu Kapitel 4 wurde bereits erwähnt, dass der Stand von W&T sich auf nahezu abgeschlossene Einlagerungsräume in einem einzurichtenden Endlager bezieht. Dahingegen kann für die Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II nicht von einem geschlossenen System ausgegangen werden. Ein quasi-geschlossenes System wird durch einen hinreichend geringen und langsamen Stoffaustausch mit seiner Umgebung charakterisiert. In Lützenkirchen et al. (2006) und Metz et al. (2006) wurden drei Grundvoraussetzungen für die Anwendbarkeit des QCS-Modellansatzes auf die Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II genannt:

- Die Aufenthaltszeit der Fluide, insbesondere der Lösungen und der darin gelösten Reaktanten, in der Kammer ist größer als die Equilibrierungszeit der jeweiligen Lösung-Feststoff-Systeme.
- Während der Equilibrierung (Annäherung an ein lokales Gleichgewicht) zwischen kammer-spezifischer Lösung und Feststoffen ist die Menge der Abflüsse (der Massenfluss) hinreichend gering⁽²⁾.
- Der Zutritt von Fluiden, insbesondere der Lösungszutritt, ist vernachlässigbar, da entweder der Massenfluss hinreichend gering⁽²⁾ ist oder die Zusammensetzung der zutretenden Lösung hinreichend ähnlich⁽²⁾ zur Zusammensetzung der Lösung, die sich bereits in der Kammer befindet.

⁽²⁾ „Hinreichend geringe“ Abflüsse aus den Einlagerungskammern, „hinreichend geringe“ Massenflüsse zwischen den einzelnen Einlagerungskammern und ihrer Umgebung und „hinreichend ähnliche“ Lösungszusammensetzung werden dadurch definiert, dass ihre jeweiligen Einflüsse auf das geochemische Milieu bzw. die Radionuklidlösungskonzentrationen als vernachlässigbar betrachtet werden können. Diese Definitionen werden ausführlich in Lützenkirchen et al. (2006) diskutiert.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 30 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

Für die Untersuchungen des INE im Hinblick auf den ELK-Radionuklidquellterm wurde als Kriterium für die Anwendbarkeit des QCS-Modellansatzes der Effekt geochemischer Änderungen durch den Fluidaustausch auf die Radionuklidlöslichkeit gewählt. Hierbei wurde argumentiert, dass die Anwendbarkeit des QCS-Ansatzes nicht gegeben ist, wenn dieser Effekt die Radionuklidlöslichkeit signifikant beeinflusst, d.h. die Radionuklidlöslichkeit mehr als deren Unsicherheit verändert. Diese Unsicherheit wird aus den Unsicherheiten der thermodynamischen Daten und Radionuklidlöslichkeiten abgeleitet, die zu einem großen Teil auf Ungewissheiten im Kenntnisstand des Systems Einlagerungskammer beruhen. Hierzu gehören u.a. Ungewissheiten zum stofflichen Inventar, Ungewissheiten zu gekoppelten reaktiven Transportprozessen sowie die eingeschränkten Kenntnisse zur Entwicklung möglicher Redoxprozesse. Wie oben erwähnt, basiert die Anwendbarkeit des Modellansatzes auf der Reaktivität der Kammerinhaltsstoffe und deren lokalen Verteilung in den Einlagerungskammern. Die Reaktivität ist zum einen mit der Equilibrierungszeit der Lösung-Feststoffsysteme verknüpft. Zum anderen ist von Relevanz, inwieweit die Feststoffoberflächen mit den Lösungen reagieren können bzw. wie reaktiv die Feststoffoberflächen sind.

Es ist nicht möglich mittels der derzeit zur Verfügung stehenden Rechencodes und Datenbanken zur Simulation von gekoppelten Reaktions-Transportprozessen zeitliche Veränderungen des geochemischen Milieus in den Einlagerungskammern und der daraus resultierenden Radionuklidlöslichkeiten belastbar zu modellieren. Andererseits sollte der Anwendungsbereich des QCS-Modellansatzes mit gekoppelten Transportrechnungen geprüft werden. Aufgrund der Komplexität der Verknüpfungen von Lösungstransportprozessen zwischen den ELK und Lösungstransportprozessen mit deren Umgebung, werden keine belastbaren Daten zum Lösungsaustausch innerhalb eines ELB bzw. zur Aufenthaltszeit der Lösungen in den Einlagerungskammern erwartet. Jedoch können mittels gekoppelter Transportrechnungen gewisse Bandbreiten des Lösungsaustauschs bzw. der Aufenthaltszeiten simuliert und deren geochemische Effekte auf die Lösungszusammensetzung und die Radionuklidlöslichkeit überprüft werden.

Defizit	Ungewisse Anwendbarkeit des Modellansatzes eines quasi-geschlossenen Systems auf die Einlagerungskammern.
Begründung	Die Anwendbarkeit der Modellierungen der geochemischen Prozesse auf die Einlagerungskammern und -bereiche (einschließlich des ELK-Radionuklidquellterms) basiert auf der Belastbarkeit des Modellansatzes eines quasi-geschlossenen Systems.
Relevanz	hoch, W&T.
Konsequenz, wenn Defizit nicht behoben wird	Eine belastbare Abschätzung des geochemischen Milieus und der davon abhängigen physikochemischen Prozesse einschließlich resultierender ELK-Radionuklidquellterme ist nicht möglich
Zeitbedarf zum Beheben des Defizits	kurzfristig



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 31 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

6 AQUATISCHE CHEMIE UND THERMODYNAMIK RELEVANTER RADIONUKLIDE IN DER SCHACHTANLAGE ASSE II

Die Beschreibung der aquatischen Chemie und Thermodynamik von relevanten Radionukliden in der Schachtanlage Asse II beinhaltet die Analyse, in welchem Ausmaß und in welcher Form sich in den Einlagerungskammern vorhandene Radionuklide unter verschiedenen geochemischen Randbedingungen potentiell verhalten werden. Um zuverlässige Aussagen zur potentiellen Mobilisierung von Radionukliden aus den ELK zu treffen, und auf dieser wissenschaftlich fundierten Basis letztlich zu einer Einschätzung einer möglichen Strahlenexposition in der Biosphäre zu kommen, ist es notwendig und sicherheitsgerichtet, das chemische Verhalten relevanter Radionuklide in wässrigen Systemen zu beschreiben. Insbesondere geochemische Prozesse, die zu einer Rückhaltung von Radionukliden in den ELK führen, nämlich Konzentrationsbegrenzung gelöster Radionuklide durch Radionuklidlöslichkeitsgrenzen oder Radionuklidretention durch Wechselwirkung an Mineraloberflächen (Sorption), sind direkt sicherheitsrelevant und bedürfen genauer Analysen. Neben der Identifikation und wissenschaftlich genauen Beschreibung wesentlicher Mechanismen und Prozesse ist hier die Notwendigkeit gegeben, Löslichkeitsgrenzen und Sorptionsprozesse belastbar quantifizieren zu können. Dieses kann einerseits anhand von möglichst situationsspezifischen experimentellen Befunden geschehen, andererseits steht mit der geochemischen Modellierung basierend auf chemischer Thermodynamik ein aussagekräftiges Instrument zur Verfügung, um Prozesse der aquatischen Chemie zu simulieren und zu quantifizieren. Letzteres unterstellt inhärent, dass die analysierten Systeme hinreichend gut verstanden sind, um die bestimmenden (Gleichgewichts)prozesse korrekt erfassen zu können, und das Vorhandensein korrekter und konsistenter thermodynamischer Datenbasen. Dieses ist derzeit bei weitem nicht für alle relevanten Subsysteme gegeben.

Es ist Stand von W&T und gute wissenschaftliche Praxis, möglichst genaue Angaben zu allen Größen zu machen, die einer Ableitung von Radionuklidlöslichkeiten zugrunde gelegt werden. Dies beinhaltet insbesondere nachvollziehbare Angaben und Begründungen zu

- (i) den löslichkeitsbestimmenden Radionuklid-Festphasen,
- (ii) den in Lösung vorliegenden relevanten Radionuklid-Lösungsspezies,
- (iii) der Art und Charakteristik berücksichtigter komplexierender Liganden sowie
- (iv) verwendeten thermodynamischen Datenbasen und zur Einschätzung von Ionenstärkeeffekten in konzentrierten Salzlösungen.

Genauere Informationen zur Ausgangslage, d.h. Angaben in welcher chemischen Form die Radionuklide in den Abfällen vorliegen, sind für spezifische Fragestellungen ebenfalls sinnvoll (zum Beispiel: Ist Plutonium primär zementiert, bituminiert oder mit stark Organik-haltigen Abfallfraktionen korreliert?).

Bei der Bewertung von Sorptionseffekten sind entsprechende Angaben wie für die Radionuklidlöslichkeit zu berücksichtigen. Dieses Vorgehen ist ein zentraler Aspekt für die Dokumentation des angewendeten, aktuellen Kenntnisstandes und wesentliche Grundlage für die Qualität und Nachvollziehbarkeit der gemachten Aussagen und quantitativen Ableitungen. Die für Sicherheitsanalysen geforderte ausreichende Zuverlässigkeit der Aussagen unter Berücksichtigung von Ungewissheiten kann so gezeigt werden. Generell sind die Belastbarkeit von



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 32 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

Radionuklidquelltermen auf Kammerebene und Aussagen zur Radionuklidsorption mit der Unsicherheit in den geochemischen Randbedingungen korreliert. Dieser Effekt kann jedoch über Bandbreitenbetrachtungen zuverlässig eingegrenzt werden.

6.1 AKTUALISIERUNG DES KENNTNISSTANDES ZUR RADIONUKLIDLÖSLICHKEIT UND VORLIEGENDER KAMMERSPEZIFISCHER RADIONUKLIDQUELLTERME

Der Kenntnisstand zur Löslichkeit und aquatischen Chemie von Radionukliden in salinaren Systemen wurde in den letzten zehn Jahren deutlich weiterentwickelt. Dieses ist durch zahlreiche wissenschaftliche Publikationen der Fachöffentlichkeit und insbesondere des INE für verschiedene relevante Subsysteme evident. So wurde beispielsweise von INE die Löslichkeit und Speziation von Radionukliden (Nd(III), Cm(III), Th(IV), Zr(IV), Np(IV), Np(V) und U(VI)) in CaCl₂-dominierten alkalischen Lösungen detailliert untersucht. Solche Lösungen können potentiell aufgrund von Zementdegradation in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II generiert werden. Die Wechselwirkung von Actiniden mit Borat wurde für einige Elemente auch in salinaren Lösungen untersucht, wobei sich starke Synergien mit Forschungsarbeiten im Kontext der WIPP ergaben. Wie in der Doktorarbeit von Katja Hinz (2015) dargestellt, wird z.B. ein wesentlicher Einfluss von Borat auf die Löslichkeit dreiwertiger Actiniden beobachtet. In einer ebenfalls im Rahmen von F&E-Arbeiten des INE angefertigten Doktorarbeit (Michel Herm, 2015) wurden detaillierte Untersuchungen durchgeführt, um den Einfluss von Nitrat auf die Löslichkeit und Speziation dreiwertiger Actiniden in NaCl-, MgCl₂- und CaCl₂-Lösungen einschätzen zu können.

Alleine angesichts der hier skizzierten neuen Erkenntnisse zur Actinidenchemie in Lösungssystemen, die für Entwicklungszustände in ELK der Schachtanlage Asse II relevant sein könnten, ist die Notwendigkeit gegeben, für die jeweils definierten geochemischen Randbedingungen aktualisierte Radionuklidquellterme auf Kammerebene abzuleiten. Eine unkritische „Fortschreibung“ von ELK-Radionuklidquelltermen aus früheren Arbeiten ist aus Sicht des heutigen Kenntnisstands nicht möglich, da dieses Vorgehen zu hohen Unsicherheiten und ggf. Fehlern führen kann.

Defizit	ELK-Radionuklidquellterme sind nicht aktuell und entsprechen nicht dem Stand von W&T.
Begründung	Eine unkritische „Fortschreibung“ von ELK-Radionuklidquelltermen aus früheren Arbeiten ist aus heutigem Kenntnisstand nicht möglich und führt zu hohen Unsicherheiten und ggf. Fehlern.
Relevanz	hoch, W&T.
Konsequenz, wenn Defizit nicht behoben wird	ELK-Radionuklidquellterme entsprechen nicht dem Stand von W&T.
Zeitbedarf zum Beheben des Defizits	kurzfristig



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 33 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

6.2 REDOXCHEMIE VON RADIONUKLIDEN UND REDOXKONTROLLIERENDE PROZESSE

Abschätzungen der Löslichkeit bzw. Retention redoxsensitiver Radionuklide in salinaren Lösungen benötigen eine explizite Einschätzung des Einflusses der Redoxchemie. Eine richtige Bewertung von Redoxprozessen ist direkt sicherheitsrelevant, da hierdurch erhebliche Konsequenzen für das geochemische Verhalten verschiedener Radionuklide in der Schachtanlage Asse II bedingt sein können.

Wie allgemein bekannt ist, hängt geochemisches Verhalten verschiedener Radionuklide in wässriger Lösung entscheidend von der Redoxchemie ab. Radionuklide in verschiedenen Oxidationsstufen zeigen zumeist ein deutlich unterschiedliches chemisches Verhalten, z.B. liegt Technetium unter nicht-reduzierenden Bedingungen als leichtlösliches und schwach sorbierendes Pertechetat (TcO_4^-) vor, während es in reduzierendem Milieu als vierwertiges Technetium eine sehr schwer lösliche und stark sorbierende Spezies darstellt. Das chemische Verhalten typischerweise Endlager-relevanter Actiniden – prominent sind Plutonium, Uran, Neptunium zu nennen – zeigt ebenfalls eine starke Abhängigkeit von den Redoxbedingungen. Die korrekte Einschätzung übergeordneter Redoxprozesse hat einen starken Einfluss auf die Richtigkeit und Belastbarkeit abgeleiteter Radionuklidlöslichkeiten bzw. Aussagen zur Sorptionsrückhaltung von Radionukliden. In diesem Kontext sind sowohl die Redoxreaktionen der Radionuklide, als auch die primären redoxkontrollierenden Prozesse des geochemischen Systems/Milieus genauer zu analysieren, um zu verbesserten Einschätzungen dieser sicherheitsrelevanten Prozesse zu kommen.

- Zeitliche Entwicklung von Redoxbedingungen

In verschiedenen internationalen Projekten zur Bewertung der Sicherheit von Endlagern in Tongestein oder Kristallin wird der Einfluss von nicht-konstanten Redoxbedingungen auf geochemische Prozesse bewertet. Auch im Rahmen der WIPP, also für ein Endlager in Steinsalz, wurden Redoxprozesse als Funktion der Zeit analysiert, um die Ableitung reiner Pu(III) bzw. Pu(IV) Quellterme zu stützen. Aus Sicht des INE ist auch im Rahmen von Arbeiten zur Sicherheit der Schachtanlage Asse II vermehrt Augenmerk auf mögliche Randbedingungen zu legen, in denen es als Funktion der Zeit sowohl zu einer systematischen Änderung der Lösungszusammensetzung in den Einlagerungskammern, als auch zu starken Änderungen der Redoxbedingungen kommt. Zum Beispiel wäre ein zeitlich kontrollierter Übergang von initial oxidierenden, d.h. sauerstoff-haltigen, über sauerstoff-freie bis hin zu stark reduzierenden Redoxbedingungen zu bewerten. Dieses ist im Rahmen der bisherigen Studien für relevante Radionuklide in der Schachtanlage Asse II nicht erfolgt. Eine Übertragung von Aussagen zu Radionuklidlöslichkeiten oder Sorptionsrückhaltung von Radionukliden zwischen Systemen mit stark unterschiedlichen Redox-eigenschaften ist nur stark eingeschränkt möglich und tendenziell ausgesprochen unsicher bzw. falsch. Unsicherheiten, wie sich die Radionuklid-Redoxstufenverteilung in salinärer Lösung unter verschiedenen redox-beeinflussenden Randbedingungen entwickelt, sollten deshalb explizit analysiert und näher quantifiziert werden. Es sollte eine verbesserte Beschreibung der Radionuklid-Redoxchemie und ihrer zeitlichen Entwicklung für hohe Ionenstärken unter den erwarteten spezifischen Bedingungen der Einlagerungskammern in der Schachtanlage Asse II angestrebt werden. Dies dient der Erhöhung der Robustheit der Aussagen zum Radionuklidquellterm auf Kammer- und Einlagerungsbereichsebene.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 34 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

- Reaktionskinetiken

Redoxprozesse von Actiniden sind oft durch relativ langsame Reaktionskinetiken charakterisiert. In Abhängigkeit von den betrachteten Randbedingungen und deren zeitlicher Entwicklung ist für einige Prozesse die Einschätzung von Reaktionskinetiken denkbar, um ein möglichst genaues Prozessverständnis zu dokumentieren. Aufgrund der Komplexität kinetischer Effekte ist es sinnvoll, diese primär als „Bandbreiten“ abzubilden und als solche in den Ableitungen zum ELK-Radionuklidquellterm zu berücksichtigen.

- Eisenkorrosion

In den Einlagerungskammern ist ein erhebliches Inventar an metallischem Eisen vorhanden. In Kontakt mit wässriger Lösung werden korrosive Prozesse ablaufen, in anoxischen Systemen z.B. die Wasserstoffproduktion bei gleichzeitiger Oxidation des Eisens. Die Abhängigkeit der Metallkorrosion und der damit verbundenen Bildung von Wasserstoffgas wird in Abschnitt 4.4 „Abhängigkeit der Metallkorrosion und Gasbildung vom geochemischen Milieu“ behandelt. Hinsichtlich der Radionuklidchemie ist zu erwarten, dass sich das Redoxmilieu unter den mittelfristig erwarteten anoxischen Bedingungen im Wesentlichen als Funktion der Eisenchemie entwickeln wird. Aufgrund des starken Einflusses von Redoxbedingungen auf die Radionuklidchemie sind Fragen der Eisenkorrosion direkt mit der Ableitung von belastbaren Radionuklidlöslichkeiten korreliert. Zudem ist bekannt, dass Actiniden stark an sekundären Eisenkorrosionsprodukten durch Sorption zurückgehalten werden, wodurch es zu einer erheblichen Retention der Actiniden in den Einlagerungskammern kommen kann. Obwohl sich die geochemischen Reaktionen und Reaktionspfade in salinaren Lösungen und niedrig salinaren Systemen generell nicht direkt vergleichen lassen, sind die relevanten Hauptprozesse der Eisenkorrosion zunächst einmal sehr ähnlich. Dementsprechend sollte hinsichtlich des „Stand von W&T“ auch für Sicherheitsbetrachtungen von Radionukliden unter salinaren Bedingungen eine Methodik und Systematik angewendet werden, wie sie in vergleichbaren Analysen für niedrig-salinare Bedingungen etabliert wurden. Als Konsequenz dieser Faktoren ist es somit sinnvoll und sicherheitsgerichtet, mittelfristig zu einer verbesserten Beschreibung der Eisenkorrosion unter salinaren Bedingungen zu kommen. Hierdurch würde ein Abbau von Ungewissheiten erfolgen und ein verbesserter Kenntnisstand realisiert. Es ist im Sinne einer nachvollziehbaren und wissenschaftlich überzeugenden Darstellung ebenfalls sinnvoll, diese Prozesse zukünftig thermodynamisch besser beschreiben und geochemisch modellieren zu können. Hierzu wäre ein entsprechendes thermodynamisches (Pitzer-)Modell für Fe(II)- und Fe(III)- Systeme abzuleiten sowie eine kritische Einschätzung relevanter Eisenkorrosionsphasen zu leisten.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 35 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

Defizit	Unzureichend genaue Bewertung der Redoxchemie von Radionukliden und redoxkontrollierenden Prozessen.
Begründung	ELK-Quelltermabschätzungen für redoxsensitive Radionuklide in salinaren Lösungen benötigen eine Einschätzung der Redoxchemie. Sicherheitsrelevante Defizite existieren hinsichtlich (a) Auswirkung der Variation von Redoxbedingungen, (b) Auswirkung von Reaktionskinetiken, (c) Eisenkorrosion und Radionuklidrückhaltung.
Relevanz	mittel. (a) W&T, (b) F&E, (c) W&T
Konsequenz, wenn Defizit nicht behoben wird	Ungewissheiten bei der Einschätzung der Auswirkung von Redoxprozessen auf Radionuklidlöslichkeit und Radionuklidadsorption.
Zeitbedarf zum Beheben des Defizits	(a) kurzfristig, (b) mittelfristig, (c) mittelfristig

6.3 PRIMÄR RELEVANTE ANORGANISCHE LIGANDEN: HYDROXID, CARBONAT

- Hydroxid

In aquatischen Systemen ist Hydroxid ein ubiquitär vorkommender und stark komplexierender anorganischer Ligand. Zudem bilden Actiniden verschiedene schwer lösliche hydroxidhaltige Festphasen aus. Dementsprechend hoch ist die Notwendigkeit, die Hydroxidkomplexierung bzw. Hydrolyse als wesentlichen Primärprozess für als relevant angesehene Radionuklide detailliert beschreiben zu können. Angesichts des vorhandenen guten Kenntnisstandes ist aus Sicht des INE keine Priorität auf neue Untersuchungen zur Actinidenhydrolyse unter den Randbedingungen der Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II zu legen. Eine Ausnahme ist das Plutonium. Im Kontext der Actinidenhydrolyse ist die Einschätzung von Pu(III) hinsichtlich aquatischer Spezies und Festphasen vergleichsweise kritisch. Diese Aspekte sind Teil der nachfolgend diskutierten Fragestellung zu Stabilität löslichkeitsbestimmender Pu(III)-Festphasen. Der Einfluss und die Stabilität von Eigenkolloiden vierwertiger Actiniden auf ELK-Quellterme kann konservativ abgeschätzt werden.

- Carbonat

Ein weiterer stark komplexbildender anorganischer Ligand ist Carbonat. Obwohl in $MgCl_2$ - bzw. $CaCl_2$ -dominierten Systemen von einer entscheidenden Begrenzung des Carbonats über die Ausfällung sekundärer Mg-Carbonat- bzw. Ca-Carbonat-Festphasen ausgegangen werden kann, gibt es neuere Befunde, die darauf hinweisen, dass dennoch ein relevanter Carbonateffekt auf die Actinidenlöslichkeit in $MgCl_2$ -dominierten Lösungen existieren kann. Die Bewertung der Löslichkeit von Actiniden und insbesondere der Löslichkeitsprozesse des Plutoniums sind von zentralem Interesse für die Einschätzung der Radionuklidenausbreitung in der Schachtanlage Asse II.

Insbesondere die Actiniden haben eine starke Affinität zur Bildung von Carbonatkomplexen. Während auf Basis aktueller Befunde (Altmaier et al., 2016) der Einfluss eines Carbonateffekts auf



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 36 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

die Löslichkeit von Americium als weniger kritisch angesehen werden kann, ist die Situation hinsichtlich des Plutoniums deutlich komplizierter. Die Ableitung belastbarer Plutoniumlöslichkeiten ist für verschiedene denkbare geochemische Bedingungen bei Anwesenheit von Carbonat derzeit nur mit großen Unsicherheiten möglich. Unter stark reduzierenden Bedingungen existiert prinzipiell die Möglichkeit von Löslichkeitskontrolle über Pu(III)- oder Pu(IV)-Festphasen, die deutlich unterschiedliche Pu-Lösungskonzentrationen in $MgCl_2$ -Systemen ergeben. Durch eine bessere Beschreibung der Plutoniumchemie in hochsalinaren Lösungen unter reduzierenden Bedingungen können wesentliche Unsicherheiten abgebaut werden. Aus Sicht des INE ist es notwendig, die Plutoniumchemie unter den für die Schachtanlage Asse II relevanten Bedingungen und in Gegenwart von Carbonat sowie stark reduzierenden Bedingungen im Rahmen von neuen experimentellen Arbeiten genauer zu analysieren und mittelfristig verbessert zu quantifizieren. Die zentrale Frage ist hier, ob feste Pu(III)-Verbindungen – etwa des Carbonats, Sulfids, Phosphats bzw. bestimmter Organik – die Löslichkeit kontrollieren, oder ob Pu(IV)-Festphasen stabiler bleiben und eine Begrenzung der Plutoniumlöslichkeit über die bekannte $PuO_2(s)$ -Festphase erfolgt.

Wie in Altmaier et al. (2016) detailliert beschrieben, hat Carbonat in konzentrierter $MgCl_2$ -Lösung einen deutlichen Effekt auf die Radionuklidspeziation, wobei unter Anwesenheit von Carbonat das Vorliegen von An(III)-Carbonatkomplexen ausgegangen werden muss. Es ist unter diesen Bedingungen durchaus wahrscheinlich, dass die wässrige Speziation von dreiwertigen Actiniden nicht durch (positiv geladene) An(III)-Hydroxidkomplexe bestimmt wird, sondern durch höhere Carbonatkomplexe mit tendenziell anionischer Ladung. Dieses ist ausgesprochen kritisch hinsichtlich der Übertragbarkeit von Studien zur Sorptionsrückhaltung dreiwertiger Actiniden im carbonatfreien System auf carbonathaltige Bedingungen in salinaren Lösungen. Da die belastbare Einschätzung der Sorptionsrückhaltung von Plutonium bisher ein wesentlicher Aspekt bei der Bewertung der Plutoniummobilisierung aus der Schachtanlage Asse II ist, ist dieses Thema als sicherheitsgerichtet charakterisiert.

- Kontrolle der Carbonatkonzentration durch Mg-hydroxo(chloro)carbonat-Festphasen

Wie oben diskutiert, ist das Vorhandensein von gelöstem Carbonat in $MgCl_2$ -Lösung für eine korrekte Einschätzung der Radionuklidchemie prinzipiell nicht zu vernachlässigen und sicherheitsrelevant. Um zu einer belastbaren Modellierung von dreiwertigen Actiniden in carbonathaltigen $MgCl_2$ -Lösungen zu kommen, ist es notwendig, ein belastbares Modell zur Stabilität und Thermodynamik von relevanten Mg-hydroxo(chloro)carbonat-Festphasen abzuleiten, da diese die Carbonatkonzentration in Lösung und den pH-Wert kontrollieren. Ein solches Modell ist derzeit nicht vorhanden. Neben dem potentiellen Einfluss auf die Modellierung der Carbonatkomplexierung von Actiniden und anderer Schwermetalle, existieren hier wesentliche Implikationen für die Berechnung des geochemischen Milieus und der Quantifizierung von Carbonat-Rückhaltung. Die genaue Stöchiometrie von ausgefallenen Mg-hydroxo(chloro)carbonat-Festphasen (d.h. das Magnesium / Carbonat-Verhältnis) kontrolliert, welche Menge Carbonat an einer gegebenen Menge $MgCl_2$ -reicher Lösung zurückgehalten werden kann. Dieser Punkt ist für die richtige Berechnung der geochemischen Entwicklung für verschiedene Einlagerungskammern relevant. Es besteht hier die klare Notwendigkeit, alle Rechnungen auf Basis einer transparenten und nachvollziehbaren thermodynamischen Datenbasis durchzuführen.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 37 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

Defizit	Ungenauere Einschätzung der Radionuklidlöslichkeit und Speziation bei Anwesenheit von Carbonat.
Begründung	Die Radionuklidlöslichkeit bei Anwesenheit von Carbonat und insbesondere die Plutoniumlöslichkeit kann auf Basis des derzeitigen Kenntnisstands nicht genau vorhergesagt werden. Hierdurch werden signifikante Unsicherheiten bedingt.
Relevanz	hoch, F&E.
Konsequenz, wenn Defizit nicht behoben wird	Große Unsicherheiten bei der Einschätzung der relevanten Radionuklidspeziation, hohe Unsicherheiten beim Plutonium-Quellterm auf Kammerebene.
Zeitbedarf zum Beheben des Defizits	kurzfristig

6.4 SEKUNDÄR RELEVANTE ANORGANISCHE LIGANDEN

Verglichen mit den im vorherigen Kapitel 6.3 diskutierten primär relevanten anorganischen Liganden Hydroxid und Carbonat, gibt es in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II zusätzliche anorganische Liganden, die das Löslichkeitsverhalten von Radionukliden potentiell beeinflussen können. Aufgrund verschiedener Faktoren, etwa der bekannten Komplexbildungstendenz anorganischer Liganden oder vergleichsweise niedriger erwarteter Konzentrationen, werden diese anorganischen Liganden lediglich als sekundär relevant eingeschätzt. Es besteht mittelfristig die Notwendigkeit, die für vereinfachte geochemische Bedingungen abgeleiteten Radionuklidlöslichkeiten hinsichtlich der Wechselwirkung von relevanten sekundären Liganden mit Radionukliden besser abzusichern. Dieses dient dem Abbau von Konservativitäten und der Dokumentation eines adäquaten Prozessverständnisses. Die explizite Analyse dieser Effekte ist im Sinne einer gezielten Sicherung von Qualität, Belastbarkeit und Nachvollziehbarkeit von Radionuklidquelltermen auf ELK- und ELB-Ebene erforderlich.

Wichtige sekundäre Liganden, welche in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II vorhanden sind, sind zum Beispiel Nitrat, Borat, Sulfat, Fluorid, Phosphat, Sulfid und Silikat. Der potentiell nicht zu vernachlässigende Einfluss von Organik auf die ELK-Radionuklidquellterme wird in dem nachfolgenden Kapitel eingehend analysiert. Neue Untersuchungen zu Nitrat und Borat sind für einige Radionuklide auch für saline Lösungen (Herm, M. (2015), Hinz, K. (2015)) vorhanden. Basierend auf diesen neuen Arbeiten sollte, wie in Kapitel 6.1 erwähnt, für verschiedene Radionuklide eine verbesserte Quelltermabschätzung auf Kammerebene erfolgen, wobei es jedoch derzeit sicherlich keine umfassende Beschreibung eines Borat- oder Nitratinflusses unter endlagerrelevanten Bedingungen gibt und zusätzliche F&E Arbeiten sinnvoll sind. Der Einfluss von Sulfat auf die Radionuklidlöslichkeit unter den Bedingungen in den Einlagerungskammern wird in erster Analogie zu bekannten niedrig-salinaren Systemen tendenziell als gering angesehen.

Ungewissheiten bestehen vor allem hinsichtlich der Wechselwirkung von Radionukliden mit Phosphat, Sulfid bzw. Silikat. Während auch in konzentrierten Salzlösungen nach dem derzeitigen Kenntnisstand nicht von einem stark löslichkeitserhöhenden Einfluss dieser Liganden ausgegangen werden muss, besteht die Möglichkeit der Ausfällung schwerlöslicher Radionuklidfestphasen. Denkbar ist, dass analog zu dem im carbonathaltigen System beobachteten Verhalten auch mit diesen Liganden Pu(III)-Festphasen stabilisiert werden könnten. Die genauere Kenntnis entsprechender Prozesse ist insoweit wichtig, als dass hiermit die



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 38 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

Belastbarkeit der für phosphat-, sulfid- bzw. silikatfreie Systeme abgeleiteten Radionuklidlöslichkeiten im Sinne abdeckender Konzentrationsobergrenzen gerechtfertigt wird.

Defizit	Ungenau Bewertung der Wechselwirkung von Radionukliden mit sekundär relevanten Liganden, z.B. Nitrat, Borat, Sulfat, Fluorid, Phosphat, Sulfid und Silikat.
Begründung	Es gibt Ungewissheiten bei der Ableitung von Radionuklidlöslichkeiten und Radionuklidspeziation für Systeme, in denen sekundär relevante Liganden wie z.B. Nitrat, Borat, Sulfat, Fluorid, Phosphat, Sulfid oder Silikat vorhanden sind.
Relevanz	mittel, F&E.
Konsequenz, wenn Defizit nicht behoben wird	Unsicherheiten bei der Ableitung von Radionuklidlöslichkeiten und Einschätzung der Radionuklidspeziation.
Zeitbedarf zum Beheben des Defizits	Mittelfristig

6.5 RADIONUKLIDRÜCKHALTUNG DURCH WECHSELWIRKUNG AN MINERALOBERFLÄCHEN

In den Einlagerungskammern besteht primär die Möglichkeit der Rückhaltung an Eisenkorrosionsphasen (siehe Kapitel 6.2) sowie Zementphasen und deren Alterationsprodukten. Dieses wurde bereits in verschiedenen Arbeiten berücksichtigt und für einzelne unterstellte geochemische Bedingungen untersucht, wobei dieser Kenntnisstand sicher nicht als abdeckend für alle relevanten Bedingungen zu charakterisieren ist (siehe Einfluss von Carbonat, Organik). Ein wichtiger sicherheitsrelevanter Aspekt ist, dass die Wechselwirkung von Radionukliden mit Mineraloberflächen direkt von den geochemischen Randbedingungen abhängt. Letztere bestimmen sowohl die Speziation von Radionukliden in der wässrigen Phase als auch Charakteristika von Mineraloberflächen sowie die vorliegenden (um Sorptionsplätze) konkurrierenden Liganden. Als Konsequenz hieraus ist die Notwendigkeit gegeben, Prozesse der Sorptionsrückhaltung von Radionukliden (in Ermangelung umfassender Modellierungsmöglichkeiten) unter analogen geochemischen Bedingungen wie für die Einlagerungskammern erwartet, abzuleiten. Eine „Verallgemeinerung“ oder Extrapolation von Befunden von einer Randbedingung auf andere Randbedingungen ist ohne explizite und ggf. experimentelle Validierung nicht belastbar. Dieses ist insofern für solche Systeme kritisch, für die Hinweise auf spezifische Effekte (etwa im Carbonatsystem in $MgCl_2$ -Lösungen, siehe Altmaier et al. (2016)) vorliegen. Eine Diskussion des möglichen Einflusses von Organik auf die Radionuklidrückhaltung wird in Kapitel 7.3 „Sorptionsrückhaltung von Radionukliden bei Anwesenheit von Organik“ gesondert diskutiert.

Experimentelle Studien zur Rückhaltung von Am und Pu an Zementkorrosionsprodukten in schwach bis stark alkalischen Mg-Ca-Na-reichen Salzlösungen (Lützenkirchen et al., 2004; Metz et al., 2011a) sowie neuere Experimente zur Rückhaltung von Cm und Lanthaniden an Brucit sowie Sorelphasen in schwach alkalischen Mg-Na-reichen Salzlösungen (Wiedemann et al., 2013; 2014) liefern belastbare Daten, die für eine Bandbreite geochemischer Bedingungen auf die Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II übertragen werden können. Aufgrund des hohen Inventars an Zementstein und der in Betracht gezogenen Einbringung von Brucit- oder Sorel-haltigen Puffer-/Versatzmaterialien (Mg-Depot) könnten in bestimmten Fällen auch in den Einlagerungskammern für einige Radionuklide Rückhalteprozesse unterstellt werden. In



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 39 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

Vorversuchen von Kienzler et al. (2012) wurde beobachtet, dass Sorel-basierte Baustoffe für das Lanthanid Eu ein ähnliches Rückhaltevermögen aufweisen, wie die Sorelphase $Mg_2(OH)_3Cl \cdot 4H_2O$, die unter den spezifischen Temperaturbedingungen in den Einlagerungskammern thermodynamisch stabil ist. Darüber hinaus zeigen Langzeit-Messungen der „1:1 Gebindeexperimente“ mit zementierten Abfallsimulaten in Kontakt mit Salzlösungen eine signifikante Rückhaltung von Np (Kienzler et al., 2015). Die „1:1 Gebindeexperimente“ unter alkalischen pH-Bedingungen ergeben ähnliche Np-Sorptionskoeffizienten, wie diejenigen, die in Sorptionsexperimenten unter Laborbedingungen ermittelt wurden (Metz et al., 2005). Eine genauere Analyse der Radionuklidrückhaltung an diesen Festphasen, welche auch andere Radionuklide umfasst, ist im Rahmen einer umfassenden Einschätzung der Radionuklidrückhaltung von Bedeutung.

Sorptionsprozesse von Radionukliden an Mineralphasen finden nicht nur in den ELK statt, welche in der vorliegenden „Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II“ behandelt werden. Darüber hinaus werden Sorptionsprozesse im Grubengebäude sowie im Deckgebirge auftreten. Analog zum Vorgehen bei der Beschreibung der Radionuklidrückhaltung auf Kammerebene, müssen auch für Festphasenkomponenten des Grubengebäudes oder des Deckgebirges unter den jeweils relevanten geochemischen Bedingungen für die verschiedenen Radionuklide zuverlässige Daten (z.B. K_d -Werte) zur quantitativen Beschreibung von Sorptionsrückhaltung zu Verfügung stehen.

Defizit	Unzureichend genaue Bewertung der Radionuklidrückhaltung durch Wechselwirkung an Mineraloberflächen in den Einlagerungskammern (Sorption).
Begründung	Die Radionuklidrückhaltung durch Sorption an Mineraloberflächen hängt direkt von den jeweiligen geochemischen Randbedingungen ab. Eine „Verallgemeinerung“ oder Extrapolation von Befunden von einer Randbedingung auf andere Randbedingungen ist ohne explizite und ggf. experimentelle Validierung nicht belastbar.
Relevanz	Hoch, W&T.
Konsequenz, wenn Defizit nicht behoben wird	Keine Berücksichtigung der Radionuklidrückhaltung durch Wechselwirkung an Mineraloberflächen.
Zeitbedarf zum Beheben des Defizits	mittelfristig



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 40 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

7 DEGRADATION ORGANISCHER KAMMERINHALTSTOFFE SOWIE WECHSELWIRKUNG ORGANISCHER ABBAUPRODUKTE MIT RADIONUKLIDEN

In diesem Kapitel werden die potentielle Wechselwirkung von Organik mit Radionukliden und die Degradation organischer Inhaltstoffe in den Einlagerungskammern auch unter Behandlung mikrobieller Effekte beschrieben. Der Fokus liegt hierbei auf der Relevanz dieser Effekte für die Ableitung von belastbaren Radionuklidquelltermen auf ELK-Ebene. Die hier beschriebenen Aspekte sind sicherheitsrelevant und sollten prioritär bearbeitet werden. Die Analyse der Gasproduktion auf Grund von Organik-Degradation ($\text{CO}_2(\text{g})$, $\text{CH}_4(\text{g})$) ist nicht Bestandteil der Arbeiten des KIT-INE.

Es soll in diesem Kontext einleitend festgestellt werden, dass es angesichts der großen Anzahl an verschiedenen organischen Substanzen nicht zielführend ist, die Vielzahl an möglichen organischen Liganden jeweils einzeln explizit zu untersuchen. Vielmehr kann das bekannte und vielfach angewandte Prinzip der organischen Chemie herangezogen werden, die organischen Substanzen systematisch anhand sog. funktioneller Gruppen zu klassifizieren und somit hinsichtlich des chemischen Verhaltens einzuschätzen. Hierdurch wird die Anzahl der zu analysierenden Teilsysteme wesentlich begrenzt und gezielte Analysen realisierbar, ohne bestimmte Substanzen oder ganze Substanzklassen unberücksichtigt zu lassen.

Für die Analyse der Organik-Radionuklid-Wechselwirkung und übergeordneter strategischer Konzepte gelten die im Kapitel 6 „Aquatische Chemie und Thermodynamik relevanter Radionuklide in der Schachtanlage Asse II“ getroffenen prinzipiellen Ausführungen.

Die Bildung nicht-wässriger flüssiger Phasen (non aqueous phase liquid, NAPL) aus organischen Polymeren wurde in der Literatur insbesondere unter dem Einfluss von Strahlenfelder mit hoher Dosisleistung oder bei höheren Temperaturen in Lösungen sehr geringer Ionenstärke untersucht (Dawson und Magalhães, 2012; Dawson, 2013; Smith et al., 2013, Baston und Dawson, 2014, Dawson, 2014). Die Übertragbarkeit auf die erwarteten Bedingungen in den ELK der Schachtanlage Asse II ist überaus fraglich. Insbesondere angesichts der geringen Dosisleistung der schwach- und mittelaktiven Abfälle (z.B. $< 0,36 \text{ Gy/h}$ in ELK 8a/511 (EWN, 2008)) und den Temperaturbedingungen in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II wird die Ausbildung einer separaten organischen Phase in hochsalinaren Lösungen als sehr unwahrscheinlich angesehen. In der Einschätzung von KIT-INE liegt hier kein Handlungs- oder Forschungsbedarf vor.

7.1 EFFEKT VON ORGANIK AUF DIE ABLEITUNG VON RADIONUKLIDLÖSLICHKEITEN

In den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II sind teils sehr große Mengen an – chemisch mitunter stark unterschiedlichen – organischen Materialien eingebracht worden. Hierzu zählen beispielsweise verschiedene Dekontaminationsmittel (u.a. EDTA), organische Säuren, Tenside, Betonzusatzmittel (Additive wie „Superplasticizer“), Zellulose sowie sonstiges Inventar (z.B. TBP). Eine Zusammenstellung des für die Schachtanlage Asse II anzunehmenden Abfallinventars ist vorhanden (Buchheim et al. 2004). Die organischen Stoffe, aber auch deren Abbauprodukte wie ISA (Isosaccharinsäure, bildet sich u.a. in überzementierten Zelluloseabfällen), bzw. Substanzen wie Phthalat oder Gluconat welche potentiell aus polymeren organischen



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 41 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

Komponenten freigesetzt werden, können das Verhalten von Radionukliden in wässriger Lösung entscheidend beeinflussen. Die Wechselwirkung erfolgt potentiell sowohl über die Ausbildung stabiler, löslichkeitserhöhender Radionuklid-Organik-Komplexe als auch über die Bildung fester Radionuklid-Organik-Verbindungen. Organische Liganden können zudem potentiell die Stabilität der Oxidationsstufen von Radionukliden beeinflussen. Aufgrund der erwarteten hohen Relevanz von Plutonium für die Auswirkungsanalyse gelten hinsichtlich des Einflusses von Organik die im Abschnitt 6.3 „Primär relevante anorganische Liganden: Hydroxid, Carbonat“ für Carbonat gemachten Aussagen, wenn auch der Einfluss von Organik in dieser Hinsicht tendenziell als weniger kritisch angesehen wird. Eine verbesserte Bewertung des Einflusses der Organik auf die Actinidenredoxchemie ist für ein verbessertes Verständnis und den Abbau von Ungewissheiten sinnvoll.

In früheren Arbeiten wurde ein Einfluss von Radionuklid-Organik-Wechselwirkungen in salinaren Lösungen anhand des Vergleichs verschiedener Komplexbildner mit dem Verhalten von EDTA abgeschätzt. Dieses Herangehen war damit begründet, dass EDTA als ausgesprochen starker, chelatbildender Ligand als „abdeckend“ für das Verhalten schwächer komplexierender organischer Moleküle angesehen wurde. Nach aktuellem Kenntnisstand ist diese Vorgehensweise sehr kritisch zu bewerten, da es potentiell zu erheblichen Ungenauigkeiten der in Ausbreitungsrechnungen zugrunde gelegten Radionuklidkonzentrationen und Retentionsprozessen führen kann. Insbesondere die Eigenschaft einiger organischer Liganden (z.B. Alpha-Hydroxy-Carbonsäuren wie Gluconat oder Isosaccharinsäure), stabile ternäre Komplexe mit Calcium zu bilden (System „Calcium-Radionuklid-Organik“), ist problematisch, da es hier potentiell zu stark löslichkeitserhöhenden Effekten in CaCl_2 -haltigen Systemen kommen kann, die für EDTA bisher nicht bekannt sind. Das potentielle Vorliegen sehr hoher CaCl_2 -Konzentrationen ist für einige Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II charakteristisch. Für stark alkalische Systeme ist weiterhin potentiell die Ausbildung gemischter Actinid-Organik-Hydroxid-Spezies möglich, die gleichfalls ein chemisches Verhalten zeigen könnten, welches nicht hinreichend über EDTA abgebildet wird.

Zur Bewertung des Effektes von Organik auf die potentielle Freisetzung von Radionukliden aus den Einlagerungskammern besteht die Notwendigkeit, den Einfluss von organischen Komplexbildnern auf die Radionuklidlöslichkeit belastbar quantifizieren zu können. Hier sind aktuelle wissenschaftliche Erkenntnisse anzuwenden sowie perspektivisch der Kenntnisstand gezielt auszubauen und in jedem Fall zumindest stichpunktartig experimentell zu validieren. Unter expliziter Beurteilung des Einflusses relevanter Organik ist aus Sicht des INE eine signifikante Überarbeitung der Abschätzung von Radionuklidlöslichkeiten erforderlich. Dieses betrifft sowohl die abgeleiteten maximalen Radionuklidlöslichkeitskonzentrationen als auch die Qualität und Transparenz der angewendeten Methodik.

Defizit	Unzureichende Bewertung des Effekts von Organik auf Radionuklidlöslichkeiten und Radionuklidspeziation
Begründung	Die Löslichkeit und Speziation von Radionukliden werden potentiell stark von organischen Liganden beeinflusst. Das frühere Vorgehen, sämtliche Effekte von Organik-Radionuklid-Wechselwirkungen über EDTA einzugrenzen, ist aus dem derzeitigen Kenntnisstand nicht mehr anwendbar.
Relevanz	hoch, W&T (erweitert durch F&E).
Konsequenz, wenn Defizit nicht behoben wird	Große Unsicherheiten in Radionuklidlöslichkeiten und Radionuklidspeziation.
Zeitbedarf zum Beheben des Defizits	kurzfristig

 Bundesamt für Strahlenschutz				Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II			
Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 42 von 67	
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017	

7.2 BEWERTUNG MIKROBIELLER PROZESSE UND ORGANISCHER ABBAUPRODUKTE

Mikrobielle Prozesse führen zu einem Abbau von organischem Material in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II, wobei verschiedene organische Abbauprodukte sowie u.a. CO₂(g) entstehen können. Ohne eine robuste Bewertung dieser Effekte kann eine potentielle Ausbreitung von Radionukliden in der Schachtanlage Asse II nur mit sehr großen Ungenauigkeiten bewertet werden. Ziel kann in diesem Themenkontext jedoch nicht sein, prioritär ein detailliertes wissenschaftliches Verständnis diverser mikrobiell induzierter Prozesse abzuleiten. Wissenschaftlich sehr interessante Fragen, z.B. welche mikrobiellen Populationen hier aktiv sein könnten, sind für die Bewertung der Radionuklidchemie in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II lediglich sekundär relevant. Die Priorität der Arbeiten muss auf die Identifizierung, Charakterisierung und Quantifizierung von wesentlichen Hauptprozessen mit direkter Relevanz für die Ableitung von ELK-Radionuklidquelltermen fokussiert werden.

Insbesondere auch aus Arbeiten, die im Kontext der WIPP in salinaren Lösungen durchgeführt wurden, ist bekannt, dass mikrobielle Prozesse im Endlager unter salinaren Bedingungen stark von der Ionenstärke (bzw. der thermodynamischen Wasseraktivität) abhängen. Salinare Bedingungen sind hinsichtlich mikrobieller Aktivität prinzipiell als ungünstig charakterisiert. Weiterhin wurde gezeigt, dass mikrobielle Prozesse im Endlagersystem zu einer Reduktion höherer Oxidationsstufen von Radionukliden zu niedrigeren führen, ein Effekt, der auf Grund der über Eisenkorrosion mittelfristig vorhandenen stark reduzierenden geochemischen Bedingungen jedoch ohnehin stattfindet und nicht explizit analysiert werden muss. Es ist ebenfalls bekannt, dass es zur Sorption von Radionukliden an mikrobiellen Komponenten kommen kann. Dieser spezifische Effekt ist angesichts der eklatant höheren Mengen an Eisenkorrosionsprodukten oder Zement(alterations)phasen bei der Bewertung von Radionuklidrückhaltung zu vernachlässigen. Generell befolgen Mikroben wie alle Lebewesen eine „Energiebilanz“, d.h. entsprechende Aktivitäten sind direkt von der Verfügbarkeit ausreichender Nährstoffe wie z.B. Nitrat oder Sulfat abhängig. Dieses ist bei der Bewertung mikrobieller Prozesse entsprechend zu bilanzieren.

Der wichtigste Aspekt in diesem Themenkontext ist die Tatsache, dass über mikrobielle Prozesse das im Endlager vorhandene organische Material „zersetzt“ und somit mittel- und langfristig abgebaut werden kann. Es wird durch mikrobielle Abbauprozesse deshalb mit hoher Wahrscheinlichkeit zur Bildung verschiedener zusätzlicher organischer Abbauprodukte sowie der Bildung von CO₂(g) kommen. Der Einfluss dieser Stoffe auf den ELK-Radionuklidquellterm ist sicherheitsrelevant und muss explizit eingeschätzt werden. In diesem Rahmen können die verschiedenen organischen Substanzen, die potentiell durch mikrobielle Abbauprozesse gebildet werden können, aus Sicht des INE als „zusätzliche organische Liganden“, aufgefasst werden, die zu einer potentiellen Komplexbildung von Radionukliden führen können und somit potentiell für die Ableitung von Radionuklidlöslichkeiten bzw. Radionuklidsorption relevant sind. Diese können entsprechend der einführend in Kapitel 7 skizzierten Vorgehensweise, wie andere in der Asse vorhandene nicht-mikrobiell produzierte organische Liganden auch, anhand der funktionellen Gruppen klassifiziert und hinsichtlich der potentiellen Wechselwirkung mit Radionukliden in salinaren Lösungen bewertet werden. Es besteht somit ein Bezug zu den anderen in Kapitel 7 behandelten Themen.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 43 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

Defizit	Ungenau Bewertung von mikrobiellen Prozessen und organischen Abbauprodukten.
Begründung	Mikrobiell induzierte Prozesse können das Verhalten von Radionukliden beeinflussen.
Relevanz	mittel, W&T erweitert durch F&E.
Konsequenz, wenn Defizit nicht behoben wird	Unsicherheiten bei der Ableitung von Radionuklidlöslichkeiten.
Zeitbedarf zum Beheben des Defizits	mittelfristig

7.3 SORPTIONSRÜCKHALTUNG VON RADIONUKLIDEN BEI ANWESENHEIT VON ORGANIK

Entsprechend den Ausführungen in Kapitel 6.5 „Radionuklidrückhaltung durch Wechselwirkung an Mineraloberflächen“ ist festzustellen, dass für eine belastbare Einschätzung der Radionuklidretention über Sorptionsprozesse an Mineraloberflächen der Einfluss von organischen Liganden explizit bewertet werden muss. Eine belastbare Einschätzung von Radionuklidsorptionsprozessen in der Schachtanlage Asse II ist sicherheitsrelevant. Änderungen der Radionuklidspeziation aufgrund von Komplexbildung von Radionukliden mit Organik können prinzipiell, ebenso wie die Sorption von Organik auf Mineraloberflächen, die Sorptionsrückhaltung von Radionukliden stark beeinflussen. Zum Beispiel wurde eine Studie zum Einfluss der organischen Liganden EDTA, Zitronensäure und Isosaccharinsäure auf die Sorption von Plutonium, Thorium, Uran und Neptunium an verschiedenen Baustoffen im Rahmen des ERAM Projekts durchgeführt (Gompper und Vejmelka, 1998), wobei die Übertragbarkeit der Befunde auf die erwarteten Bedingungen in der Schachtanlage Asse II nur sehr eingeschränkt möglich ist. Im Gegensatz zu Untersuchungen der Sorptionsrückhaltung bei Anwesenheit von Organik, gibt es verschiedene Studien zum Sorptionsverhalten von Radionukliden in salinaren Lösungen (Lützenkirchen et al., 2004; Metz et al., 2004; 2005; 2011a; 2011b; Wiedemann et al., 2014) bei Abwesenheit von organischen Liganden. Kann nun gezeigt werden, dass die Radionuklidretention in salinaren Systemen bei Anwesenheit von Organik gegenüber den analogen Organik-freien Systemen nicht signifikant beeinflusst wird, eröffnet sich ggf. ein Weg, um ohne neue umfassende experimentelle Studien zu einer ersten Einschätzung der Sorptionsrückhaltung von Radionukliden unter den Bedingungen in der Schachtanlage Asse II – d.h. bei Anwesenheit von organischen Liganden - zu kommen. Hierzu muss zumindest stichpunktartig, unter den relevanten geochemischen Randbedingungen der Einlagerungskammern in der Schachtanlage Asse II (pH, [Na], [Mg], [Ca], [Cl]), für relevante Radionuklide eine vergleichende Validierung erfolgen. Für den Fall, dass signifikante Unterschiede in der Radionuklidretention zwischen Organik-freien und hinsichtlich pH, [Na], [Mg], [Ca], [Cl] prinzipiell vergleichbaren Organik-haltigen Systemen gefunden werden, müssen gezielt neue Untersuchungen bei Anwesenheit von Organik durchgeführt werden um zu einer belastbaren Einschätzung der Sorptionsrückhaltung von Radionukliden bei Anwesenheit von Organik zu kommen.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 44 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

Defizit	Fehlende belastbare Einschätzung der Sorptionsrückhaltung von Radionukliden bei Anwesenheit von Organik.
Begründung	Eine belastbare Einschätzung von Radionuklidsorption ist sicherheitsrelevant. Organik beeinflusst potentiell die Sorption von Radionukliden.
Relevanz	hoch, W&T (erweitert durch F&E).
Konsequenz, wenn Defizit nicht behoben wird	Unsicherheiten bei der Quantifizierung des Einflusses von organischen Komplexbildnern auf die Sorption von Radionukliden. Unsicherheiten in ELK-Radionuklidquelltermen.
Zeitbedarf zum Beheben des Defizits	kurzfristig

7.4 DEGRADATION VON ORGANIK

Mit Hinblick auf das Langzeitverhalten von Radionukliden in Systemen mit organischen Liganden kann potentiell die Frage gestellt werden, wie stabil organische Liganden über sehr lange Zeiträume hinsichtlich einer weiteren Zersetzung in kleinere Abbauprodukte oder CO₂(g) sind. Diese Frage gilt prinzipiell auch hinsichtlich der organischen Komplexbildner in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II. Es erscheint aus Sicht der Radionuklidchemie jedoch nicht dringend notwendig, diesen Aspekt gesondert einzuschätzen, denn es ist möglich, den Effekt von gelöster Organik auf die Radionuklidlöslichkeit und -rückhaltung über die Ermittlung maximaler Konzentrationsobergrenzen organischer Liganden orientierend einzuschätzen. Eine mögliche Überschätzung der Konzentrationen eines organischen Liganden in einer Einlagerungskammer und somit eine Überschätzung des Effekts dieses Liganden auf die Radionuklidlöslichkeit und -rückhaltung wird hier in Kauf genommen, da keine Abbauprozesse unterstellt werden, die zu einer Verringerung der Ligandenkonzentrationen führen.

Defizit	Fehlende Kenntnis über die Degradation von organischen Komplexbildnern.
Begründung	Die Kenntnisse sind für die Quantifizierung der Konzentration komplexbildender organischer Liganden in den Einlagerungskammern notwendig.
Relevanz	gering, F&E.
Konsequenz, wenn Defizit nicht behoben wird	Mögliche Überschätzung des Einflusses gelöster Organik auf Radionuklidlöslichkeit und -retention.
Zeitbedarf zum Beheben des Defizits	langfristig



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 45 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

8 REKRITIKALITÄT IN DEN EINLAGERUNGSKAMMERN

In den Abfällen, die bis zum Jahr 1978 in die Schachtanlage Asse II eingelagert wurden, befinden sich spaltbare Uran- und Plutoniumisotope. Die Einlagerungsbedingungen definierten zulässige Aktivitäten für α - und β -/ γ -Strahler in Abhängigkeit der Abfallkategorien und der Vorbehandlung der Abfälle. Die Begrenzung der α -Aktivität basierte auf der Einhaltung einer maximalen Radiotoxizität, die gemäß den damals geltenden Umrechnungsfaktoren einem 3%igem Uranerz entsprach. Für Kernbrennstoffe in den Abfällen gab es zusätzliche Begrenzungen von 15 Gramm pro Gebinde (GSF, 1975). In einer Stellungnahme diskutierte Kienzler (2006), ob sich durch einen Kontakt der eingelagerten Abfälle mit zutretenden Salzlösungen und darauf folgende chemische Prozesse, die zur Degradation und Umsetzung der Abfallprodukte und zu neuen thermodynamisch stabilen Festphasen führen können, im weiteren Verlauf Aufkonzentrierungen von Kernbrennstoffen ergeben könnten und unter welchen Bedingungen eine Exkursion (Rekritikalität) überhaupt möglich wäre. Grundlagen der Stellungnahme waren die Verfüllkonzepte „G“ und „MAW“ (Förster und Marggraf, 2006) sowie die Angaben zu den kammerspezifischen Inventaren an Uran und Plutonium (Gerstmann et al., 2002).

Nach heutigem Kenntnisstand (TÜV, 2011a; 2011b) wurde das Plutonium-Inventar von Gerstmann et al. (2002) insgesamt zu niedrig angesetzt. Eine Angabe zur lokalen Verteilung des Plutonium-Inventars innerhalb der Einlagerungskammern lag nicht vor. Die von Kienzler (2006) durchgeführten Abschätzungen basieren auf einer hypothetischen Anreicherung des Urans (insbesondere durch den Zerfall des Pu-239 zu U-235). Diese Verhältnisse sind vom Plutonium-Inventar abhängig. Potentielle Aufkonzentrierungsprozesse wurden anhand einer Akkumulation an sorbierenden Festphasen und durch Verdrängung der Lösung aus den Einlagerungskammern diskutiert. Kienzler (2006) diskutierte den Einfluss von Neutronenabsorbern, wie Chlor und Bor. Hierbei wurde der gesamte thermische Einfangsquerschnitt von Chlor berechnet, der sich durch das Vorkommen an Chlorid-reichen Salzlösungen in den Einlagerungskammern ergibt. Die angenommenen kammerspezifischen Mengen an Salzlösungen basieren auf den Hohlraumvolumina der damaligen Verfüllkonzepte „G“ und „MAW“. Als Maß zur Bewertung des Auftretens einer Kritikalität wurde der Neutronenmultiplikationsfaktor k_{inf} verwendet und nach der „Vier-Faktor-Formel“ bzw. mit dem 172-Gruppen Wirkungsquerschnittsdatensatz mit ERANOS berechnet (Doriath et al., 1993). Modernere Codes bzw. modernere Wirkungsquerschnittsdatenbasen wurden beispielsweise von Behler et al. (2013) verwandt. Für ihre Kritikalitätsrechnungen kam der Monte-Carlo-Code KENO VI aus dem amerikanischen Codepaket SCALE 6 zum Einsatz (ORNL, 2009). Verwendet wurden hierbei die mitgelieferten ENDF/B VII.0 Wirkungsquerschnitte in 238 Energiegruppen. Zusätzlich wurde der Monte-Carlo-Code MCNP 5 Version 1.51 (Brown et al., 2009) eingesetzt. Hier wurden kontinuierliche ENDF/B VII.0 Wirkungsquerschnitte verwendet. Daneben wurden zu Vergleichszwecken für das Nuklid Cl-35 auch Daten aus anderen Wirkungsquerschnittsbibliotheken verwendet.

Im Rahmen einer Überarbeitung von Fragestellungen zur möglichen Rekritikalität im Fall eines Lösungszutritts in den Einlagerungskammern ist der neue Kenntnisstand zum kammerspezifischen Inventar an Plutonium und Uran sowie zum kammerspezifischen Lösungsvolumen zu berücksichtigen. Hierbei ist zu beachten, dass die in der Stellungnahme von Kienzler (2006) angestellten Überlegungen im Wesentlichen auf maximalen Lösungskonzentrationen von Plutonium und Uran in den Salzlösungen basieren. Daher spielt das Radionuklidinventar eine untergeordnete Rolle, da die Plutonium-Konzentrationen in den meisten Einlagerungskammern durch Löslichkeitsphänomene begrenzt werden. Die Plutonium- und Uran-Löslichkeiten sind wiederum vom jeweiligen geochemischen Milieu in den Einlagerungskammern abhängig. Bei einer Überarbeitung sollten die kammerspezifischen Uran(VI)- und Plutonium(III/IV/Kolloid)-



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 46 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		Stand: 28.02.2017
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		

Konzentrationen anhand neuerer Erkenntnisse hinsichtlich der Sorption an Festphasen (wie Zementkorrosionsprodukte oder Sorelphasen) überprüft werden.

Defizit	Die derzeitige Bewertung der Rekritikalität in den Einlagerungskammern ist aufgrund veralteter Datensätze zum kammer-spezifischen Plutonium- und Uran-Inventar nicht mehr aktuell.
Begründung	Der Kenntnisstand zum kammer-spezifischen Inventar an Plutonium und Uran sowie zum kammer-spezifischen Lösungsvolumen wurde verändert, jedoch wurde die Bewertung der Rekritikalität nicht aktualisiert.
Relevanz	gering, W&T.
Konsequenz, wenn Defizit nicht behoben wird	Ungewissheiten in der Abschätzung der kammer-spezifischen Neutronenmultiplikationsfaktor k_{inf} .
Zeitbedarf zum Beheben des Defizits	kurzfristig.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 47 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

LITERATURVERZEICHNIS

Aalto, H. (1997): Characterization of bituminized ion-exchange resins for final disposal at TVO power plant. In: Odoj, R., Baier, J., Brennecke, P., Kühn, K. (Hrsg.): Radioactive Waste Products 1997. - Proceedings RADWAP'97, Würzburg 23-26 Juni 1997.

Altmaier, M., Rabung, T., Lützenkirchen, J., Neck, V. (2016): Experimentelle Arbeiten zur Absicherung von Modellrechnungen und Maximalkonzentrationen für Plutonium und Americium. - Institut für Nukleare Entsorgung, Karlsruher Institut für Technologie, KIT-INE.

Baltes, B., Becker, A., Fischer-Appelt, K., Lambers, L., Larue, J., Navarro, M. (2008): GRS-Stellungnahme zu dem Prüfbericht „Gesamtbewertung der Langzeitsicherheit für den Standort Asse (Gesamtbewertung)“ (entspricht Prüfunterlage Xa) Stand: 2006. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit gGmbH, Köln (14. Januar 2008).

Bambauer, H.U. (1992): Mineralogische und chemische Untersuchungen zur Langzeitwirkung einer Salzlauge auf einen Betonmantel. - Westfälische Wilhelms-Universität Münster, Institut für Mineralogie Münster.

Baston, G., Dawson, J., (2014): NAPL Generation from PVC and the Fate of Plasticiser Additives when Aged in Aqueous Solutions, AMEC report for NDA RWMD.

Beck, R., Emons, H.-H., Holdorf, H. (1981a): Untersuchungen ausgewählter Isothermen des quinären Systems Na⁺, K⁺, Mg²⁺/Cl⁻, SO₄²⁻//H₂O im Bereich der Natriumchlorid-Carnallit-Sättigung. - Freiburger Forschungshefte A, 628, 7-18.

Beck, R., Emons, H.-H., Holdorf, H. (1981b): Die Polytherme des quinären Systems Na⁺, K⁺, Mg²⁺/Cl⁻, SO₄²⁻//H₂O im Bereich der Natriumchlorid-Carnallit-Sättigung. - Freiburger Forschungshefte A, 628, 19-30.

Behler, M., Bock, M., Cannepín, R., Gmal, B., Herbert, H.-J., Kilger, R., Moser, E.-F., Peschke, J., Rowold, F., Xie, M. (2013): Weiterführende Bearbeitung spezieller Themen im Rahmen generischer Sicherheitsanalysen zur Kritikalität von Kernbrennstoffen in der Nachverschlussphase eines geologischen Endlagers. - GRS-A-3707, Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit, Köln.

Bracke, G., Popp, T., Püttmann, W., Kienzler, B., Lommerzheim, A., Moog, H.C. (2012): Berücksichtigung der Kohlenwasserstoffvorkommen in Gorleben (Arbeitsgruppe "Kohlenwasserstoffe"). Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben. - GRS-285 Bericht, Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit, Köln, August 2012.

Brennecke, P., Eilers, G., Köster, R., Kugel, K., Laske, D., Möller, K., Preuss, J., Ranft, M., Regenauer, U., Schubarth-Engelschall, N., Schulze, C., Stier-Friedland, G., Thiel, J., Weiser, A., Wollrath, J., Ziegler, H.-J., Gerler, J. (2007): Prüfung von Unterlagen zur Schließung der Schachtanlage Asse II im Hinblick auf die Anforderungen eines atomrechtlichen Planfeststellungsverfahrens. - Bundesamt für Strahlenschutz, Salzgitter, 26. September 2007.

Brown, F.B., J.S. Bull, J.T. Goorley, A. Sood, J.E. Sweezy (2009): MCNP5-1.51 Release Notes. - LA-UR-09-00384, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico, USA.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 48 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

Buchheim, B., Meyer, H., Tholen, M. (2004): Bestimmung des Inventars an chemischen und chemotoxischen Stoffen in den eingelagerten radioaktiven Abfällen der Schachtanlage Asse. – Abschlussbericht, GSF - Forschungszentrum GmbH, März 2004.

Dawson, J. (2013): The potential for non-aqueous phase liquid production from irradiated PVC and Vinylesterstyrene (VES), AMEC report for RWMD.

Dawson, J. (2014): NAPL Generation from the Radiolysis of Polyethylene and Chlorosulphonated Polyethylene Elastomer (Hypalon®), AMEC report for NDA RWMD.

Dawson, J., Magalhaes, S. (2012): The potential for non-aqueous phase liquid production in irradiated polymers, report for NDA RWMD.

DMT/TÜV-NORD (2009): Beurteilung der Möglichkeit einer Rückholung der LAW-Abfälle aus der Schachtanlage Asse. - DMT GmbH & Co. KG, TÜV NORD SysTec GmbH & Co. KG, September 2009.

Doriath J. Y., C. W. McCallien, E. Kiefhaber, U. Wehmann, J. M. Rieunier (1993): ERA-NOS 1: The Advanced European System of Codes for Reactor Physics Calculations.- Joint Internat. Conf. on Mathematical Methods and Supercomputing in Nuclear Applications, Karlsruhe, 19-23 April 1993.

EWN GmbH, TÜV NORD SysTec GmbH & Co. KG (2008). Feinhals, J., Heinzl-Große, S., Löffler, C., Walbrodt, D., Hartmann, B., Hillebrecht, G., Kuntosch, S., Rüger, G.: Möglichkeit einer Rückholung der MAW-Abfälle aus der Schachtanlage Asse. Lubmin, Hamburg (Version 28. November 2008).

Flambard, A. R., Keiling, C., Fusban, H.-U. und Marx, G. (1986): Die Auslaugung von Actiniden und Spaltprodukten aus in Zement und Bitumen verfestigtem ILW und deren Mobilität durch natürliches Steinsalz. In: Kim, J. I. und Warnecke, E. (Hrsg.) Chemie und Migrationsverhalten der Aktinoide und Spaltprodukte in natürlichen aquatischen Systemen. - Vorträge des 66. PTB-Seminars. Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig, Braunschweig.

Förster, B. und Marggraf, G. (2006): Konzeptionelles Modell für die Verfüllung der Einlagerungsbereiche., GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Remlingen.

Gerstmann, U., Meyer, H. und Tholen, M (2002): Bestimmung des nuklidspezifischen Aktivitätsinventars der Schachtanlage Asse.- Abschlußbericht, GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Remlingen, August 2002.

Gompper, K., Vejmelka, P. (1998): Nuklidmigration im Deckgebirge des Endlagers für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM). Teil 1: Sorption im Grubengebäude. - Institut für Nukleare Entsorgung, Forschungszentrum Karlsruhe.

GSF (1975): Bedingungen für die Lagerung von schwachradioaktiven Abfällen im Salzbergwerk. - Gesellschaft für Strahlenforschung, Asse (Dezember 1975).

Herm, M. (2015): Study on the effect of speciation on radionuclide mobilization –C-14 speciation in irradiated Zircaloy-4 cladding and nitrate / chloride interaction with An(III)/Ln(III). - Dissertation, Karlsruhe Institut für Technologie.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 49 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

Heydorn, M., Herrmann, F. (2009): Beschreibung der Lagerbereiche der Abfälle. - Version 03 vom 27.3.2009. Asse GmbH, Remlingen.

Hinz, K. (2015): Interaction of Ln(III) and An(III/IV/V/VI) with borate in dilute to concentrated NaCl, CaCl₂ and MgCl₂ solutions. - Dissertation, Karlsruher Institut für Technologie.

Kienzler, B. (2003): Langzeitverhalten von verlorenen Betonabschirmungen (VBA) - Design, Eigenschaften, Korrosionsverhalten. - Vortrag im GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit - Forschungsbergwerk Asse, Remlingen am 30. Januar 2003.

Kienzler B. (2006): Stellungnahme zur langfristigen Kritikalitätssicherheit der in der Schachtanlage Asse eingelagerten kernbrennstoffhaltigen Abfälle unter Berücksichtigung der Anwesenheit von Schutzfluid. - FZK-INE 008/06, Institut für Nukleare Entsorgung, Forschungszentrum Karlsruhe.

Kienzler, B., Schlieker, M., Hilpp, S., Finck, N., Geyer, F., Heck, S., Kisely, T., Lagos, M., Metz, V., Moisei-Rabung, S., Plaschke, M., Seither, A., Soballa, E. (2012): Sorptionseigenschaften von technischen Sorel-basierten Baustoffen Karlsruher Institut für Technologie - Ergebnisse der Vorversuche. - KIT-INE 002/12, Institut für Nukleare Entsorgung, Karlsruher Institut für Technologie.

Kienzler, B., Borkel, C., Metz, V. (2015): Langzeit-Wechselwirkungen von zementierten Abfallsimulaten im Originalmaßstab mit Salzlösungen: Zusammenfassender Abschlussbericht. - KIT-INE 003/2015, Institut für Nukleare Entsorgung, Karlsruher Institut für Technologie.

Kleemann, U., Ranft, M., Bühler, M., Pitterich, H., Bertram, R. Kreusch, J. Krupp, R. (2008): Stellungnahme zum Bericht des Helmholtz Zentrum München: „Entwicklung und Beschreibung des Konzepts zur Schließung der Schachtanlage Asse“. Arbeitsgruppe Optionenvergleich, 29. September 2008.

Kluger, W., Götz, R., Dirks, F. (1980): Experimentelle Untersuchungen zur Barrierenwirkung von Blechfässern und verlorenen Betonabschirmungen im Hinblick auf die Auslaugung von 200 l-Zementgebänden in quinärer Lauge. 1. Zwischenbericht. - Kernforschungszentrum Karlsruhe.

Krumgalz, B.S., Pogorelsky, R., Iosilevskii, Y. A., Weiser, A., Pitzer, K.S. (1994): Ion interaction approach for volumetric calculations for solutions of single electrolytes at 25°C. - Journal of Solution Chemistry 23, 849-875.

Krumgalz, B.S., Pogorelsky, R., Pitzer, K.S. (1995): Ion interaction approach to calculations of volumetric properties of aqueous multiple-solute electrolyte solutions. - Journal of Solution Chemistry 24, 1025-1038.

Krumgalz, B.S., Pogorelsky, R., Sokolov, A., Pitzer, K.S. (2000): Volumetric ion interaction parameters for single-solute aqueous electrolyte solutions at various temperatures. - Journal of Physical Reference Data 29, 1123-1140.

Lützenkirchen, J., Vejmelka, P., Kienzler, B., Lösch, G., Schlieker, M., Metz, V. (2004): Experimentelles Programm zur Bestätigung der Ergebnisse von standortspezifischen Modellrechnungen für das FB Asse: Standortspezifische Sorptionskoeffizienten. - FZK-INE 015/03, Forschungszentrum Karlsruhe.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 50 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

Lützenkirchen, J., Korthaus, E., Metz, V., Kienzler, B. (2006): Experimentelles Programm zur Bestätigung der Ergebnisse von standortspezifischen Modellrechnungen für die Schachtanlage Asse - Überprüfung der Gültigkeit thermodynamischer Rechnungen für die Einlagerungskammern bei Lösungsaustausch. – Bericht im Auftrag des GSF-Forschungszentrums - Forschungsbergwerk Asse. FZK-INE 007/06 – Institut für Nukleare Entsorgung, 15.12.2006.

Mariën, A. (2012): The osmosis-induced swelling and NaNO₃ leaching of radioactive and artificially aged Eurobitum bituminized waste. - MRS Online Proceedings Library, 1475.

Mariën, A., S. Smets, and E. Valcke (2009): Study of the Processes Related to the Water Uptake of Eurobitum Bituminized Radioactive Waste: Effect of Salt Concentration. - MRS Online Proceedings Library, 1193.

Metz V., Bauer A., Vejmelka P., Schlieker M., Soballa E., Rabung S., Kerner N., Kisely T., Hilpp S., Seither A., Hentschel D., Lützenkirchen J., Kienzler B. (2004): Fachliche Begleitung des Projekts Langzeitsicherheit Asse: Abschlussbericht - Nachweis der geochemischen Wirksamkeit von Versatzstoffen aus Mg-Hydroxid / Mg-Oxychlorid in Q-Lösung. - FZK-INE 006/04, Forschungszentrum Karlsruhe.

Metz, V., Lützenkirchen, J., Vejmelka, P., Kienzler, B. (2004): Np sorption onto cement and Mg(OH)₂-MgCl₂-based backfill material in altered Q-brine. SOPRO 2004 Workshop on Sorption Processes at Oxide and Carbonate Mineral Water, Karlsruhe, Forschungszentrum Karlsruhe Wissenschaftliche Berichte FZKA 6986, S. 101-107.

Metz, V., Kienzler, B., Lützenkirchen, J., Vejmelka, P. (2005): Interaction of Np with cement corrosion products in Q-brine. - International Workshop Mechanisms and modelling of waste/cement interactions, Meiringen, Schweiz, Mai 2005, S. 54.

Metz, V., Korthaus, E., Lützenkirchen, J., Kienzler, B. (2006): Experimentelles Programm zur Bestätigung der Ergebnisse von standortspezifischen Modellrechnungen für die Schachtanlage Asse. - Standortspezifische Modellrechnungen für die Schachtanlage Asse - Berechnung des Radionuklidquellterms auf Grundlage der Verfüllkonzepte G und MAW. – Bericht im Auftrag des GSF-Forschungszentrums - Forschungsbergwerk Asse, FZK-INE 008/05 – Institut für Nukleare Entsorgung, 11.12.2006.

Metz, V., Bohnert, E., Kienzler, B., Garbev, K., Bauer, A., Bender, K., Bube, C., Hilpp, S., Moisei-Rabung, S., Lützenkirchen, J., Plaschke, M., Schlieker, M., Schild, D., Soballa, E., and Walschburger, C. (2011a): Studie zur Abschätzung der standortspezifischen Pu- und Am-Rückhaltung (Schachtanlage Asse II). BfS-Projekt Experimentelle Überprüfung der Abschätzung kammer-spezifischer Pu- und Am-Konzentrationen für die Schachtanlage Asse II. Abschlussbericht. - Institut für Nukleare Entsorgung, Karlsruher Institut für Technologie.

Metz, V., Bube, C., Bohnert, E., Schlieker, M., Kienzler, B. (2011b) Am(III) retention by cement corrosion products under highly saline conditions. 21st Annual VM Goldschmidt Conference, Prague, Czechia, August 2011, Mineralogical Magazine, Vol. 75, pp. 1458.

ORNL (2009): SCALE: A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation. - ORNL/TM-2005/39, Version 6, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, USA.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 51 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

Smith, V., Magalhaes, S., Schneider, S. (2013): The Role of PVC Additives in the Potential Formation of NAPLs, AMEC report for RWMD.

Truche, L., Berger, G., Destrigneville, C., Pages, A., Guillaume, D., Giffaut, E., Jacquot, E. (2009): Experimental reduction of aqueous sulphate by hydrogen under hydrothermal conditions: Implication for nuclear waste storage. - *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 73, 4824-4835.

TÜV (2011a): Schachtanlage Asse II: Bericht zur Überprüfung des Abfallinventars - 1. Einzelbeauftragung: Überprüfung der Kernbrennstoffdaten, Teil A: Recherche der Betriebsdokumente. TÜV Süd Industrie Service GmbH, April 2011.

TÜV (2011b): Schachtanlage Asse II: Bericht zur Überprüfung des Abfallinventars - 1. Einzelbeauftragung: Überprüfung der Kernbrennstoffdaten, Teil B. TÜV Süd Industrie Service GmbH, April 2011.

Wiedemann, M., Metz, V., Rabung, T., Geckeis, H. (2013): Retention of Cm(III) and Eu(III) on Stable Solid Phases in the System Mg-Na-Cl-H₂O at Room Temperature. International Workshop on Actinide and Brine Chemistry in a Salt-Based Repository (ABC-Salt III). - Book of Abstracts, S. 47-48, Santa Fe, New Mexico, USA, April 2013.

Wiedemann, M., Metz, V., Rabung, T., Finck, N., Geckeis, H. (2014): Interaction of Eu(III) and Cm(III) with Mg(OH)₂(cr) in the system Mg²⁺-Na⁺-Cl⁻-OH⁻-H₂O. 16th International Symposium on Solubility Phenomena and Related Equilibrium Processes. - Kurzreferateband S. 100, Karlsruhe, Juli 2014.

Wolf, M. (1989): Mikrobieller Abbau von Bitumen. - Report NAGRA TB 89-14, NAGRA, Wettingen.

Wolf, J., Behlau, J., Beuth, T., Bracke, G., Bube, C., Buhmann, D., Dresbach, C., Hammer, J., Keller, S., Kienzler, B., Klinge, H., Krone, J., Lommerzheim, A., Metz, V., Mönig, J., Mrugalla, S., Popp, T., Rübel, A., Weber, J.R. (2012a): FEP-Katalog für die VSG. Konzept und Aufbau. Bericht für Arbeitspaket 7, Projekt vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben. - GRS, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit, GRS-282.

Wolf, J., Behlau, J., Beuth, T., Bracke, G., Bube, C., Buhmann, D., Dresbach, C., Hammer, J., Keller, S., Kienzler, B., Klinge, H., Krone, J., Lommerzheim, A., Metz, V., Mönig, J., Mrugalla, S., Popp, T., Rübel, A., Weber, J. R. (2012b): FEP-Katalog für die VSG. Dokumentation. Bericht für Arbeitspaket 7, Projekt vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben. - GRS, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit, GRS-283.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 52 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

ANHANG

Am 12. Oktober 2011 wurde KIT-INE vom Bundesamt für Strahlenschutz aufgefordert, eine Defizitanalyse zum Themenfeld Radionuklidchemie / Geochemie in tabellarischer Form durchzuführen. Eine solche Bewertung wurde von Bernhard Kienzler und Volker Metz am 5. Dezember 2011 dem BfS übergeben. Diese tabellarische Bewertung wird hier angefügt. Die folgende Bewertung nimmt Bezug auf die Stellungnahmen der GRS (Baltes et al., 2008), der AGO (Kleemann et al., 2008) und des BfS (Brennecke et al., 2007) zu den Prüfunterlagen Lützenkirchen et al. (2006) und Metz et al. (2006) sowie auf Stellungnahmen und weitere Berichte des INE, die vor dem Jahr 2007 im Zusammenhang mit dem Schließungskonzept des HMGU erstellt wurden. Referenzen der in den Tabellen genannten Stellungnahme und Berichte werden im Folgenden mit den Notationen aus Baltes et al. (2008), Kleemann et al. (2008) und Brennecke et al. (2007) angegeben.

Zitierte Stellungnahmen und Berichte des INE in Baltes et al., 2008

/INE 06/ Institut für nukleare Entsorgung (INE); Forschungszentrum Karlsruhe. Experimentelles Programm zur Bestätigung der Ergebnisse von standortspezifischen Modellrechnungen für die Schachtanlage Asse. – Überprüfung der Gültigkeit thermodynamischer Rechnungen für die Einlagerungskammern bei Lösungsaustausch. GSF-Bestellung 31/18231/02, Auftrag 45000052, FZK-INE 007/06, Karlsruhe 2006.

/INE 2002/ Stellungnahme zur Beständigkeit von Baustoffen auf der Basis von Sorel-Phasen und Salzbeton gegenüber den im Grubengebäude des FB Asse auftretenden Lösungen. Kienzler, B.; Metz, V.; FZK-INE, November 2002.

/INE 2004a/ Nachweis der geochemischen Wirksamkeit von Versatzstoffen aus Mg-Hydroxid / Mg-Oxychlorid in Q - Lösung. Abschlussbericht, FZK-INE 006/04, November 2004.

/INE 2004b/ Experimentelles Programm zur Bestätigung der Ergebnisse von standort-spezifischen Modellrechnungen für die Schachtanlage Asse. Teil 4: Standortspezifische Sorptionsdaten, FZK-INE 015/03, April 2004.

/INE 2005a/ Experimentelles Programm zur Bestätigung der Ergebnisse von standort-spezifischen Modellrechnungen für die Schachtanlage Asse. Teil 6: Experimentelle Untersuchungen und thermodynamische Modellrechnungen zur Entwicklung des geochemischen Milieus und der daraus resultierenden Radionuklidkonzentrationen. Zusammenfassender Abschlussbericht, FZK-INE 001/05, Februar 2005.

/INE 2005b/ Experimentelles Programm zur Bestätigung der Ergebnisse von standort-spezifischen Modellrechnungen für die Schachtanlage Asse. Teil 12: Geo-chemische Modellrechnungen zu Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse ohne Mg-Depot auf Grundlage einer reduzierten Bildung von an-organischem Kohlenstoff. Abschlussbericht, FZK-INE 002/04, März 2005.

/INE 2006a/ Experimentelles Programm zur Bestätigung der Ergebnisse von standort-spezifischen Modellrechnungen für die Schachtanlage Asse: Berechnung des Radionuklidquellterms auf Grundlage der Verfüllkonzepte G und MAW. FZK-INE 008/05. Forschungszentrum Karlsruhe, 2006.

/INE 2006b/ Experimentelles Programm zur Bestätigung der Ergebnisse von standort-spezifischen Modellrechnungen für die Schachtanlage Asse: Überprüfung der Gültigkeit thermodynamischer



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 53 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

Rechnungen für die Einlagerungskammern bei Lösungsaustausch. Abschlussbericht FZK-INE 007/06. Forschungszentrum Karlsruhe, 2006.

/INE 2006c/ Stellungnahme zur langfristigen Kritikalitätssicherheit der in das FB Asse eingelagerten kernbrennstoffhaltigen Abfälle unter Berücksichtigung der Anwesenheit von Schutzfluid. FZK-INE 008/06, 23.10.2006.

Zitierter Bericht in Kleemann et al. (2008)

HMGU (2008a): Entwicklung und Beschreibung des Konzeptes zur Schließung der Schachtanlage Asse. - Bericht des Helmholtz Zentrum München, Stand: März 2008.

Zitierte Stellungnahmen des INE in Brennecke et al. (2007)

Korthaus, E., Metz, V., Kienzler, B. (2005) Bewertung der Verfüllung der Grubenbaue von der 775-m-Sohle bis zur 700-m-Sohle mit R-Lösung hinsichtlich der Übertragbarkeit bisheriger Modellrechnungen und experimenteller Ergebnisse des FZK-INE und des Einflusses auf das geochemische Milieu in den Einlagerungskammern sowie die Freisetzung von Radionukliden. FZK-INE 005/05. Forschungszentrum Karlsruhe.

Lützenkirchen, J., Metz, V., Kienzler, B. (2006): Abschätzung der kammer-spezifischen Pu- und Am-Löslichkeiten für Verfüllkonzepte G unter Berücksichtigung von Löslichkeits- und Sorptionsprozessen. - FZK-INE 005/06. Forschungszentrum Karlsruhe, Entwurf August 2006.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 54 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

<i>Kritikpunkt:</i>	Geochemie		
<i>Wo:</i>	GRS-Stellungnahme: Modellierung von Einzelprozessen und Teilsysteme: Geochemie S. 8-10 Die Zitate /INE 2003c/, /INE 2003b/ befinden sich nicht im Literaturverzeichnis. Die Berichte /INE 2005c/, /INE 2004a/, /INE 2005a/, /INE 2005b/ sind alte Unterlagen ohne Klassifizierung,...		
<i>Antwort/Replik:</i>	Alle genannten Berichte wurden in den Jahren 2003 bis 2006 vom INE an HMGU übergeben und sollten BfS vorliegen.		
<i>f/i:</i> f	<i>gerechtfertigt:</i> j	<i>wichtig:</i> ♣	<i>Lösung:</i> -
<i>Datum:</i> 5.12.2011	<i>Bewertung durch:</i> KIT-INE		



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 55 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

<i>Kritikpunkt:</i>	Geochemie		
<i>Wo:</i>	GRS-Stellungnahme: Modellierung von Einzelprozessen und Teilsysteme: Geochemie S. 9 Die bei VBA-Behälter verzögerte, vollständige Korrosion auf 50-100 Jahre hat behauptenden Charakter (ebenso für bituminierte Gebinde), da der Nachweis in /INE 06a/ oder /KIE 04a/ fehlt.		
<i>Antwort/Replik:</i>	Die Korrosion von Betonabschirmbehältern (VBA) wurde von INE untersucht und HMGU mitgeteilt. Es wurde kein Bericht sondern Vortragsunterlagen zum Thema „Langzeitverhalten von verlorenen Betonabschirmungen (VBA): Design, Eigenschaften, Korrosionsverhalten“ , (Bernhard Kienzler, W. Kluger, R. Götz, F. Dirks, 30.03.2003) geliefert. Freisetzungsraten von bituminierten Abfällen wurden im Rahmen der Studie „Bewertung der Sorption und Desorption von Radionukliden an zusätzlich einzubringenden Versatzstoffen im Grubengebäude des Forschungsbergwerks Asse sowie die Beschreibung des geochemischen Milieus im Versatz: Teil A: Bewertung der Radionuklidrückhaltung in den Einlagerungskammern und verfüllten Zugangsstrecken anhand einer Literaturstudie“ , FZK-INE 04/99, 1999, Kap. 6.3 von INE an HMGU geliefert.		
<i>f/i:</i> i	<i>gerechtfertigt:</i> j	<i>wichtig:</i> ♣	<i>Lösung:</i> §§
<i>Datum:</i> 5.12.2011		<i>Bewertung durch:</i> KIT-INE	



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 56 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

<i>Kritikpunkt:</i>	Geochemie		
<i>Wo:</i>	Überprüfung und Bewertung 2.2 Bewertung der GRS Begründung, weshalb der Nachweis der Zulässigkeit des QCS-Ansatzes auf die Radionuklide Am(III) und U(VI) beschränkt werden kann		
<i>Antwort/Replik:</i>	Der Nachweis der Zulässigkeit des QCS-Ansatzes wurde beispielhaft anhand der löslichkeitskontrollierten Radionuklide Am(III) und U(VI) beschrieben und nicht beschränkt. Andere leichtlösliche Radionuklide, wie Cs oder Sr werden innerhalb der Zeitdauer, in welcher die Zementprodukte degradieren, freigesetzt. Die relevanten Redoxstufen des Pu im geochemischen System der Schachtanlage Asse sind Pu(III) und Pu(IV). Pu(III) verhält sich chemisch ähnlich wie Am(III). Die Halbwertszeiten wurden in /INE 06/ nicht berücksichtigt.		
<i>f/ i: i</i>	<i>gerechtfertigt: ja</i>	<i>wichtig: nein</i>	<i>Lösung: kann aufgezeigt werden</i>
<i>Datum: 5.12.2011</i>		<i>Bewertung durch: KIT-INE</i>	

- Die Begründung sollte dargelegt werden, weshalb der Nachweis der Zulässigkeit des QCS-Ansatzes auf die Radionuklide Am(III) und U(VI) beschränkt werden kann. Beide Vertreter gehören nicht zu den ausgesprochen dosisrelevanten Radionukliden. So ist der Beitrag von Americium aufgrund der kurzen Halbwertszeit zumindest bei Berücksichtigung einer Radionuklidtransportverzögerung im Deckgebirge an der Gesamtdosis nicht signifikant. Gleiches gilt für Uran aufgrund des vergleichsweise geringen Aktivitätsinventars. In /INE 06/ wird auf S. 37 lediglich beiläufig erwähnt, dass beide Elemente als „Indikatoren“, für die relevanten Radionuklide verwendet wurden. Sollten beide als Referenznuclide herangezogen worden sein, die sich hinsichtlich ihres Löslichkeitsverhaltens unter veränderten geochemischen Milieubedingungen als abdeckend für andere, relevante Radionuklide angesehen werden können, so wäre dies insbesondere im Hinblick auf die bislang nicht vollständig geklärte Redox-Chemie des Plutoniums, dem Radionuklid mit der höchsten Dosisrelevanz (Pu-239), darzulegen gewesen.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 57 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

Kritikpunkt:	Geochemie		
Wo:	Überprüfung und Bewertung 2.2 Bewertung der GRS 2. Explizite Betrachtung der lösungsaustauschbedingten Entwicklung des geochemischen Milieus sind die Abweichungen in der Radionuklidlöslichkeit nur dann als signifikant anzusehen sind, wenn diese mehr als eine Größenordnung gegenüber den mittels QCS-Ansatz berechneten betragen. ... Unsicherheitsbandbreiten der thermodynamischen Daten bei Verwendung des QCS-Ansatzes an den (wesentlich höheren) Unsicherheiten, die sich beim Ansatz von Reaktionsraten bei der Modellierung einer sich dynamisch verändernden Lösungsschemie unter expliziter Berücksichtigung des Lösungsaustauschs innerhalb der Einlagerungskammern ergeben, spiegelt.		
Antwort/Replik:	Die Aussage, dass die Abweichungen in den Radionuklidlöslichkeiten und der Unsicherheiten in den thermodynamischen Daten sich nicht gegenseitig aufheben, sondern auch ungünstig fortpflanzen können, stimmt in dieser Form nicht: Die thermodynamischen Daten wurden i.A. aus Löslichkeitsmessungen bestimmt. Die Löslichkeiten reiner Festphasen wurden durch zahlreiche Experimente verifiziert. Die hier genannten Unsicherheiten resultieren aus nicht hinreichend charakterisierten Festphasen, die im realen System eher zu niedrigeren Konzentrationen führen würden. Aussagen in /INE 06/ gelten nur für die genannten Rand- und Anfangsbedingungen (siehe Seite 49).		
f/i: i	gerechtfertigt: n	wichtig: ja	Lösung:
Datum: 5.12.2011		Bewertung durch:	

2. Die Argumentation zur Anwendbarkeit des QCS-Ansatzes basiert auf der Feststellung in /INE 06/, dass bei expliziter Betrachtung der lösungsaustauschbedingten Entwicklung des geochemischen Milieus Abweichungen in der Radionuklidlöslichkeit nur dann als signifikant anzusehen sind, wenn diese mehr als eine Größenordnung gegenüber den mittels QCS-Ansatz berechneten betragen. Begründet wird dies mit der Unsicherheitsbandbreite von ca. einer Größenordnung bei der Berechnung der Radionuklidlöslichkeiten, die aus Unsicherheiten bei der verwendeten thermodynamischen Datenbasis erwächst. In dieser Form ist die Argumentation in /INE 06/ nicht nachzuvollziehen, da sich die Abweichungen in den Radionuklidlöslichkeiten und der Unsicherheiten in den thermodynamischen Daten nicht zwingend gegenseitig aufheben, sondern auch ungünstig fortpflanzen können. Im Extremfall würde hieraus eine 100-fach höhere Freisetzung resultieren, wodurch im Langzeitsicherheitsnachweis die für den Standardrechenfall (unter Verwendung des QCS-Ansatzes) errechneten Dosisbeiträge eine massive Unterschätzung der realen Verhältnisse darstellen würden. Demgegenüber wäre ein Vergleich sinnvoll gewesen, der die Unsicherheitsbandbreiten der thermodynamischen Daten bei Verwendung des QCS-Ansatzes an den (wesentlich höheren) Unsicherheiten, die sich beim Ansatz von Reaktionsraten bei der Modellierung einer sich dynamisch verändernden Lösungsschemie unter expliziter Berücksichtigung des Lösungsaustauschs innerhalb der Einlagerungskammern ergeben, spiegelt. Vereinfacht ausgedrückt, hätte die faktische Alternativlosigkeit zum QCS-Ansatz herausgestellt werden müssen. So wird in /INE 06/ auf S. 12 zurecht ausgeführt, dass „Mit den derzeit zur Verfügung stehenden Rechencodes und Datenbanken zur Simulation von gekoppelten Reaktions-Transportprozessen [...] es nicht möglich [ist], kontinuierliche Veränderungen des geochemischen Milieus in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse und der daraus resultierenden Radionuklidlöslichkeiten hinreichend genau abzubilden.“



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 58 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

Kritikpunkt:	Geochemie		
Wo:	Überprüfung und Bewertung 2.2 Bewertung der GRS 3 – 7 Voraussetzung für die Anwendbarkeit des QCS-Ansatzes überbestimmt		
Antwort/Replik:	nein: Die Anwendbarkeit des QCS ist gerechtfertigt durch mehrere Aspekte, wie (i) Aufenthaltszeit, (ii) die Reaktionsraten zwischen den Stoffen in den Einlagerungskammern sowie (iii) den Stoffströmen zwischen den Einlagerungs- und Nebenkammern .		
<i>f/i: f</i>	<i>gerechtfertigt: nein</i>	<i>wichtig: nein</i>	<i>Lösung: siehe oben</i>
<i>Datum: 5.12.2011</i>	<i>Bewertung durch: KIT-INE</i>		

3. In /INE 06/ werden folgende drei Grundvoraussetzungen für die Anwendbarkeit des Quasi-Closed-System-Ansatzes genannt:
4. Die Aufenthaltszeit der Lösungen und damit der gelösten Reaktanden im System ist größer als die Equilibrierungszeit.
5. Abflüsse innerhalb der Equilibrierungszeit sind hinreichend gering.
6. Der Zutritt von Lösungen oder Gasen ist vernachlässigbar, unabhängig vom Zeitpunkt.
7. Nach Auffassung der GRS ist die Voraussetzung für die Anwendbarkeit des QCS-Ansatzes hier überbestimmt, da Bedingung a) bereits die Bedingungen b) und c) impliziert. So ist eine ausreichende Aufenthaltszeit der Lösung in einer Kammer eben gerade dadurch bedingt, dass Zu- oder Abflüsse so gering sind, dass es zu keiner relevanten Änderung des geochemischen Milieus bzw. hieraus folgend der Radionuklidlöslichkeit kommen kann. Unabhängig davon sind die Angaben in /INE 06/ bezüglich des Mindestzeitraums der für eine Gleichgewichtseinstellung gemäß Bedingung a) erforderlich ist, wenig präzise gehalten. Es wird lediglich am Beispiel der 1:1-Gebindeuntersuchungen in der Asse ausgeführt, dass Zement in Q-Lösung innerhalb von 10 - 15 Jahren bzw. innerhalb der Versuchsdauer von Laborexperimenten, die mit Pulvern durchgeführt wurden, vollständig umgesetzt ist. In einem Analogieschluss wird unter Rückgriff auf die Ergebnisse von Laborexperimenten dies auch für das System Zement/Mg-Depot/Q-Lösung unterstellt. Angaben zu Reaktionsraten elementspezifischer Gleichgewichtsreaktionen werden jedoch nicht gemacht. Aufgrund des Fehlens solcher Reaktionsraten allgemein, kann angenommen werden, dass angesichts der kürzesten mittleren Aufenthaltsdauer von ca. 500 Jahren, die Verweilzeit in den Kammern um ein Vielfaches größer als die erforderliche Equilibrierungszeit ist und damit Bedingung a) in allen Fällen erfüllt ist.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 59 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

<i>Kritikpunkt:</i>	Geochemie		
<i>Wo:</i>	Überprüfung und Bewertung 2.2 Bewertung der GRS 8. Mikrobiell katalysierte Umsetzung von Sulfat zu Sulfid		
<i>Antwort/Replik:</i>	Die mikrobielle Umsetzung von Sulfat zu Sulfid im geochemischen Milieu der Schachtanlage Asse II wurde bisher nicht untersucht. Die Ausfällung schwerlöslicher Fe- und Actinid-Sulfide in den Einlagerungskammern kann im Rahmen der Umsetzung erwartet werden. Ob die Umwandlung stattfindet, ist nicht geklärt. Die angesprochenen Testrechnungen wurden nicht im Bericht dargestellt. Eine verbale Beschreibung findet sich in Prüfunterlage 1 (FZK-INE 008/05; Metz et al., 2006), Seiten A9 bis A10.		
<i>f/i: i</i>	<i>gerechtfertigt: n</i>	<i>wichtig: j</i>	<i>Lösung: siehe oben</i>
<i>Datum: 5.12.2011</i>		<i>Bewertung durch: KIT-INE</i>	

8. In /INE 06/ (S. 16) wird auf Testrechnungen Bezug genommen, nach deren Ergebnissen der Einfluss der mikrobiell katalysierten Umsetzung von Sulfat zu Sulfid auf das geochemische Milieu unter Ausfällung schwerlöslicher Fe- und Actinid-Sulfide in den Einlagerungskammern so geringfügig ist, dass die Sulfatreduktion bei den Rechnungen zum geochemischen Milieu vernachlässigt werden kann. Diese Testrechnungen werden weder zitiert noch näher erläutert, weshalb die oben angeführte Feststellung eher behauptenden Charakter hat.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 60 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

<i>Kritikpunkt:</i>	Geochemie		
<i>Wo:</i>	Überprüfung und Bewertung 2.2 Bewertung der GRS 9. Gültigkeit des QCS-Ansatzes nicht auf die MAW-Kammer 8a		
<i>Antwort/Replik:</i>	Ja, gemäß der Vorgabe von HMGU wurde die Gültigkeit des QCS-Ansatzes auf die Kammer 8a/511 nicht überprüft. Die Vorgaben von HMGU war, dass es zwischen dieser Kammer und anderen Grubenteilen zu keinem signifikanten Lösungsaustausch käme.		
<i>f/i: i</i>	<i>gerechtfertigt: j</i>	<i>wichtig: j</i>	<i>Lösung: eine Überprüfung ist nach Spezifikation der Randbedingungen möglich</i>
<i>Datum: 5.12.2011</i>		<i>Bewertung durch:</i>	

9. Weiterhin ist anzumerken, dass sich die Überprüfung der Gültigkeit des QCS-Ansatzes nicht auf die MAW-Kammer 8a erstreckt. Sollten neue Erkenntnisse ergeben, dass hier ein nicht zu vernachlässigender Lösungsaustausch mit anderen Grubenteilen zu erwarten ist, so ist festzustellen, dass sich der Gültigkeitsnachweis des QCS-Ansatzes nicht auf diese Kammer erstreckt und ggf. nachgeholt werden muss.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 61 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

<i>Kritikpunkt:</i>	Geochemie		
<i>Wo:</i>	AGO: 5.2.2 Bewertung durch die AGO, S. 23		
	<p>Die Wirksamkeit der Maßnahme als pH-Puffer ist dann gegeben, wenn nachgewiesen werden kann, dass eine quantitativ ausreichende Menge an Mg-Depots in die Einlagerungskammern eingebracht werden kann, um das geochemische Milieu langfristig zu stabilisieren. Dieser Nachweis soll bei der technischen Ausführung erbracht werden können. HMGU (2008a) enthält jedoch keine Verweise auf entsprechende Unterlagen. Die Zusammensetzung und Rezeptur des „Mg-Depots“ wird nicht mitgeteilt.</p>		
<i>Antwort/Replik:</i>	Im Rahmen der kammerspezifischen Analysen des INE, wurden von HMGU die o.g. Randbedingungen als Vorgaben definiert.		
<i>f/i:</i>	i	<i>gerechtfertigt:</i>	j
		<i>wichtig:</i>	♣♣♣
			Lösung: ein Nachweis der technischen Ausführung wird nicht vom INE durchgeführt
<i>Datum:</i>	5.12.2011		<i>Bewertung durch:</i> KIT-INE

Die Wirksamkeit der Maßnahme als pH-Puffer ist dann gegeben, wenn nachgewiesen werden kann, dass eine quantitativ ausreichende Menge an Mg-Depots in die Einlagerungskammern eingebracht werden kann, um das geochemische Milieu langfristig zu stabilisieren. Dieser Nachweis soll bei der technischen Ausführung erbracht werden können. HMGU (2008a) enthält jedoch keine Verweise auf entsprechende Unterlagen. Die Zusammensetzung und Rezeptur des „Mg-Depots“ wird nicht mitgeteilt.



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 62 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

<i>Kritikpunkt:</i>	Geochemie		
<i>Wo:</i>	AGO: 5.2.2 Bewertung durch die AGO, S. 23		
	<p>Der Einbau von Brucit sollte technisch kein Problem darstellen. Allerdings ist die Sicherstellung der vollen Wirksamkeit noch mit Unwägbarkeiten behaftet, z. B. hinsichtlich des tatsächlich zur Verfügung stehenden unverfüllten Hohlraumes in den Einlagerungskammern und der jeweiligen Geometrie des Firstspaltes.</p>		
<i>Antwort/Replik:</i>	Im Rahmen der kammerspezifischen Analysen des INE, wurden von HMGU die o.g. Randbedingungen als Vorgaben definiert.		
<i>f/i:</i>	i	<i>gerechtfertigt:</i>	j
		<i>wichtig:</i>	♣♣♣
			Lösung: ein Nachweis der technischen Ausführung wird nicht vom INE durchgeführt
<i>Datum:</i>	5.12.2011		<i>Bewertung durch:</i> KIT-INE



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 63 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

Kritikpunkt:	Geochemie		
Wo:	AGO: 5.2.2 Bewertung durch die AGO, S. 23		
	<p>Auswirkungen des Schutzfluids auf das Mg-Depot, den Sorelzement, sowie sekundär durch Portlandit gefällten Brucit</p> <p>Eine an Mg verarmte (ehemalige) R-Lösung kann den Carnallit in Abhängigkeit von seiner Zugänglichkeit angreifen. Weiterhin kann eine durch Reaktion mit Portlandit entstandene Ca-Ionen-reiche Lösung mit dem Carnallit unter Bildung von Polyhalit reagieren.</p>		
Antwort/Replik:	Gemäß dem HMGU Auftrag an INE, beschränken sich unsere Analysen auf die Prozesse innerhalb der Einlagerungskammern, jedoch nicht auf die geochemischen Prozesse außerhalb der Kammern.		
f/i:	i	gerechtfertigt:	j
		wichtig:	♣♣♣
			Lösung: könnte von INE bearbeitet werden
Datum:	5.12.2011		Bewertung durch: KIT-INE

Aus den Unterlagen geht ebenso nicht hervor, ob die Auswirkungen des Schutzfluids auf das Mg-Depot, den Sorelzement, sowie sekundär durch Portlandit gefällten Brucit betrachtet worden sind. Nachdem bekannt ist, dass die 1-3-8-Sorelphase thermodynamisch stabil ist, wird Brucit solange mit der Magnesiumchlorid-Komponente der R-Lösung reagieren bis entweder aller Brucit aufgebraucht ist, oder bis der invariante Punkt zwischen der Sorel-Phase und Brucit erreicht ist. Nach ALTMAIER et al. (2003) liegt dieser invariante Punkt bei einer Wasserstoffionenkonzentration von $10^{-8,95}$ und einer Magnesiumchlorid-Molalität von 1,8 mol/kg H₂O während die Mg-Molalität einer R-Lösung bei 4,75 mol/kg H₂O liegt. Eine an Mg verarmte (ehemalige) R-Lösung kann den Carnallit in Abhängigkeit von seiner Zugänglichkeit angreifen. Weiterhin kann eine durch Reaktion mit Portlandit entstandene Ca-Ionen-reiche Lösung mit dem Carnallit unter Bildung von Polyhalit reagieren. Diese Reaktionen können ggf. größere Stoffmengen betreffen. Die Relevanz der beschriebenen Prozesse für das Schließungskonzept und den Sicherheitsnachweis ist auf Grundlage geochemischer Modellrechnungen unter Berücksichtigung der standortspezifischen Randbedingungen und der heute akzeptierten thermodynamischen Löslichkeitsprodukte für die Sorel-Phasen, sowie der Masse der eingelagerten/eingebauten Basen (Portlandit, Brucit, etc.) zu bewerten



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 64 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

<i>Kritikpunkt:</i>	Quellterm		
<i>Wo:</i>	BfS: Prüfung von Unterlagen, S. 56		
	<p>Unterlager ... liegen nicht vor. Da diese Experimente nach Aussage des Berichtes nicht alle Einlagerungskammern abdecken, wurden über eine "Expertenschätzung" (LütZENKIRCHEN, METZ & KIENZLER 2006) für diese Einlagerungskammern die Werte aus den durchgeführten Experimenten abgeschätzt. Die entsprechende Unterlage liegt nicht vor und konnte nicht geprüft werden.</p>		
<i>Antwort/Replik:</i>	<p>Expertenschätzung und Bericht zu experimentellen Studien Lützenkirchen et al. (2004, 2006) wurden vom INE an HMGU übergeben und sollten dem BfS vorliegen. Die Expertenschätzung wurde durch eine weitere experimentelle Untersuchung bestätigt und der Abschlussbericht (Metz et al., 2011) an BfS übergeben.</p>		
<i>f/i:</i>	f	<i>gerechtfertigt:</i>	j
		<i>wichtig:</i>	♣♣♣
		<i>Lösung:</i>	erledigt
<i>Datum:</i>	5.12.2011		<i>Bewertung durch:</i> KIT-INE

Seite 55-57 BfS



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 65 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24200000	EG	RZ	0003	00		Stand: 28.02.2017

<i>Kritikpunkt:</i>	Quellterm		
<i>Wo:</i>	BfS: Prüfung von Unterlagen, S. 56		
	<p>Bei den durchgeführten Untersuchungen wurde Q-Lösung verwendet, die nach den vorliegenden Berichten bis 2005 als Schutzfluid vorgesehen war. Aktuell ist geplant, R-Lösung als Schutzfluid zu verwenden. Laut den vorliegenden Berichten wird in KORTHAUS, METZ & KIENZLER (2005) gezeigt, dass sich die erwartete Entwicklung der Lösungszusammensetzung hierdurch nicht wesentlich verändert. Diese Unterlage liegt dem BfS nicht vor.</p>		
<i>Antwort/Replik:</i>	Die Studie Korthaus et al. (2005) wurde HMGU übergeben und sollte dem BfS vorliegen. Die Studie wurde durch eine weitere experimentelle Untersuchung bestätigt und der Abschlussbericht (Metz et al., 2011) an BfS übergeben.		
<i>f/i:</i>	f	<i>gerechtfertigt:</i>	j
		<i>wichtig:</i>	♣♣♣
			<i>Lösung:</i> erledigt
<i>Datum:</i>	5.12.2011		<i>Bewertung durch:</i> KIT-INE



Bundesamt für Strahlenschutz

Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachtanlage Asse II

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 67 von 67
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24200000	EG	RZ	0003	00	Stand: 28.02.2017

Erläuterungen:

Kritikpunkt zusammenfassende Wiedergabe der Kritik, ggf. in Stichworten (Bemerkung: eine wörtliche Wiedergabe ist nicht notwendig, da das Originaldokument vorliegt und jederzeit eingesehen werden kann.)

Wo Angabe des Dokuments, der Seite und ggf. des Absatzes, in dem die Kritik formuliert wurde. Ähnliche Kritiken können (und sollten wenn möglich) zusammengefasst werden, in diesem Fall wird auf mehrere Dokumentenstellen verwiesen.

Antwort/Replik Sofern die Kritik gerechtfertigt ist, wird dies in dieser Zelle festgehalten, in Verbindung mit einer Aussage zum Vorgehen im Hinblick auf die Vermeidung einer analogen Kritik bei einer künftigen Sicherheitsbetrachtung (d.h. der Lösung).

Sofern die Kritik aus unserer Sicht nicht gerechtfertigt ist, wird dies hier im Sinne einer Replik begründet.

Bewertung f/i Diese Bewertung betrifft die Einstufung der Kritik als „formale“ Kritik (mit **f** bezeichnet) oder als inhaltliche Kritik (mit **i** bezeichnet). Als formale Kritikpunkte werden solche an der Darstellung der Information (z.B. zu kleine Abbildung, fehlende Information in Abbildung, Gliederung des Textes) sowie Fragen der Begriffsverwendung eingestuft, sofern nach unserer Ansicht die zu vermittelnde Information vom Leser – bei gutem Willen und etwas Denken – dennoch erfasst werden kann. Jede Kritik, die nicht als formal eingestuft wird, ist inhaltlich und wird mit einem **i** gekennzeichnet.

Bewertung „gerechtfertigt“

Kritikpunkte, die aus unserer Sicht gerechtfertigt sind, werden hier mit einem **j** gekennzeichnet. Als gerechtfertigt werden die Kritikpunkte eingestuft, deren Ursache wir im hypothetischen Falle einer Fortsetzung des HMGU-Verfahrens mit den hier bewerteten Unterlagen ohne weitere Diskussion eliminieren würde. Als nicht gerechtfertigt werden Kritikpunkte eingestuft, die wir ohne bessere oder konkretere Begründung durch den Gutachter fachlich nicht als Mangel anerkennen und deshalb auch nicht beheben würden (außer aus verfahrenstaktischen Gründen oder aufgrund eines ausdrücklichen Befehls des Auftraggebers). Aus unserer Sicht nicht gerechtfertigte Kritikpunkte werden mit einem **n** gekennzeichnet.

Bewertung „wichtig“

Die Bewertung der Wichtigkeit der Kritik erfolgt in drei Stufen, diese werden mit ♣♣♣ für hoch, ♣♣ für mittel und ♣ für niedrig gekennzeichnet. Die Abgrenzung beruht auf unserer Einschätzung und erfolgt nach folgenden Kriterien:

♣♣♣ Dieser Kritikpunkt könnte bei fehlender Behebung seiner Ursache selbst bei sachlich motivierter Diskussion ein Planfeststellungsverfahren erheblich beeinträchtigen (Auswirkungen bei polemischer Diskussion bleiben unberücksichtigt).

♣♣ Dieser Kritikpunkt könnte bei fehlender Behebung seiner Ursache eine merkliche Schwächung des Sicherheitsnachweises zur Folge haben (jedoch ohne signifikanten Einfluss auf das Ergebnis des Verfahrens).

♣ Dieser Kritikpunkt könnte bei fehlender Behebung seiner Ursache selbst bei sachlich motivierter Diskussion dem Einwender einen Punktegewinn verschaffen.

Bewertung „Lösung“

Unter dem Stichwort „Lösung“ wird vermerkt, ob die Ursache der Kritik unter den absehbaren Bedingungen einer künftigen Sicherheitsbetrachtung für das BfS noch besteht und – wenn dies zutrifft – ob die Ursache behoben werden kann. Diese Bewertung wird wie folgt gekennzeichnet:

§§§ Eine Lösung zur Behebung der Ursache der Kritik ist noch nicht bekannt.

§§ Eine Lösung für die Behebung der Ursache der Kritik ist bekannt. Die Ursache besteht jedoch noch.

§ Die Ursache der Kritik wurde durch eine gezielte Aktion behoben

n.a. Unter den absehbaren künftigen Randbedingungen ist die Kritik aus grundsätzlichen Gründen nicht mehr zutreffend.