

Deckblatt



BUNDESGESELLSCHAFT
FÜR ENDLAGERUNG

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Blatt: 1
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	Stand: 21.06.2023

Titel der Unterlage:

GEKOPPELTE MODELLE ZUM SYSTEMVERHALTEN DER MAW-KAMMER BEI EINTRETEN EINES NOTFALLS UND ABLEITUNG ORIENTIERENDER RADIONUKLID- UND GASQUELLTERME

Ersteller/Unterschrift:
CSD/KIT-INE/GRS

Prüfer/Unters

Stempelfeld:

UVST: 15 NOV 2023

bergrechtlich
verantwortliche Person:

atomrechtlich
verantwortliche Person:

Bereichsleitung:

Freigabe zur Anwendung:

Datum und Unterschrift

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.

**Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer
bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender
Radionuklid- und Gasquellterme**



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd.-Nr.	Rev
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00

Blatt: 3

Freigabeblatt des Auftragnehmers

Auftraggeber:

Bundesgesellschaft für Endlagerung mbH (BGE)
Willy-Brand-Straße 5
38226 Salzgitter
Telefon: 030 18333-7000
E-Mail: poststelle@bge.de

Auftragnehmer:

CSD Ingenieure
Schachen Allee 29A
CH-5000 Aarau
Telefon: +41 62 834 44 00
E-Mail: aarau@csd.ch

Gesellschaft für Anlagen-
und Reaktorsicherheit
(GRS) GmbH
Theodor-Heuss-Str. 4
D-38122 Braunschweig
Telefon: +49 (0) 531 8012 0
E-Mail: info@grs.de

Karlsruher Institut für Tech-
nologie (KIT)
Institut für Nukleare Entsor-
gung (INE)
Hermann-von-Helmholtz-
Platz 1
76344 Eggenstein-Leopolds-
hafen
Telefon: +49 721 608-0
E-Mail: info@kit.edu

Ersteller/Bearbeiter (AN)



Verantwortlicher Bearbeiter
CSD

Aarau, 22.6.2023



Verantwortlicher Bearbeiter
GRS

Braunschweig, 12.07.23



Verantwortlicher Bearbeiter
KIT-INE

Eggenstein-Leopoldshafen,
1.8.2023

Prüfer (AN)

Freigabe* (AN)

Name / Unterschrift

Name / Unterschrift

*) Die Freigabe bezieht sich auf die im Inhaltsverzeichnis angegebenen Dokumente

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	


**BUNDESGESELLSCHAFT
FÜR ENDLAGERUNG**

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme	Blatt: 4
---	----------

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	4
Abbildungsverzeichnis	5
Tabellenverzeichnis	6
1 Veranlassung und Einordnung	7
2 Systembeschreibung der Kammer 8a/511 und deren Umgebung.....	8
2.1 Bergbauliche Situation der MAW-Kammer und deren unmittelbarer Umgebung.....	9
2.2 Kenntnisstand zum eingelagerten Abfallinventar in der MAW-Kammer.....	10
2.3 Prozesse und Entwicklungen innerhalb der MAW-Kammer	11
3 Modellkonzept	14
3.1 Prozesse und Kopplungen.....	14
3.2 Räumliches Modellkonzept.....	17
3.3 Zeitlicher Ablauf und Auflösung der Prozesse im Modell	19
3.4 Auswahl relevanter Radionuklide.....	20
3.5 Modellstrategie und Modellcodes.....	21
3.6 Modellansätze für das hydraulische Modell	23
3.6.1 Modellansätze zum Fluidtransport	23
3.6.2 Äquivalentporöser Ansatz zur Simulation von Strömung und Transport.....	23
3.6.3 Modellansatz zur Gasbildung.....	24
3.6.4 Dichtegetriebener Lösungsaustausch	25
3.7 Modellansätze für den Stofftransport	25
3.8 Modellansätze für das geochemische Milieu.....	26
3.9 Modellansätze für Radionuklidlöslichkeit und -sorption	27
3.9.1 Abhängigkeit von der Lösungsspeziation	27
3.9.2 Löslichkeit.....	28
3.9.3 Sorption	28
3.9.4 Methodik der Quantifizierung von Radionuklidlöslichkeit und -sorption	29
3.10 Umgang mit Ungewissheiten	29
4 Parametrisierung des hydraulischen Modells	31
4.1 Modellgeometrie	31
4.2 Räumliche Diskretisierung	33
4.3 Randbedingungen	34
4.4 Anfangsbedingungen.....	35
4.5 Parametrisierung der hydraulischen Eigenschaften	35
4.5.1 Porosität und Permeabilität.....	35
4.5.2 Materialparameter 2-Phasenfluss	36
4.6 Parametrisierung der Eisenkorrosion.....	37
4.6.1 Einfluss hoher Nitratkonzentrationen auf die Korrosion eisenhaltiger Materialien	37
4.6.2 Abbildung der Eisenkorrosion im Modell.....	38
4.7 Parametrisierung Gas- und Lösungseigenschaften	39
4.8 Parametrisierung des Transports.....	39
4.9 Zeitliche Entwicklungen der Modellparameter.....	40
4.10 Variationsrechnungen.....	40
5 Ergebnisse und Diskussion	41
5.1 2-Phasenfluss, Gasbildung.....	41
5.2 Tracer-Transport.....	51
5.3 Geochemische Milieus.....	53
5.4 Radionuklidlöslichkeit und -sorption.....	57
5.4.1 Überblick.....	57
5.4.2 Einfluss hoher Nitratkonzentrationen auf die Radionuklidsorption.....	58
5.4.3 Löslichkeit.....	58
5.5 Radionuklidfreisetzung aus den Abfallgebinden.....	62
5.5.1 Radionuklidfreisetzung aus den zementierten Abfallgebinden	62
5.5.2 Radionuklidfreisetzung aus den bituminierten Abfallgebinden.....	63
6 Schnittstelle zum Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude	64

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
									Blatt: 5

6.1	Modellierung im Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude	64
6.2	Übertragungen von Ergebnissen aus dem hydraulischen Modell und aus den Betrachtungen zur Radionuklidrückhaltung.....	66
6.3	Daten und Szenarien	67
6.3.1	Gasbildung	67
6.3.2	Gaseindringdruck (nur KAFKA).....	67
6.3.3	Radionuklidfreisetzung aus den Abfällen (nur LOPOS).....	68
6.3.4	Löslichkeitslimitierung (nur LOPOS)	68
6.3.5	Transportzeit in der MAW-Kammer.....	68
7	Schlussfolgerungen und Empfehlungen	69

Verzeichnis der Anhänge

Anhang A	Kapillardruck-Sättigungsbeziehung und Sättigungsrelative Permeabilitätsbeziehungen	71
Anhang B	Diskussion und Begründung der hydraulischen Parameter.....	73
Anhang C	Abschätzung der hydrodynamischen Druckdifferenz für die Randbedingungen des hydraulischen MAW-Modells.....	79
Anhang D	Abbildungssequenzen Basisfall	80
Anhang E	Ergebnisse der Variationsrechnungen	86
Anhang F	Abschätzungen der Radionuklidfreisetzung auf Basis der Auslaugversuche von Kluger et al. 1980 [57].....	121
Anhang G	Diskussion der Freisetzung ausgewählter Elemente	123
	Strontium (Sr).....	123
	Americium (Am)	125
	Plutonium (Pu)	127
	Literatur.....	129

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1:	Schnittstellen des Modellsystems für die MAW-Kammer mit dem Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude.....	8
Abbildung 2:	Lage der MAW-Kammer 8a im Sohlenriss der 511-m-Sohle (Ausschnitt), aus [17].	9
Abbildung 3:	Versturzkegel der Abfallgebinde in der MAW-Kammer nach der Einlagerung, aus [13].	10
Abbildung 4:	Vertikalschnitt durch den MAW-Grubenbereich, aus [14].....	13
Abbildung 5:	Schematische Beziehung zur Abhängigkeit der zu betrachtenden Prozesse.....	15
Abbildung 6:	Räumliche Abstraktion der MAW-Kammer im Kontext des hydraulischen MAW-Modells.	17
Abbildung 7:	Anstieg von Lösungspegel und Druck in ausgewählten Modellkammern F12_479, F2_496, F2_511 und F2_532 auf der 511-m-, 532-m-Sohle und im Bereich der 490-m-Sohle des Strömungs- und Transportmodells Grubengebäude im Rechenfall BF20a-K, aus [33]......	19
Abbildung 8:	Entwicklung der Radiotoxizität des Radionuklidinventars in der MAW-Kammer auf Grundlage der Zusammenstellung der Aktivität in [23] und Dosiskoeffizienten [15]. Der Zeitpunkt 0 bezieht sich auf das Jahr 1980, der angenommene Zeitpunkt eines Notfalls im Jahr 2028 ist als senkrechte gestrichelte Linie markiert.	21
Abbildung 9:	Modelldomäne, Modellkompartimente und räumliche Diskretisierung (Konturzone: dunkelblau, Sorelbetonglocke: hellblau, Fasskegel: dunkelrot, liegende und hangende Schweben: hellrot).....	34
Abbildung 10:	Zeitlich veränderliche Druckrandbedingungen des MAW-Modells in 490 m Teufe (Oberer Rand) und 532 m Teufe (Unterer Rand).....	35
Abbildung 11:	Van Genuchten – Mualem Modell für Kapillardruck-Sättigungsbeziehung und für die relativen Permeabilitäts-Sättigungsbeziehungen für Gas und Lösung.....	37
Abbildung 12:	Entwicklungen wichtiger Zielgrößen der 2-Phasenmodellierung als kompartimentbezogene Volumenmittelwerte: (a) mittlere Lösungssättigung im Fasskegel, (b)	

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 6



mittlere Lösungssättigung in der Sorelbetonglocke, (c) mittlerer Gasdruck im Fasskegel, (d) Menge an korrodierbarem Eisen (Fe^0) der Fässer, (e) Menge an korrodierbarem Eisen (Fe^0) in den zementierten Abfallmatrizes, (f) Menge an korrodierbarem Eisen (Fe^0) in den bituminierten Abfallmatrizes, (g) Rate der korrosiven Gasbildung im Fasskegel, (h) gesamte gebildete Gasmenge im Fasskegel..... 44

Abbildung 13: Massenbilanz der 2-Phasenkomponenten Wasser und Wasserstoff. 45

Abbildung 14: Kumulierte Massenflüsse der 2-Phasenkomponenten Wasser und Wasserstoff über die obere und untere Modellrandbedingung. 46

Abbildung 15: Tracerflüsse an den Modellrändern. 52

Abbildung 16: Kumulierter Austrag von Tracer B an den Modellrändern im Verhältnis zum initialen Inventar..... 53

Abbildung 17: Pourbaix-Diagramme für Plutonium und Americium, berechnet für $[An] = 10^{-11}$ M in 0,1 M NaCl unter Verwendung der Daten aus [40]. 60

Abbildung 18: Kapillardruck-Sättigungs-Beziehung nach [98]. 77

Abbildung 19: Relative Permeabilitäten nach [98]. 78

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: Geometrische Basisdaten für die Modellkompartimente 33

Tabelle 2: Porosität und Permeabilität der Modellkompartimente für den Basisfall..... 36

Tabelle 3: Hydraulische Materialcharakteristika für den Basisfall 36

Tabelle 4: Variationsrechnungen..... 41

Tabelle 5: Zusammensetzung der zementierten Abfälle für die Berechnung des geochemischen Milieus der Porenlösung..... 54

Tabelle 6: Zusammensetzung des Sorelbeton A1 für die Berechnung des geochemischen Milieus in den Zwickelräumen des Fasskegels. 54

Tabelle 7: Charakteristika der relevanten geochemischen Milieus. 55

Tabelle 8: Radionuklidlöslichkeit (molale Skala „mol kg^{-1} H_2O^{-1}) für die beiden betrachteten Lösungsbedingungen. Die Ermittlung der Werte erfolgte anhand vergleichbarer generischer Lösungen, siehe Text. 61

Tabelle 9: Parametrisierung der Gasbildung für das Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude..... 67

Tabelle 10: Hydraulische Basisdaten für die Modellkompartimente..... 73

Tabelle 11: Molale Sr(II)-Löslichkeit und dominierende Gleichgewichtsreaktionen für Milieus A, B und C. Die betrachteten generischen Lösungsbedingungen sind in Klammern angegeben..... 124

Tabelle 12: Molale Am(III)-Löslichkeit und dominierende Gleichgewichtsreaktionen für Milieus A, B und C. Die betrachteten generischen Lösungsbedingungen sind in Klammern angegeben..... 126

Tabelle 13: Molale Pu(IV)-Löslichkeit und dominierende Gleichgewichtsreaktionen für Milieus A, B und C. Die betrachteten generischen Lösungsbedingungen sind in Klammern angegeben..... 128

Anzahl der Blätter dieses Dokumentes.....135

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 7

1 Veranlassung und Einordnung

Dieser Bericht beschreibt die aktuellen Berechnungen zur Systementwicklung in der MAW-ELK (Einlagerungskammer 8a/511) beim Eintreten eines Notfalls und Verbleiben der Abfälle in der MAW-ELK.

Die MAW-ELK ist im Vergleich zu den Einlagerungskammern mit schwachradioaktiven Abfällen (LAW-ELK) durch mehrere Besonderheiten charakterisiert:

- a) Art, Konditionierung und Radionuklidinventar der eingelagerten Abfälle: in den mittelradioaktiven Abfällen wird das Inventar durch kurzlebige Radionuklide (Am-241, Cs-137 und Sr-90) dominiert; die Abfälle befinden sich zu etwa zwei Dritteln in zementierten und einem Drittel in bituminierten Fässern; zum Zeitpunkt der Einlagerung war die Höhe der Radiotoxizität in der MAW-ELK vergleichbar zur Gesamtoxizität aller LAW-ELK zusammen.
- b) Position im oberen Grubengebäude am östlichen Rand des Oberen Baufeldes in der Südflanke in der Nähe zu den Übertrittstellen ins Deckgebirge an der Südflanke im Bereich der 500-m-Sohle.
- c) Von den LAW-ELK abweichendes Sicherheitskonzept mit Notfallmaßnahmen, die sämtlich erst mit dem Eintreten des Notfalls realisiert werden (im Detail beschrieben in [32]).

Auf diese Besonderheiten wird detaillierter im Kapitel 2 eingegangen.

Die vereinfachte Abbildung des Grubenbereiches mit der MAW-Kammer im Strukturmodell D8 des Grubengebäudes [41], verbunden mit Modellansätzen für Radionuklidmobilisierung und -transport durch Lösungsverdrängung infolge Gasbildung in der MAW-Kammer, die teilweise als unrealistisch eingeschätzt werden, führt rechnerisch zu einem sehr frühen und als realitätsfern erachteten Austrag der Radionuklide in das Deckgebirge [33]. Dieser frühe und hohe Austrag im Bezugsfall BF20a überdeckt außerdem die Beiträge aus den LAW-ELK.

Ziel der Betrachtungen des vorliegenden Berichts ist daher eine realitätsnähere Beschreibung der Freisetzung von Radionukliden aus den MAW-Abfällen und deren Transport in der MAW-Kammer. Hierbei wird auf folgende Prozesse eingegangen, die zum Teil mit Modellierungen (Berechnungen) unterlegt werden:

- realitätsnäherer Gasbildung,
- realitätsnäherer Freisetzung der Radionuklide aus den Abfallgebänden,
- realitätsnäherem Transport der Radionuklide innerhalb der MAW-ELK,
- realitätsnäherem Transport der Lösungen und Gase innerhalb und aus der MAW-ELK.

Dies bedarf detaillierterer Analysen und Bewertungen von Fluidbewegungen, Gasbildung und geochemischen Milieubedingungen innerhalb der MAW-Kammer für die Ermittlung der Freisetzung relevanter Radionuklide aus den Abfällen durch Korrosion und Degradation von Versatz- und Abfallstoffen. Im Ergebnis der Berechnungen und Analysen werden neue Quellterme für die Gasbildung und ausgewählte Radionuklide in der MAW-Kammer für das Nahfeldmodell bereitgestellt. Dazu werden aber auch aus den bisherigen Berechnungen mit dem Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude D8 – insbesondere dem BF20a [33] – bergbauliche und hydraulische Randbedingungen für die Berechnung der Systementwicklung und der o. g. Prozessabläufe in der MAW-Kammer abgeleitet, um eine realitätsnahe Anbindung des lokalen Teilsystems der MAW-ELK an das Strömungsmuster des Gesamtsystems Nahfeld¹ zu gewährleisten (Abbildung 1).

¹ Der Begriff „Nahfeld“ wird in diesem Bericht entsprechend der Definition in der Systembeschreibung für das Nahfeld [22] verwendet.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

**BUNDESGESELLSCHAFT
FÜR ENDLAGERUNG**

Blatt: 8

Der vorliegende Bericht beschreibt zunächst das System der Kammer 8a/511 sowie deren Lage und Umgebung im Grubengebäude der Schachanlage Asse II (Kapitel 2). Im Modellkonzept (Kapitel 3) werden dieses Systemverständnis und die gegenwärtigen Standortgegebenheiten zu Grunde gelegt und für relevant erachtete Prozesse sowie deren Abbildung im Modell, inklusive erforderlicher Vereinfachungen, wiedergegeben. Es beschreibt die Methodik zur Quantifizierung der Prozesse und deren Abhängigkeiten. Parameter der hydraulischen Berechnungen werden in Kapitel 4, Ergebnisse in Kapitel 5 dargestellt und diskutiert. In Kapitel 6 werden, als Schnittstellen zum Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude, die Parametrisierungen der Gasbildung und der Radionuklidfreisetzung aus den Abfallgebänden aus den Ergebnissen abgeleitet. Kapitel 7 diskutiert Schlussfolgerungen und Empfehlungen.

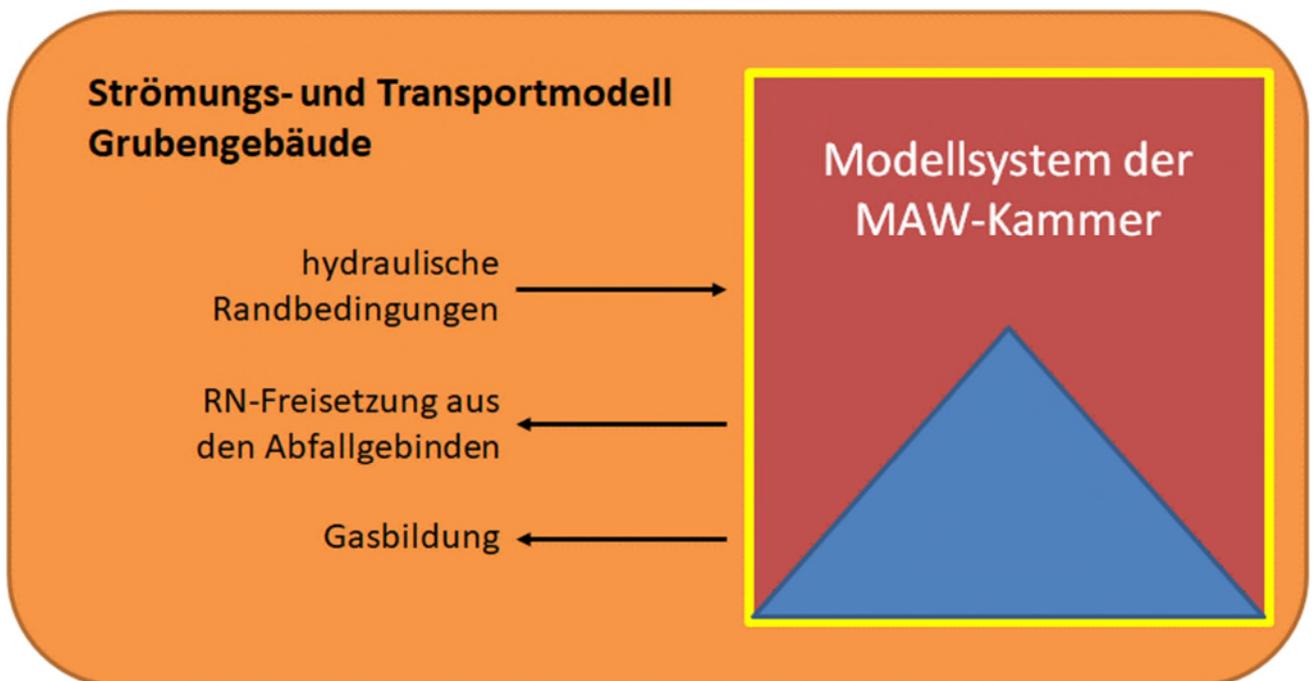


Abbildung 1: Schnittstellen des Modellsystems für die MAW-Kammer mit dem Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude.

Abbildung 1 stellt schematisch die Abgrenzung des Modellsystems für die MAW-Kammer von den Strömungs- und Transportmodellen für das Nahfeld der Grube sowie die wichtigsten Schnittstellen dar.

2 Systembeschreibung der Kammer 8a/511 und deren Umgebung

Im Bericht „Systembeschreibung - Nahfeld für den Standort Asse“ [22] werden u. a. für die Kammer 8a/511 übergeordnete Gegebenheiten zusammengefasst und insbesondere die bergbauliche Situation und die hydraulischen Aspekte in der Einlagerungskammer und im Nahbereich beschrieben. Vor dem Hintergrund der in Kapitel 1 erwähnten Erfordernisse einer realitätsnäheren Beschreibung des Teilsystems der MAW-Kammer im Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude werden in den folgenden Abschnitten diejenigen Zusammenhänge und Besonderheiten der MAW-ELK skizziert, die für die Modellierungen erforderlich sind. Das Kapitel gliedert sich in eine kurze Beschreibung der aktuellen bergbaulichen Situation in der MAW-Kammer und den Grubenbereichen in unmittelbarer Umgebung (Kapitel 2.1), des kammerspezifischen Radionuklidinventars und des stofflichen Inventars (Kapitel 2.2), der zu erwartenden Entwicklungen innerhalb der MAW-Kammer sowie der für relevant erachteten Merkmale und Prozesse beim Vordringen von Salzlösung in die MAW-Kammer (Kapitel 2.3).

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	


**BUNDESGESELLSCHAFT
FÜR ENDLAGERUNG**

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme	Blatt: 9
--	----------

2.1 Bergbauliche Situation der MAW-Kammer und deren unmittelbarer Umgebung

Die MAW-Kammer 8a/511 befindet sich im oberen Baufeld in der Südflanke auf der 511-m-Sohle, östlich des Hauptpfeilers und nördlich der Abbaureihe 8 (Abbildung 2). Die MAW-Kammer wurde ausschließlich im Leine-Steinsalz aufgefahren; sie ist auf der 532-m-Sohle durch den Abbau 8a/532 unterfahren und auf der 490-m-Sohle mit der Beschickungskammer überfahren [17]. Die MAW-Kammer war nur durch ihren südlichen Pfeiler befahrbar. Dieser Durchhieb zur Abbaureihe 8 ist mit einer Strahlenschutzmauer und einem vorgelagerten Bauwerk aus Sorelbeton verschlossen. Eine umfassende Dokumentation der Bauwerke enthält die Unterlage [13]. Die anderen Pfeiler und die Sohle der MAW-Kammer (auch als „liegende Schweben“ bezeichnet) sind nicht durchörtert. Während die Pfeilerkerne gegenwärtig noch als intakt bewertet werden, ist die liegende Schweben zum Abbau 8a/532 durch ihre gebirgsmechanisch starke Beanspruchung von Auflockerungszonen durchzogen [20]. Gleiches wird für die Schweben zur Beschickungskammer im Hangenden ausgeführt.

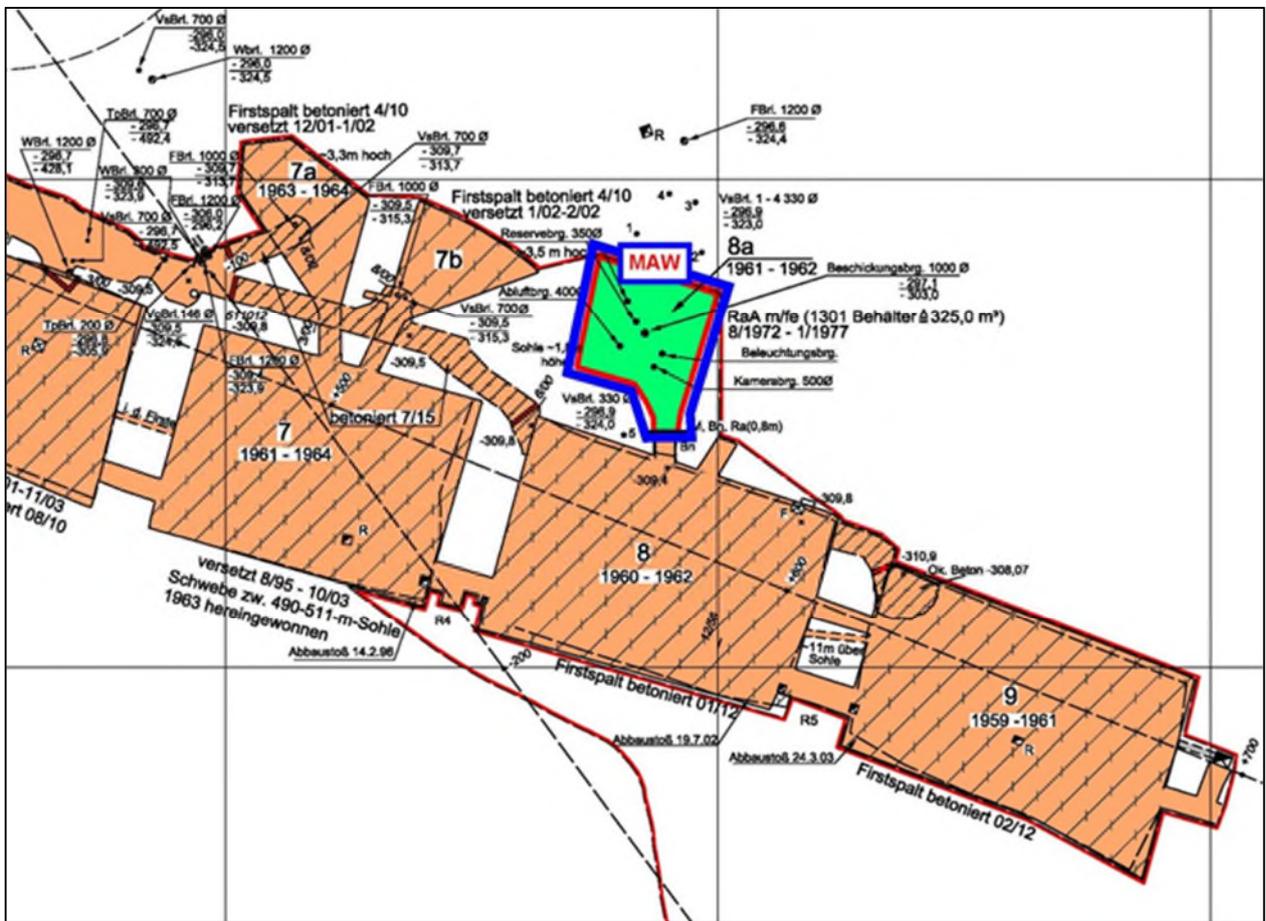


Abbildung 2: Lage der MAW-Kammer 8a im Sohlenriss der 511-m-Sohle (Ausschnitt), aus [17].

Die hangende Schweben ist durch Bohrungen mehrfach durchörtert [13]. Die MAW-Abfallgebände wurden über diese Bohrungen aus der Beschickungskammer abgelassen und im Zentrum der MAW-Kammer abgelegt. Demnach liegen die Gebände in einem Versturzkegel inmitten der Kammer (im Folgenden als „Fasskegel“ oder „Abfallkegel“ bezeichnet), der weder Stöße noch Firste erreicht, siehe Abbildung 3 [13]. Die Fotodokumentation nach der Einlagerung lässt erkennen, dass der freie Raum um den Versturzkegel mehrere Meter beträgt. Die MAW-Kammer, die Beschickungskammer

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 10

und ein Großteil der angrenzenden Grubenbaue auf der 490-m-Sohle sind noch unverfüllt und sollen im offenen Zustand bis zur Rückholung² oder bis zum Eintreten des Notfalls verbleiben.

Die technischen Maßnahmen zur Rückholung der MAW-Gebinde sind noch nicht endgültig festgelegt und können daher in dieser Analyse nicht berücksichtigt werden. Die nachfolgende Analyse betrachtet unabhängig von der Rückholung die Konsequenzen aus dem Eintreten eines Notfalls vor dem Beginn der Rückholung der MAW-Gebinde.



Abbildung 3: Versturzkegel der Abfallgebände in der MAW-Kammer nach der Einlagerung, aus [13].

2.2 Kenntnisstand zum eingelagerten Abfallinventar in der MAW-Kammer

In die MAW-Kammer wurden 200-Liter-Fässer mit mittelradioaktiven Abfällen ohne Abschirmung eingelagert. Aufgrund der erheblich höheren Aktivität der eingelagerten 1301 MAW-Abfallgebände im Vergleich zu den schwachaktiven Abfallgebänden der LAW-Kammern, liegt in der Kammer 8a/511 die höchste kammerspezifische Aktivität vor.

Der überwiegende Anteil der Abfallgebände in der MAW-Kammer stammt aus der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) und wurden über das ehemalige Kernforschungszentrum Karlsruhe an die Schachtanlage Asse II geliefert. Die übrigen Fässer stammen von Amersham Buchler, vom Forschungszentrum Geesthacht und vom Forschungszentrum Jülich [12], [19]. Die Abfallgebände sind Metallfässer aus Stahlblech mit einem Volumen von 200 l und einer variablen Blechstärke von bis zu 1 cm. Die Rollreifentfässer wurden an der Außenwand lackiert. Allerdings ist davon auszugehen, dass die Lackierung bei der Einlagerung teilweise beschädigt wurde. Zusätzlich wurden acht Abfallgebände, die von Verlorener Betonabschirmungen (VBA) ummantelt wurden, eingelagert. Die überwiegende Anzahl der Abfallgebände enthalten mittelaktive Abfälle, die in Normalbeton eingebettet wurden (916 Gebände). Die Betonmatrix wurde mit Portlandzement als Bindemittel hergestellt, wobei die Rezeptur auf Normalbeton mit einem mittleren Wasser/Zement-Verhältnis von 0,4 (ohne große Variabilität) hinweist. Der Anteil an Abfallgebänden, die mittels Bitumen konditioniert wurden, liegt bei etwa 30 %. Über die Rezeptur bzw.

² Die Abfallgebände aus der MAW-Kammer sollen gemäß gesetzlicher Verordnung rückgeholt werden, sofern kein Notfall eintritt oder andere Umstände die Rückholung unmöglich machen.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 11



Zusammensetzung der Bitumenmatrizes besteht derzeit eine hohe Ungewissheit³. Die Abfallgebinde sind regellos und ungeordnet im Versturzkegel verteilt, so dass keine Bereiche mit vorwiegend bituminierten Abfallgebinden ausgewiesen werden können.

Das Abfallinventar der mittelaktiven Abfälle wird dominiert von kontaminiertem Schrott und Metallen (rund 60% der Abfallgebinde), die überwiegend in Zementmatrizes eingebettet sind. Rund 30% der Fässer enthalten Konzentrate, Austräge oder Rückstände aus Verdampfern, welche vorwiegend mit Bitumina verfestigt wurden. 5% der Fässer enthalten Ionenaustauscher und die übrigen 5% der Fässer enthalten kontaminierte Hülsen, Geräteteile, Papiere, Testbrennstabsegmente, Brennelementkugeln, Aschen und diverse Gegenstände [12], [16].

Für das stoffliche Inventar sind bei den Abfallinhaltsstoffen der hohe Anteil an Eisen und an Nitrat sowie bei den Konditionierungsstoffen die Mengen an Zementstein und Bitumen bzw. organischem Kohlenstoff von Bedeutung [12], [28]⁴. Für die Beschreibung und Quantifizierung der in Kapitel 1 erwähnten Prozesse Gasbildung, Freisetzung der Radionuklide, Transport der Radionuklide sowie Transport der Lösung und Gase sind die Mengenverhältnisse dieser chemisch reaktiven Stoffe von großer Bedeutung. Während die in der Kammer 8a/511 eingelagerte Masse an Eisen mehrere hunderte Tonnen und die Masse an Zementstein weit über einhundert Tonnen beträgt, sind die Massen an Nitrat und Kohlenstoff lediglich im Bereich von weniger als fünfzig Tonnen. So ist die Stoffmenge („Molmenge“) an Eisen mehr als eine Größenordnung höher als die Nitratstoffmenge. Bei Kontakt der Abfallgebinde mit Salzlösung bilden sich langfristig durch Eisenkorrosion sauerstoffarme, reduzierende Bedingungen (siehe nachfolgendes Kapitel 2.3), die den Einfluss von gegebenenfalls oxidierenden Nitratverbindungen bei weitem überwiegen.

Vom Radionuklidinventar befinden sich Am-243 (Gesamtinventar⁵ 2,363E+10 Bq), Sr-90 (Gesamtinventar 1,515E+14 Bq) und Cs-137 (Gesamtinventar 2,169E+14 Bq) zu mehr als 90% in Abfallgebinden mit Betonmatrizes [38], [23]. Ebenso ist mehr als die Hälfte des Inventars an Pu-239 (Gesamtinventar Pu-239 4,51E+12 Bq) und weiterer Pu-Radionuklide in derartig zementierten Abfallgebinden. Durch den stetigen Aufbau des Am-241 aus dem Zerfall von Pu-241 (vornehmlich in den bituminierten Abfallgebinden) erhöht sich der Anteil von Am-241 an der gesamten Radiotoxizität der Abfälle mit der Zeit. Die Ortsdosisleistung betrug im Jahr 1996 zum Zeitpunkt der letzten Messung am kegelförmigen Fasshaufen der MAW-Kammer 0,36 Gray pro Stunde [36]. Eine Auflistung des Radionuklidinventars in der MAW-Kammer ist in [23] enthalten. Die Auswahl der für den Austrag aus der MAW-Kammer als relevant erachteten Radionuklide ist in Kapitel 3.4 diskutiert.

2.3 Prozesse und Entwicklungen innerhalb der MAW-Kammer

In diesem Abschnitt werden nur Abläufe skizziert, die für die nachfolgenden Betrachtungen von Bedeutung sind. Dabei wird sich auf die Prozesse in der frühen Nachbetriebsphase fokussiert (Begründung siehe Kapitel 3.3), die dem Verständnis der Modellkonzepte und -parameter im MAW-Modellsystem dienen.

Da die MAW-Kammer, die Beschickungskammer und ein Großteil der angrenzenden Grubenbaue auf der 490-m-Sohle bis zum Eintreten des Notfalls unverfüllt verbleiben, wird die gebirgsmechanische Verformung weiterhin einwirken und fortschreitende Entfestigungen und Auflockerungen des Gesteins (Pfeiler, Schweben) bewirken. Bei weiterhin fehlender Konturstabilisierung in der MAW-Kammer werden sich die Auflockerungszonen in der Kontur der Kammer, in den Pfeilern und in der hangenden Schweben während der Betriebsphase ausweiten bzw. verstärken

³ Die Inventardatenbanken werden derzeit überarbeitet und aktualisiert.

⁴ Ableitung der kammerspezifischen Daten basierend auf Angaben in diesem Bericht.

⁵ Die Angaben zu den Radionuklidinventaren beziehen sich auf den 01.01.1980.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 12



[20]. Hingegen sind die angrenzenden Hohlräume auf der 511-m-Sohle und der 532-m-Sohle bereits vollständig mit Sorelbeton nachverfüllt, wodurch auch die liegende Schwebelagerung der MAW-Kammer stabilisiert wird. Diese Stabilisierung bewirkt eine Konsolidierung, so dass eine Ausweitung der Auflockerungszonen in der liegenden Schwebelagerung nicht erwartet wird [20]. Eine umfassende Beschreibung der gebirgsmechanischen Situation und eine qualitative Prognose für die zukünftige Betriebsphase enthält die o. g. Unterlage. Daneben enthält die Systembeschreibung für das Nahfeld [22] relevante Erläuterungen und Interpretationen der zukünftigen Situation im gesamten MAW-Grubenbereich.

Beim Eintreten des Notfalls sollen alle Resthohlräume nebst Bohrungen in der MAW-Kammer und deren unmittelbarem Umfeld mit Sorelbeton A1 bestmöglich verfüllt werden, vgl. [14]. Als weitere Notfallmaßnahme soll eine $MgCl_2$ -reiche Lösung in das Grubengebäude eingeleitet und währenddessen ein pneumatischer Druck von 1,0 bis 1,5 MPa aufgeprägt werden. In der Unterlage zum Strukturmodell D8 [41] sind die Notfallmaßnahmen in der MAW-Kammer umfassend erläutert und begründet. Hierbei ist zu beachten, dass eine Prognose des Eintretens des Notfalls nicht möglich ist, und somit auch die Dauer der vorangegangenen Betriebsphase ungewiss ist. Im Ergebnis der Notfallmaßnahmen ist davon auszugehen, dass die Sorelbetonverfüllung den Fasskegel glockenförmig überdeckt. Im Folgenden wird die Sorelbetonverfüllung daher als „Sorelbetonglocke“ bezeichnet.

Hinsichtlich der hydraulischen Eigenschaften der Sorelbetonglocke besteht eine hohe Ungewissheit aufgrund der schwierigen Prognose von vernetzten Rissystemen im Betonkörper und deren dynamischer Entwicklung bei Kontakt mit Lösung [86]. Gleiches gilt für die Betonverfüllung im Zugang der MAW-Kammer. Unabhängig von möglichen Riss- oder Mineralumbildungen im Sorelbeton ist von einer erheblich geringeren Permeabilität der Sorelbetonglocke im Verhältnis zum Fasskegel (mit Zwickeln) auszugehen. Darum und aufgrund der Strömungsverhältnisse in der Grube wird das Vordringen von Lösung in den Fasskegel der MAW-Kammer über die liegende Schwebelagerung erwartet. Lösungsbewegungen in der MAW-Kammer werden während der frühen Nachbetriebsphase bevorzugt über die hoch durchlässigen Konturzonen erfolgen.

Eine Prognose der hydraulischen Eigenschaften der Auflockerungszonen in der Kontur und in den Schwebelagerungen ist mit großen Ungewissheiten behaftet (Länge der Betriebsphase, Feuchtekröchen bei Kontakt mit Lösung). Der Sorelbetonblock stellt aber nicht nur einen hohen Strömungswiderstand dar, sondern er entwickelt auch eine Stütz- und Widerlagerwirkung gegen das durch Konvergenz auflaufende Gebirge, so dass sich Auflockerungszonen in der Kontur und in den Schwebelagerungen mit der Zeit schließen werden. Dies lässt zumindest in den Konturzonen der Pfeiler eine Abnahme der Durchlässigkeit erwarten.

Die Abbildung 4 skizziert den MAW-Bereich mit den Abdichtungen und Stabilisierungen gemäß Notfallplanung [14]. Die farbigen Bereiche und die Schraffur der MAW-Kammer kennzeichnen die Verfüllungen mit Sorelbeton unterschiedlicher Qualität und Anforderung. Die Dreiecke kennzeichnen Auffahrungen rechtwinklig zur Schnittebene.⁶ Die aufgelockerten Gesteinsbereiche zwischen den Sohlen (Schwebelagerungen) sind nicht speziell gekennzeichnet.

⁶ Die Bohrungen in der Firste der MAW-Kammer (vgl. Abbildung 4: Vertikalschnitt durch den MAW-Grubenbereich,) liegen außerhalb dieser Schnittebene.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	


**BUNDEGESELLSCHAFT
FÜR ENDLAGERUNG**

**Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme**

Blatt: 13

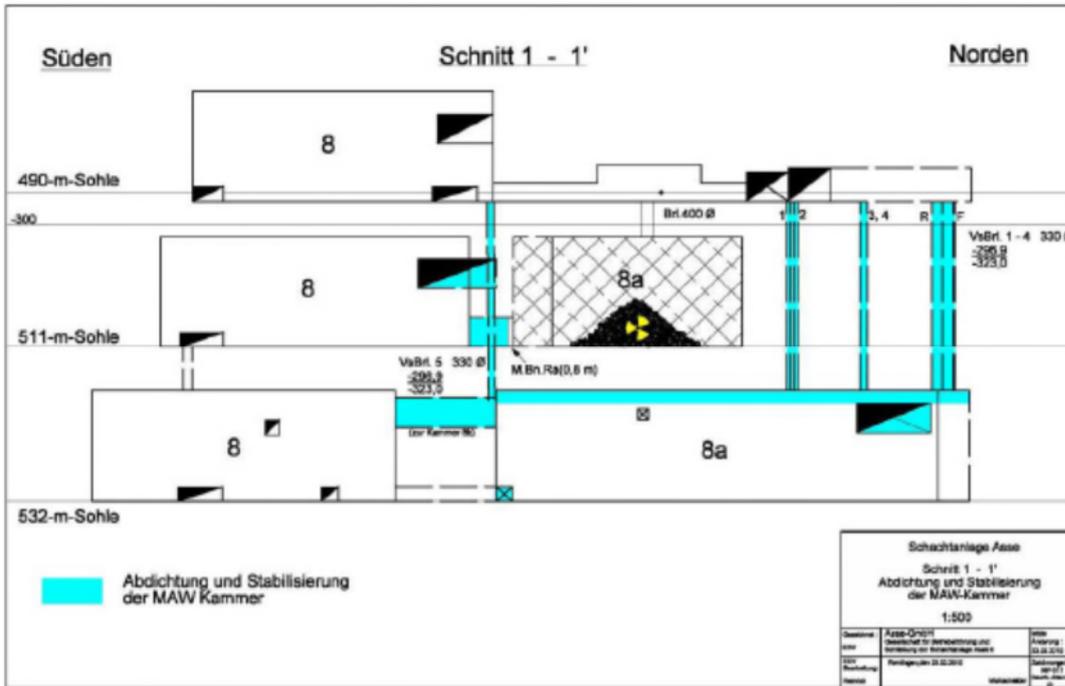


Abbildung 4: Vertikalschnitt durch den MAW-Grubenbereich, aus [14].

Die Zwickel zwischen den Abfallgebinden im Fasskegel werden nach der Verfüllung der MAW-Kammer mit Sorelbeton aufgrund seiner hohen Fließfähigkeit und langen Topfzeit (Verarbeitbarkeitsdauer) teilweise mit diesem aufgefüllt sein. In Anlehnung an Abschätzungen für LAW-Gebindestapel mit Zwickeln [13] wird angenommen, dass der Sorelbeton mindestens in die Hälfte des Zwickelraums vordringen wird.

Einige relevante Prozessabläufe beginnen bereits während der Betriebsphase. Die anfängliche Metallkorrosion läuft unter aeroben Bedingungen, d. h. bei Verfügbarkeit von Luftsauerstoff und Wasser etwa eine bis zwei Größenordnungen schneller ab als unter den sich langfristig einstellenden anaeroben Bedingungen (u. a. [83]). Aerobe Bedingungen werden an der Außenseite der Metallfässer erwartet. Die Metallkorrosion wird jedoch durch die Lackierung und das Sauerstoffdefizit behindert. An der Innenseite der Fässer können bereits anaerobe Verhältnisse vorliegen, wenn keine Beschädigungen der Fässer durch das Verstürzen oder fortschreitenden Korrosion vorliegen. Die Innenseite der Fässer ist jedoch größtenteils durch Zement passiviert und Bitumen versiegelt [2].

Der Großteil des Inventars an Organika liegt in Form von schwer degradierbarem Bitumen vor, dessen mikrobieller Abbau im trockenen Fasskegel durch die Verfügbarkeit von Wasser und – nach dem Vordringen von $MgCl_2$ -reicher Lösung – durch die geringe Wasseraktivität und die Chaotropizität der hochsalinaren Lösung erschwert bzw. nahezu unterbunden wird. Die mikrobielle Degradation von Organika wird daher sowohl in der Betriebsphase als auch danach im Betrachtungszeitraum (100.000 Jahre) als nachrangig eingestuft.

Spätestens mit dem Eintreten eines Notfalls und dem Vordringen von Lösung ist im gesamten Fasskegel von einem Übergang zu anaeroben Bedingungen auszugehen. Die anaerobe Metallkorrosion bildet dann neben festen Korrosionsprodukten (wie z. B. Eisenhydroxide und -oxyhydroxide) Wasserstoffgas (H_2), solange Wasser vorhanden ist. Durch den Verbrauch von Wasser als Edukt ergibt sich eine direkte Kopplung zwischen korrosiver Gasbildung und verfügbarer Lösungsmenge durch Lösungszutritt in den Abfallkegel: Die anaerobe Metallkorrosion bildet Wasserstoffgas, das unter der gering-permeablen Sorelbetonglocke ein Gaspolster bildet und damit

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 14

den weiteren Lösungszutritt behindert. Dieser verringerte Lösungszutritt wiederum limitiert die Metallkorrosion.

Als weiterer Effekt wird das im Fasskegel gebildete Gas zusammen mit der restlichen, dort gespeicherten Grubenluft durch den ansteigenden hydraulischen Druck in Folge des ansteigenden Lösungspegels und der Konvergenz⁷ im Grubengebäude zunehmend komprimiert. (Bei einem Anstieg des Gasdrucks von 1 MPa⁸ auf ca. 6 MPa⁹ ohne Gasabfluss würde das initiale Gasvolumen im Fasskegel auf 1/6 des ursprünglichen Volumens komprimiert.) Der steigende hydraulische Druck wirkt also der Ausbildung eines Gaspolsters im Fasskegel entgegen, sodass initial eine größere Lösungsmenge in die Zwickelräume des Fasskegels vordringen und die Abfallgebände benetzen kann.

Mittelfristig kann es aber, infolge der fortschreitenden Gasbildung, zur Ausbildung eines Gaspolsters im Fasskegel unter der Sorelbetonglocke kommen. Durch die eingeschränkte Verfügbarkeit und Mobilität der Lösung im teilweise gasgesättigten Fasskegel sind dann sowohl die Korrosion/Degradation der Abfallmatrizes und damit die Freisetzung von Radionukliden aus den Abfällen als auch der Lösungstransport von Radionukliden im Fasskegels stark eingeschränkt.

Da die Sorelbetonglocke nicht als vollständig gasdicht angesehen werden kann, ist langfristig von einer Verdrängung des Gaspolsters durch die vordringende Lösung und einem vollständigen Kontakt der Abfälle mit Lösung auszugehen.

Diese Systementwicklungen in der Nachbetriebsphase mit evtl. alternierenden lösungsgesättigten und lösungsuntersättigten Bedingungen im Fasskegel und deren Auswirkungen auf die Radionuklidfreisetzung aus den Abfällen und die Gasbildung sind Gegenstand der folgenden Untersuchungen und Analysen.

3 Modellkonzept

3.1 Prozesse und Kopplungen

Die nachfolgenden Prozesse sind für die Quantifizierung der Lösungs- und Gasflüsse sowie die Ausbreitung von Radionukliden und weiteren Schadstoffen innerhalb und aus der MAW-Kammer zu betrachten:

- (1) Gasbildung in Abhängigkeit gasbildender Inventare in den Abfällen, der Verfügbarkeit weiterer Edukte (insbesondere Wasser (2)) und des geochemischen Milieus (3)
- (2) 2-Phasenflüsse infolge von Fluiddruck- und Sättigungsentwicklung im Oberen Baufeld in der Südflanke und von Gasbildung (1) im Abfallkegel unter Berücksichtigung von Kapillardruck-Sättigungsbeziehungen, Gasspeicherung in Poren- und Zwickelräumen und sättigungsabhängiger relativer Permeabilität
- (3) Entwicklung des geochemischen Milieus der Lösung im Porenraum der Abfälle und in den Transportpfaden infolge der Reaktion der milieubestimmenden Kammerinhaltsstoffe (z. B. Sorelbeton, Matrix der zementierten Abfälle) mit der MgCl₂-reichen Lösung
- (4) Freisetzung von Radionukliden aus den Abfallgebänden infolge der Korrosion/Degradation der Abfallmatrizes
- (5) Rückhaltung von ausgewählten Radionukliden in Form von Löslichkeitslimitierung und/oder Sorptionsprozessen in Abhängigkeit vom geochemischen Milieu der Lösung (3)

⁷ Strenggenommen führt die Konvergenz nur in Kombination mit dem Strömungswiderstand im Deckgebirge zu einem bedeutenden Druckanstieg.

⁸ entspricht näherungsweise dem Gasdruck der Druckluftbeaufschlagung

⁹ entspricht näherungsweise dem hydrostatischen Druck nach Abschluss des Einleitens MgCl₂-reicher Lösung

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	


**BUNDESGESELLSCHAFT
FÜR ENDLAGERUNG**

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme	Blatt: 15
--	-----------

- (6) Transport von ausgewählten Radionukliden und/oder Tracern (advektiv und diffusiv) in das Obere Baufeld in der Südflanke auf dem Lösungs- und Gaspfad in Abhängigkeit von 2-Phasenflüssen (2) unter Berücksichtigung der Freisetzung aus den Abfallgebänden (4) und Rückhaltung (5).

Abbildung 5 gibt vereinfacht ein Schema dieser Prozesse und ihrer Kopplungen wieder.

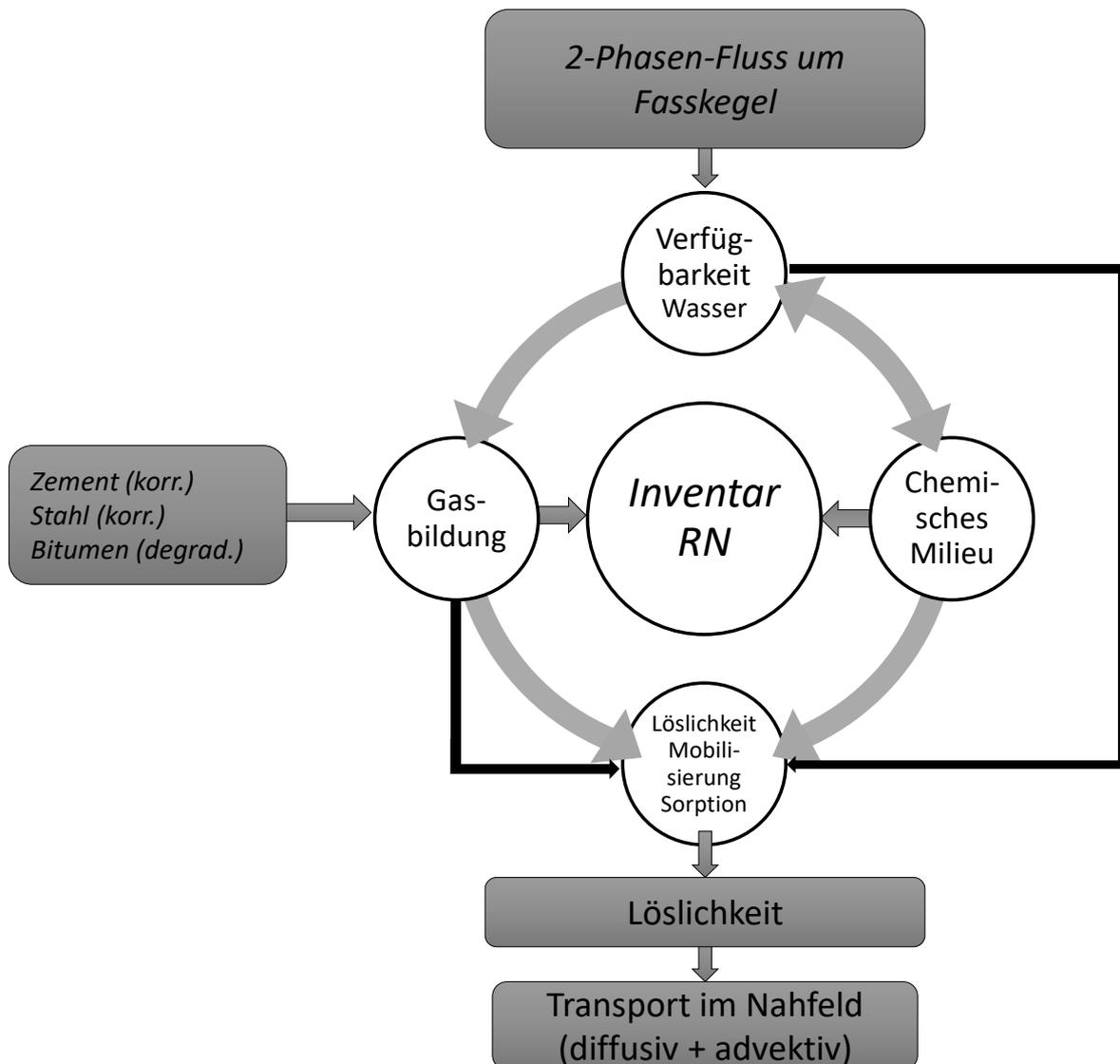


Abbildung 5: Schematische Beziehung zur Abhängigkeit der zu betrachtenden Prozesse

Diese Prozesse müssen nicht notwendigerweise in einem vollständig gekoppelten Modell abgebildet werden, aber die Abhängigkeiten untereinander sind in geeigneter Weise zu berücksichtigen sowie Schnittstellen zwischen verschiedenen Modellen entsprechend zu parametrisieren.

Die nachfolgenden Prozesse sind in der MAW-Kammer von untergeordneter Bedeutung und werden daher im hydraulischen MAW-Modell vernachlässigt oder nachrangig betrachtet:

- Mikrobielle Degradation von bituminierten Abfallmatrizes: Bitumen wird eine sehr hohe Beständigkeit unter den erwarteten Milieubedingungen zugewiesen [100], [61], [88], [70], [76]. Die bituminierten Abfälle werden deshalb in Bezug auf die Gasbildung für den Betrachtungszeitraum von 100.000 Jahren als inert betrachtet.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 16



- Radionuklidtransport in der Gasphase: sicherheitsrelevant wäre allenfalls C-14, das im Betrachtungszeitraum nur in vernachlässigbar geringer Menge in die Gasphase freigesetzt wird¹⁰.
- Konvergenz: durch die Vollverfüllung der MAW-Kammer mit Sorelbeton ist die Volumenkonvergenz der MAW-Kammer und die Kompaktion des Abfallkegels in der Nachbetriebsphase vernachlässigbar gering. Die Konvergenz wirkt auf die Kontur- und Auflockerungszonen in den Pfeilern und Schweben.

Auf die Modellansätze zur Berechnung der zu betrachtenden Prozesse wird in den Kapiteln 3.6 bis 3.9 eingegangen.

¹⁰ Sowohl die mikrobielle Methanogenese als auch die mikrobielle Oxidation von Organika zu CO₂ wird durch das erwartete geochemische Milieu stark behindert. Zudem würde gebildetes CO₂ beim Kontakt mit den Zementbestandteilen der Abfälle als Carbonat ausfallen.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	


**BUNDESGESELLSCHAFT
FÜR ENDLAGERUNG**

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
 und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

Blatt: 17

3.2 Räumliches Modellkonzept

Die räumliche Abstraktion der MAW-Kammer und der benachbarten Grubenbaue im Kontext des hydraulischen MAW-Modells (Kapitel 3.6) gibt Abbildung 6 in einem 2D-Schnitt entlang der N-S-Achse wieder. Es berücksichtigt die reale Geometrie der Grubenbaue gemäß Risswerk [17] und Beschreibung der MAW-Kammer [13] in vereinfachter Form.

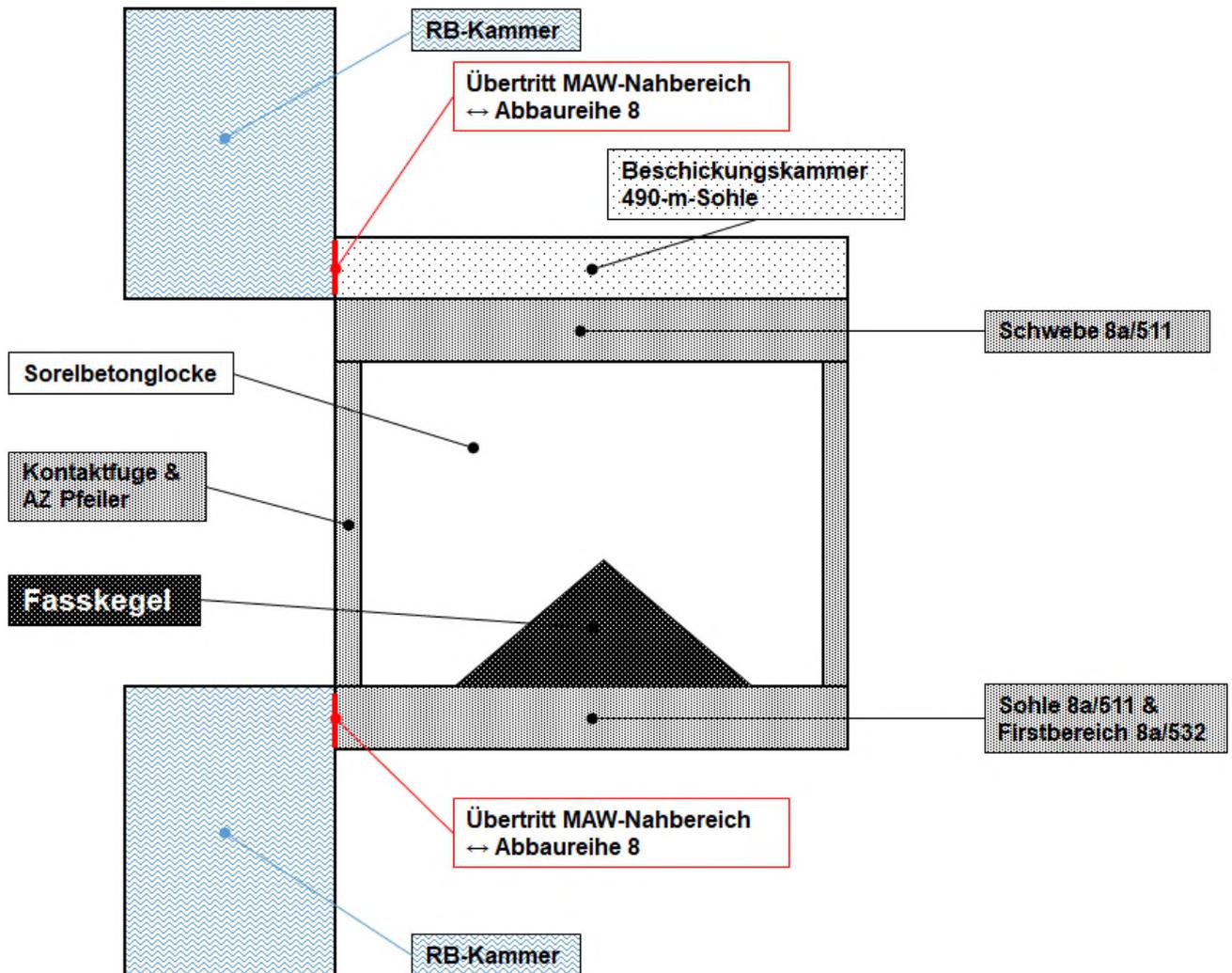


Abbildung 6: Räumliche Abstraktion der MAW-Kammer im Kontext des hydraulischen MAW-Modells.

Im Zentrum des Modellkonzepts steht die MAW-Kammer 8a/511 (näherungsweise ein Quader mit quadratischer Basis) mit einem stilisierten Fasskegel mit kreisförmiger Basisfläche, der auf der Sohle der MAW-Kammer aufsetzt. Um den Fasskegel ist der gesamte Hohlraum der Kammer von der Sohle bis zur Firste und bis an die Stöße mit Sorelbeton verfüllt („Sorelbetonglocke“). Im Hangenden und Liegenden der Kammer werden die aufgelockerten Schweben und an den lateralen Stößen die aufgelockerten Konturzonen der Pfeiler einschließlich der Kontaktzonen von Salzgestein und Sorelbeton im Modell abgebildet. Die liegende Schwebe und die Beschickungskammer im Hangenden bilden die hydraulischen Verbindungen zum übrigen Grubengebäude auf der 490-m-Sohle und der 532-m-Sohle, hier jeweils zur Abbaureihe 8 im Baufeld in der Südflanke. Die hydraulischen Wegsamkeiten dieser Anbindungen werden nicht explizit modelliert, da ihre Strömungswiderstände vernachlässigbar gering sind.

Die Wegsamkeit über den Durchhieb zur MAW-Kammer auf der 511-m-Sohle wird vernachlässigt, da sie durch die liegende Schwebe mit abgedeckt wird. Im Bereich des Durchhiebes werden die

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 18

Auflockerungszonen in der Sohle¹¹, welche in die aufgelockerte Konturzone der liegenden Schweben übergehen, als hydraulisch gering wirksam erachtet.

Die Randbedingungen des MAW-Modells in Form eines hydraulischen Gradienten werden durch zwei Modellbereiche im Teufenbereich der 490-m-Sohle und der 532-m-Sohle charakterisiert. Im Grubengebäude sind dies jeweils die Kammern der Abbaureihe 8 einschließlich ihrer hoch durchlässigen Wegsamkeiten zum MAW-Bereich. Diese Verbindungen verlaufen zum einen über die stark aufgelockerte Konturzone der Beschickungskammer und deren südlichen Durchhieb auf der 490-m-Sohle – insbesondere in der Sohle – aufgrund der lange andauernden Offenhaltung und zum anderen über den mit Salzgrus versetzten Abbau 8a/532 und den nur mit Salzhautwerk überschütteten Durchhieb im Sohlenniveau zum Abbau 8/532 auf der 532-m-Sohle. Deshalb steht die Abbaureihe 8 mit den äußeren Konturzonen der Schweben der MAW-Kammer hydraulisch in Verbindung – ohne wesentlichen Strömungswiderstand.

Druck- und Sättigungsentwicklungen in den RB-Kammern werden den entsprechenden Modellsegmenten des Strömungs- und Transportmodells Grubengebäude im Bezugsfall BF20a entnommen [33] (siehe Abbildung 7).

¹¹ Es erfolgte kein qualifizierter Nachschnitt in der Sohle vor dem Einbau der Mauer und des Sorelblockes. Durch die Widerlagerwirkung der Bauwerke werden die Auflockerungszonen im Kreuzungsbereich von Pfeiler und Schweben unterhalb des Durchhiebs als hydraulisch weniger wirksam angesehen als die in der liegenden Schweben, in der aufgrund von Scherbeanspruchungen durchgehende Risse erwartet werden.

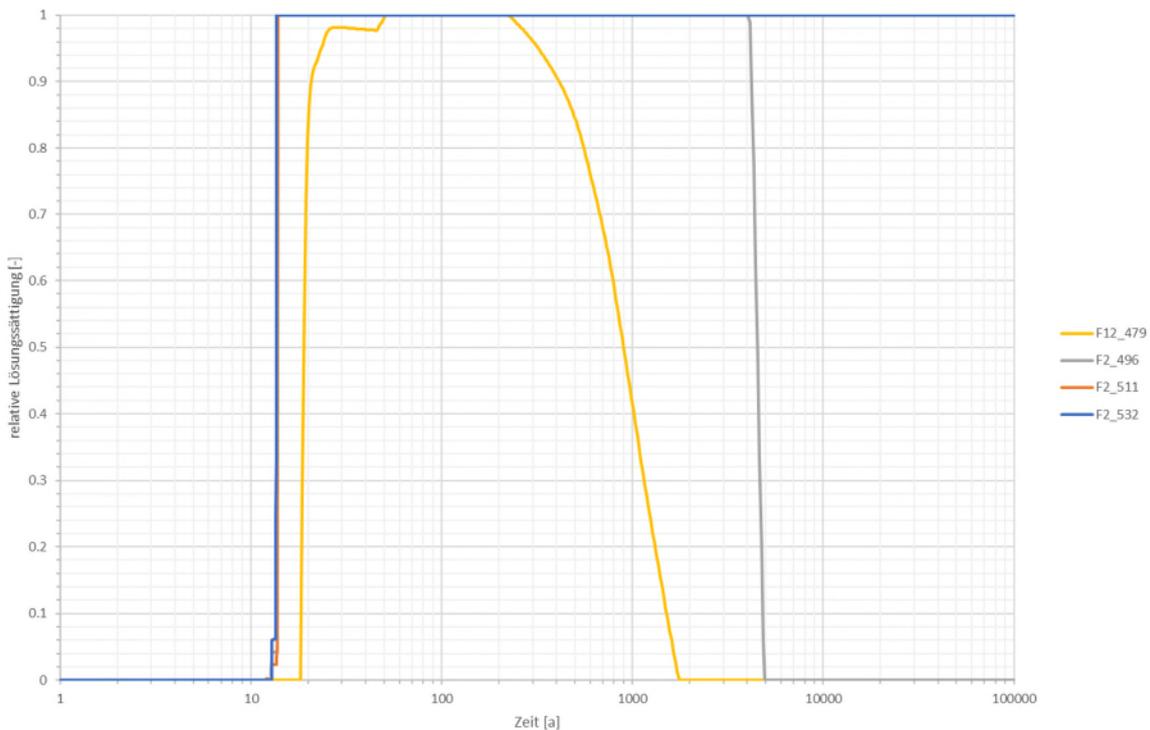
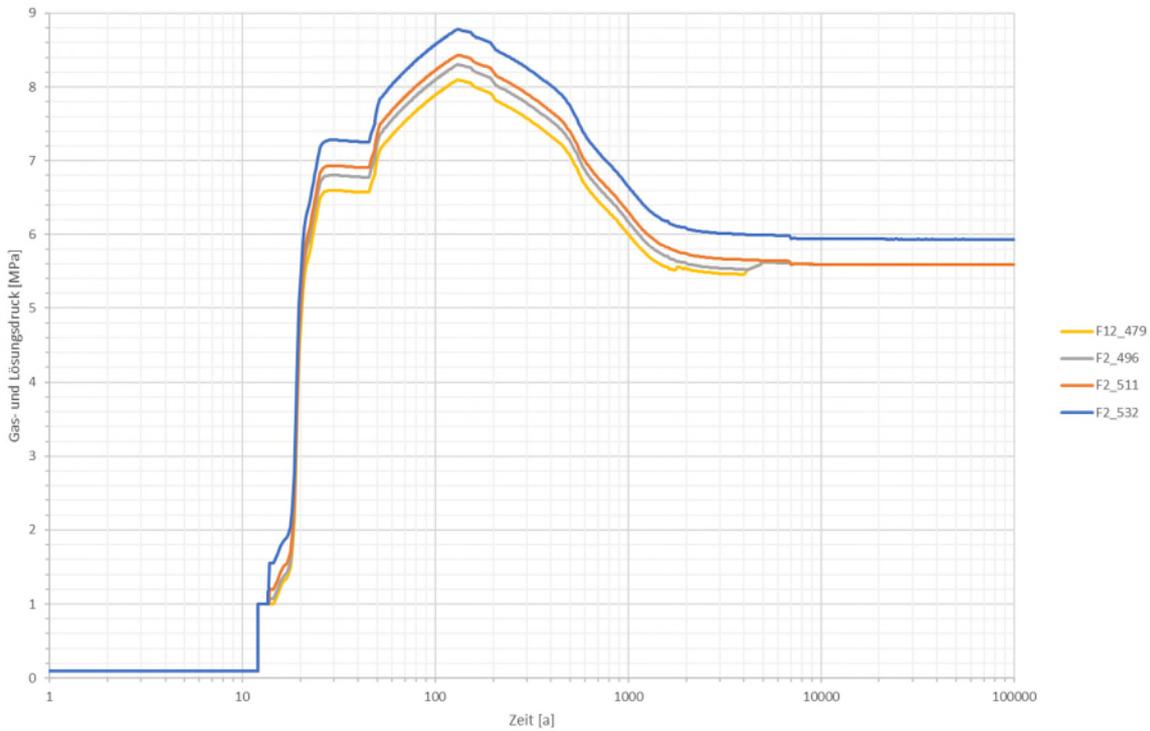


Abbildung 7: Anstieg von Lösungspegel und Druck in ausgewählten Modellkammern F12_479, F2_496, F2_511 und F2_532 auf der 511-m-, 532-m-Sohle und im Bereich der 490-m-Sohle des Strömungs- und Transportmodells Grubengebäude im Rechenfall BF20a-K, aus [33].

3.3 Zeitlicher Ablauf und Auflösung der Prozesse im Modell

Das Modellsystem der MAW-Kammer dient, wie unter Kapitel 1 ausgeführt, einerseits der Bereitstellung von Parametrisierungen von Quelltermen für das Strömungs- und Transportmodell

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 20

Grubengebäude, benötigt andererseits aber auch Ergebnisse aus dem Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude für die hydraulischen Randbedingungen (siehe Kapitel 3.2).

Als Beginn des Betrachtungszeitraumes wird ein fiktiver Zeitpunkt unterstellt, zu dem ein Notfall eingetreten ist, die Notfallmaßnahmen in der MAW-Kammer umgesetzt sind und das Einleiten der $MgCl_2$ -Lösung begonnen hat. Die Modellrechnungen für die MAW-Kammer beginnen mit dem Erreichen des Lösungspegels auf der 532-m-Sohle im Oberen Baufeld in der Südflanke (Zeitpunkt $t=0$). Entsprechend der Notfallplanung ist zu dieser Zeit – und bis zum Abschluss des Einleitens der $MgCl_2$ -Lösung – das Grubengebäude mit einem Luftdruck von 1 MPa beaufschlagt¹².

Im Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude ist die Modellkammer F2_532 etwa ein $\frac{3}{4}$ Jahr nach dem Erreichen der 532-m-Sohle mit Lösung gefüllt (d. h. Pegel auf 527 m Teufe), nach weiteren $3\frac{1}{2}$ Monaten die Modellkammer F2_511 (d. h. Pegel auf 500 m Teufe, siehe Abbildung 7). Dieser Verlauf ist im hydraulischen Modell der MAW-Kammer näherungsweise implementiert (siehe Kapitel 4.3). Die Randbedingungen für die MAW-Kammer sind die Druckentwicklungen oberhalb der Schweben im Sohlenniveau der Beschickungskammer (490 m Teufe) und unterhalb der Schweben von Abbau 8a/532 an der Firste (515 m Teufe).

Alle Bereiche des hydraulischen Modells der MAW-Kammer sind vor dem Zeitpunkt $t=0$ bis auf die residuale Lösungssättigung „trocken“. Mit dem Ansteigen des Lösungspegels im Baufeld in der Südflanke über 532 m Teufe und dem Anstieg des Lösungsdrucks gelangt zunehmend Lösung in den MAW-Bereich. Durch den Anstieg des Lösungsdrucks wird das Gas (anfänglich hauptsächlich Grubenluft) in der MAW-Kammer zunächst komprimiert, was einen Anstieg des Lösungspegels im Fasskegel zur Folge hat. Die Abfallgebinde geraten dadurch in Kontakt mit Lösung. Je nach Intensität der korrosiven Gasbildung, des Wasserverbrauchs durch Korrosion, des Abflusses von Gas über die Sorelbetonglocke und des Zuflusses von Lösung über die liegende Schweben ergibt sich ein variabler und heterogener Kontakt der Abfallgebinde mit Lösung (vgl. Kapitel 2.3).

Der Lösungsdruck im Grubengebäude erreicht ca. 120 Jahre nach $t=0$ ein Maximum von 8,5 MPa in 500 m Teufe und klingt langfristig auf das hydrostatische Niveau ab. Die Modellrechnungen mit dem Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude D8 zeigen, dass die sehr konservativen Modellannahmen zur Freisetzung von Radionukliden aus den Abfallgebinden den Transport aus der MAW-Kammer hin zur Übertrittsstelle ins Deckgebirge dominieren. Bei der Konzeptualisierung des Modellsystems der MAW-Kammer wurde daher ein besonderes Gewicht auf die Abbildung von Prozessabläufen in der frühen Nachbetriebsphase gelegt (in der Größenordnung von wenigen tausend Jahren nach Eintreten des Notfalls).

3.4 Auswahl relevanter Radionuklide

Die Auswahl der relevanten Radionuklide für die Betrachtungen der Radionuklidfreisetzung aus den Abfallgebinden (Kapitel 5.5) sowie der Löslichkeit und Sorption (Kapitel 5.4) basiert auf der Zusammenstellung der Radionuklidinventare zum Stichtag 01.01.1980 [23] und der daraus abgeleiteten Radiotoxizität, sowie einer Prognose von Inventar (Stoffmengen, -massen und Aktivitäten) und Toxizität zum hier unterstellten Zeitpunkt eines Notfalls zum 01.01.2028. Für die Darstellung der nuklidspezifischen Radiotoxizität (Sv) wurde die Entwicklung der Aktivität (Bq) unter Berücksichtigung der relevanten Zerfallsreihen auf Grundlage der Bateman-Gleichung [49] berechnet und mit Dosiskoeffizienten (Sv/Bq) multipliziert. Als Dosiskoeffizienten wurden die

¹² Dies unterscheidet sich vom Startzeitpunkt des Nahfeldmodells (Strukturmodell D8; Bezugsfalls BF20a), das mit der modellhaften Abbildung die Einleitung der $MgCl_2$ -Lösung gemäß Notfallplanung ab der 725-m-Sohle beginnt [33].

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	


**BUNDESGESELLSCHAFT
FÜR ENDLAGERUNG**

**Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme**

Blatt: 21

effektiven Dosiskoeffizienten für Ingestion bei innerer Strahlenexposition für Einzelpersonen > 17a [15] verwendet.

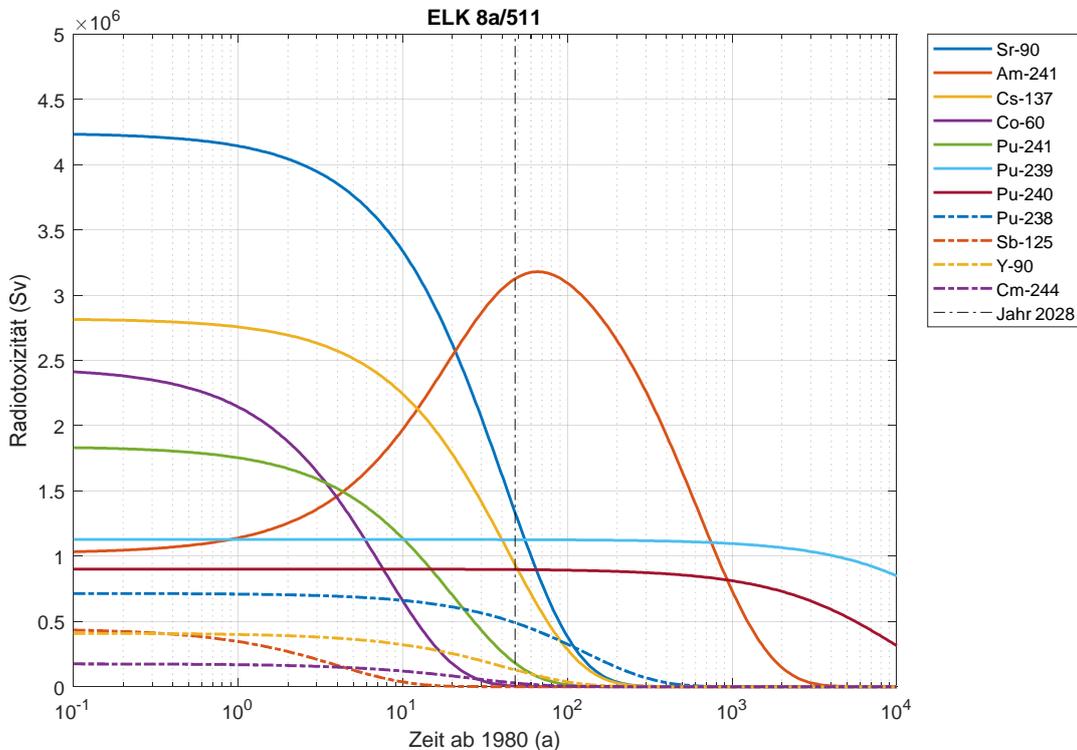


Abbildung 8: Entwicklung der Radiotoxizität des Radionuklidinventars in der MAW-Kammer auf Grundlage der Zusammenstellung der Aktivität in [23] und Dosiskoeffizienten [15]. Der Zeitpunkt 0 bezieht sich auf das Jahr 1980, der angenommene Zeitpunkt eines Notfalls im Jahr 2028 ist als senkrechte gestrichelte Linie markiert.

Abbildung 8 zeigt die prognostizierte Entwicklung der Radiotoxizität in der MAW-Kammer ab 1980. Zu diesem Zeitpunkt wurde die Radiotoxizität von den kurzlebigen Radionukliden Sr-90, Co-60, Pu-241 und Cs-137 dominiert. Die Gesamtradiotoxizität war nach der ELK 7/750 die zweithöchste aller Einlagerungskammern in der Schachanlage Asse II.

Bis zum hier unterstellten Zeitpunkt eines Notfalls im Jahr 2028 hat die Gesamtradiotoxizität der MAW-Kammer um etwa 30% abgenommen und wird durch Am-241 dominiert, das durch β^- -Zerfall aus Pu-241 mit einer Halbwertszeit von 14,4 Jahren aufgebaut wird. Co-60 mit einer Halbwertszeit von 5,3 Jahren ist zu diesem Zeitpunkt fast vollständig zu stabilem Ni-60 zerfallen.

Die für den Austrag aus der MAW-Kammer relevanten Radionuklide sind also Am-241, Cs-137, Pu-240, Pu-239, Pu-241, Pu-238 und Sr-90.

3.5 Modellstrategie und Modellcodes

Die Modellierungsstrategie sieht vor, die im Kapitel 3.1 genannten Prozesse gemäß ihrer Relevanz und gegenseitigen Beeinflussung (stark gekoppelte Prozesse versus weitgehend voneinander unabhängige Prozesse) zu kategorisieren und in unterschiedliche Bewertungssysteme zu integrieren. Im Ergebnis dieser Kategorisierung werden separate Modelle für

- das hydraulische System (Fluidbewegungen),
- das geochemische Milieu,
- die Radionuklidlöslichkeit und –sorption und

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 22

- die Radionuklidfreisetzung aus den Abfallgebinden

erstellt. Die Modellansätze der zugehörigen Prozesse werden in den nachfolgenden Abschnitten beschrieben, die Parametrisierung wird im Kapitel 4 dargestellt.

Das **hydraulische Modell** bildet die Prozesse des 2-Phasenflusses von Lösung und Gas in der MAW-Kammer ab. Dabei liegt der Fokus auf der zeitlichen Entwicklung der Lösungssättigung im Fasskegel, da der Kontakt mit Lösung Grundvoraussetzung für die Mobilisierung aller Radionuklide mit Ausnahme der volatilen Radionuklide ist. Entsprechend den Erläuterungen in Kapitel 3.3 liegt der zeitliche Fokus auf den ersten 1.000 Jahren.

Zusammen mit den Lösungs- und Gasflüssen innerhalb der MAW-Kammer und über die Modellränder ist die Lösungssättigung im Fasskegel entscheidend von der Gasbildung durch Metallkorrosion abhängig. Die anaerobe Metallkorrosion ist dabei durch die Verfügbarkeit von Lösung begrenzt, so dass sich eine direkte Kopplung zwischen der Lösungsverdrängung durch Gasbildung und der Limitierung der Gasbildung durch die Lösungsverfügbarkeit ergibt.

Für die Analyse der dominierenden Transportpfade und der Transportzeit in der MAW-Kammer wird der advektiv-/diffusive Transport mit nicht-reaktiven Tracern berechnet (siehe Kapitel 3.7).

Für die Modellierung der direkten Kopplung aus 2-Phasenfluss, Gasbildung und Stofftransport wird die Software PFLOTRAN, Version 3.0 [44], [62], [63] verwendet. PFLOTRAN ist eine dem Stand der Wissenschaft und Technik entsprechende open-source Software für die Modellierung von Fließprozessen und reaktivem Transport mit Hilfe des Finite-Volumen-Verfahrens. PFLOTRAN löst das System nichtlinearer partieller Differentialgleichungen, welches den Mehrphasen-, Mehrkomponenten- und skalenübergreifenden, reaktiven Fluss und Transport in porösen Materialien beschreibt. Entwickelt und betreut wird PFLOTRAN von einem Konsortium aus Los Alamos National Lab, Oak Ridge National Lab, Pacific Northwest National Lab und Sandia National Labs.

Neben der Verfügbarkeit von Lösung sind sowohl die korrosive Gasbildung als auch die Löslichkeit und Sorption der Radionuklide vom (lokalen) **geochemischen Milieu** der Lösung abhängig (siehe Kapitel 3.1). Das geochemische Milieu und die Degradation der Zementbestandteile der Abfälle bzw. des Sorelbetons in den Zwickelräumen beeinflussen sich wechselseitig in komplexen transportgetriebenen und kinetisch kontrollierten Reaktionsprozessen [34]. Aufgrund der Komplexität der Wechselwirkungen zwischen der Lösung und den unterschiedlichen reaktiven Festphasen (Sorelbeton, Portlandzement, Metalle) und aufgrund der kleinräumigen, aber weitgehend unbekanntem Verteilung der reaktiven Festphasen im Fasskegel (zementierte Matrices, bituminierte Matrices, mit Sorelbeton verfüllte Zwickelräume, mit H₂-Gas bzw. Luft oder MgCl₂-Lösung aufgefüllte Zwickelräume) kann die Entwicklung des geochemischen Milieus an den verschiedenen Lokationen im Fasskegel mit den Methoden der reaktiven Transportmodellierung nicht direkt berechnet werden.

Zur Eingrenzung der zu erwartenden Milieubedingungen werden realistische Werte der milieubestimmenden Stoffinventare und deren Mengenverhältnisse bestimmt. Aus diesen Stoffmengen werden dann die Milieubedingungen mit Hilfe thermodynamischer Gleichgewichtsrechnungen ermittelt (siehe Kapitel 3.8). Als Software hierzu wird PHREEQC, Version 3.6.5 [80] in Kombination mit der thermodynamischen Referenz-Datenbank für saline Systeme THEREDA [6], welche die benötigten Pitzer-Parameter enthält, eingesetzt.

Aus den Ergebnissen des 2-Phasenflusses und des Stofftransports im hydraulischen Modell, einer Neubewertung der **Radionuklidfreisetzung** aus den MAW-Abfallgebinden, Abschätzungen der **Radionuklidlöslichkeit** und einer Abschätzung der zeitlichen Entwicklung des geochemischen

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 23

Milieus in den Abfallgebänden und im Fasskegel werden **orientierende Quellterme** für ausgewählte Radionuklide abgeleitet (siehe Kapitel 6).

3.6 Modellansätze für das hydraulische Modell

3.6.1 Modellansätze zum Fluidtransport

Die Strömung von Gas und Lösung wird in Abhängigkeit der Sättigung der beiden mobilen [63] Phasen entsprechend der 2-Phasen-Formulierung des Massenerhaltungsgesetzes modelliert :

$$\frac{\partial}{\partial t} \psi (s_l \rho_l x_i^l + s_g \rho_g x_i^g) + \nabla \cdot (\mathbf{q}_l \rho_l x_i^l + \mathbf{q}_g \rho_g x_i^g - \psi s_l D_l \rho_l \nabla x_i^l - \psi s_g D_g \rho_g \nabla x_i^g) = Q_i$$

Darin ist ψ die Porosität, $s_{l,g}$ die Lösungs- (l) bzw. Gassättigung (g), $\rho_{l,g}$ die Dichte der jeweiligen Phase, $D_{l,g}$ der Diffusionskoeffizient, $\mathbf{q}_{l,g}$ der Strömungsvektor und $x_i^{l,g}$ der Massenanteil der Komponente i an der jeweiligen Phase. Der Strömungsvektor $\mathbf{q}_{l,g}$ wird mit Hilfe der verallgemeinerten Darcy-Gleichung berechnet:

$$\mathbf{q}_{l,g} = - \frac{k k_{l,g}^r}{\mu_{l,g}} \nabla (p_{l,g} - \rho_{l,g} \mathbf{g} z)$$

Darin ist k die intrinsische oder absolute Permeabilität, unabhängig vom Fluid, $k_{l,g}^r$ die relative Permeabilität der mobilen Phasen, abhängig von deren Sättigung, $\mu_{l,g}$ die dynamische Viskosität, \mathbf{g} die Gravitationsbeschleunigung, $p_{l,g}$ der Druck und z die vertikale Komponente des Ortsvektors.

Klinkenberg- und Knudsen-Effekte (relevant für Gase, wenn die Größenordnung der Poren [Porendurchmesser] der mittleren freien Weglänge der Gasmoleküle entspricht oder diese unterschreitet) werden vernachlässigt. Aufgrund der Bildung von Wasserstoff infolge der Metallkorrosion (Kapitel 3.6.3) werden Wasser und Wasserstoff als konstitutive Komponenten der mobilen Phasen (Gas und Lösung) betrachtet.

Die Zwei-Phasen-Beziehungen setzen Modellvorstellungen zur relativen Permeabilität und zu den Kapillardruck-Sättigungs-Beziehungen voraus. Das hier verwendete van Genuchten-Mualem Modell ist in Anhang A beschrieben.

3.6.2 Äquivalentporöser Ansatz zur Simulation von Strömung und Transport

Eine Methodik zur Modellierung des Transports in geklüfteten Medien mit Matrixdiffusion wurde für den Radionuklidtransport im Deckgebirge entwickelt [1].

Im vorliegenden Modell werden alle Modellkompartimente vereinfacht als äquivalent-poröse Medien behandelt. Im Fasskegel werden dabei Sorelbeton, welcher teilweise in die Zwickelräume eindringt, Portlandzement und Bitumen der Abfallmatrizes, Abfälle sowie Grubenluft, Wasserstoff oder Lösung in den fluiderfüllten gefüllten Zwickelräumen als homogene Materialmelange abgebildet. Diese

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 24

Materialmelange wird durch repräsentative hydraulische Parameter für die Porosität, absolute und relative Permeabilität und Kapillarität charakterisiert.

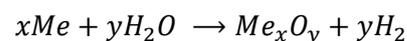
Auswirkungen der Bandbreiten und Ungewissheiten der hydraulischen Parameter werden in Variationsrechnungen betrachtet; das betrifft z. B.

- die Sorelbetonglocke: Rissbildung und deren Vernetzung oder Umkristallisation von Sorelphasen und „Selbstabdichtung“ durch Volumenvergrößerung der Festphasen im Korngefüge,
- den Fasskegel: Kapillarität und integrale Permeabilität der Materialmelange, und
- die Kontur- und Auflockerungszonen: Entwicklung der Porosität und Permeabilität in Folge der Konvergenz.

3.6.3 Modellansatz zur Gasbildung

Ausgehend von den Stoffinventaren (siehe Kapitel 2), gibt es in der MAW-Kammer prinzipiell zwei Prozesse, die zu nennenswerter Gasbildung führen können:

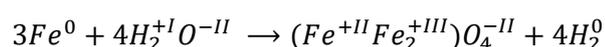
1. Anaerobe Oxidation von Metallen mit Wasserstoffbildung, vereinfacht dargestellt als



2. Mikrobielle Degradation organischer Abfallbestandteile mit Bildung unterschiedlicher Gase, wie z. B. CO₂.

Die Bildung von Gasen aus der Degradation von organischen Abfallbestandteilen findet unter Beteiligung von Mikroorganismen statt, die für die mikrobiellen Stoffwechsel neben den Organika ausreichende Mengen geeigneter Elektronenakzeptoren (Nitrat, ferrisches Eisen, Sulfat etc.) benötigen. Abgesehen von diesen Grundvoraussetzungen kann die mikrobielle Gasbildung auch durch die vorherrschenden geochemischen Milieus eingeschränkt bzw. verhindert werden. So stellen die geringe Wasseraktivität und hohen Konzentrationen an MgCl₂ der im Notfall eingebrachten Lösung sehr restriktive Bedingungen dar, aufgrund derer die mikrobielle Umsetzung der Organika als unwahrscheinlich erachtet wird [2]. Darüber hinaus besteht der überwiegende Teil der Organika in der MAW-Kammer aus Bitumen, das wiederum aus stabilen, langkettigen aliphatischen und aromatischen Kohlenwasserstoffen und Kohlenwasserstoffderivaten besteht, die gegenüber mikrobieller Aktivität sehr stabil sind. Aufgrund dieser widrigen Bedingungen und der stark eingeschränkten Abbaubarkeit der organischen Abfallbestandteile, wird die mikrobielle Gasbildung gegenüber der korrosiven Gasbildung als vernachlässigbar eingestuft und folglich im hydraulischen Modell (wie auch bei den Berechnungen zum geochemischen Milieu und zur Gasbildung, siehe unten) nicht berücksichtigt.

Bei der anaeroben Metallkorrosion dient Wasser als Elektronenakzeptor und wird zu Wasserstoff reduziert. Das Metallinventar in der MAW-Kammer wird durch Eisen dominiert. Für die Korrosion von Eisen bis zum Magnetit als stabiles Endprodukt der Korrosion wird folgende vereinfachte stöchiometrische Reaktion (Oxidationszahlen hochgestellt) angenommen:



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 25

Im komplexen geochemischen Milieu der MAW-Kammer ist die Bildung z. T. meta-stabiler Zwischenprodukte bei der Korrosion, wie z. B. Eisenhydroxide, -oxyhydroxide und -oxychloride, wahrscheinlich. Angesichts der lokalen Unterschiede (siehe unten) und der Ungewissheiten in den lokalen Prozessabläufen ist die Verwendung der o. g. vereinfachten Stöchiometrie für die Berechnung der Metallkorrosion im Rahmen des hydraulischen Modells gerechtfertigt.

Ein wesentlicher Aspekt der Metallkorrosion ist die Abhängigkeit von Wasser als Edukt. Somit ist das Stattfinden der Eisenkorrosion sowohl durch das Inventar an Eisen als auch durch die Verfügbarkeit von Wasser begrenzt. Diese Abhängigkeit wurde in das PFLOTRAN-Modul SRCSINK_SANDBOX integriert. Die Parametrisierung dieser Abhängigkeit ist in Kapitel 4.6 beschrieben.

Aufgrund unterschiedlicher Korrosionseigenschaften wird für die Modellierung das Eisen der Fässer, das Eisen in den bituminierten Abfallmatrizes und das Eisen in den zementierten Abfallmatrizes bezüglich initialem Inventar und effektiver Korrosionsrate unterschieden.

Zur Berechnung der umgesetzten Metallmenge in Mol pro Zeiteinheit sind neben der Korrosionsrate – als flächenbezogene Korrosionsrate in Mikrometern umgesetzter Materialstärke pro Jahr – weitere Annahmen zur initial verfügbaren Menge an Eisen sowie zur Entwicklung der korrodierenden Flächen mit dem Korrosionsfortschritt notwendig. Es wird vereinfachend angenommen, dass sich die korrodierende Oberfläche mit dem Korrosionsfortschritt nicht verändert. Angesichts der Ungewissheiten, die durch die Abhängigkeit der flächennormierten Korrosionsraten vom geochemischen Milieu hervorgerufen werden, wird eine detaillierte Modellierung der Entwicklung der korrodierenden Oberfläche mit dem Korrosionsfortschritt als nicht zielführend angesehen (siehe auch Kapitel 4.6). Für die Ermittlung von Korrosionsraten werden die Abschätzungen zum geochemischen Milieu in Kapitel 5.3 berücksichtigt.

3.6.4 Dichtegetriebener Lösungsaustausch

Dichteunterschiede infolge unterschiedlicher Lösungszusammensetzungen können zum Fluss der Lösungs- und Gasphase durch Konvektion beitragen. Die Lösungsdichte von gewöhnlicher Zementporenlösung beträgt ca. 1,1 g/cm³ und die einer MgCl₂-reichen Lösung ca. 1,3 g/cm³. Diese Dichteunterschiede würden den advektiven Transport der Lösungskomponenten unter vollständig lösungsgesättigten Verhältnissen im Vergleich mit rein diffusivem Transport beschleunigen. Die initialen Dichteunterschiede gleichen sich in Folge der fortschreitenden Degradation des Zements mit der zuströmenden bzw. diffundierenden MgCl₂-reichen Lösung mit der Zeit aus. Der konvektive Transport wäre daher hauptsächlich im frühen Stadium der Zementkorrosion von Bedeutung. Zu frühen Zeiten dominiert jedoch der Einfluss der Sättigung auf die Mobilität der Phasen (definiert als Quotient von relativer Permeabilität und dynamischer Viskosität) den advektiven Transport. Darüber hinaus ist davon auszugehen, dass die Dichte der Porenlösung in den zementierten Abfällen aufgrund der hohen Beladung mit NaNO₃ erheblich grösser ist als die von gewöhnlicher Zementporenlösung und an die der MgCl₂-reichen Lösung heranreicht. Ein möglicher Betrag des konvektiven Lösungsaustauschs spielt daher eine eher untergeordnete Rolle. Dichteunterschiede werden im hydraulischen Modell vernachlässigt.

3.7 Modellansätze für den Stofftransport

Für die Beschreibung des Stofftransports von deren Freisetzung in den Abfällen bis zu den Anschlüssen an das Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude gilt die Advektions-Dispensions-/Diffusionsgleichung:

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 26

$$r_i \frac{\partial c_i}{\partial t} = \nabla \cdot (\bar{D} \nabla) - \nabla \cdot (v c_i) + Q(c_i, x, t)$$

Darin ist $c_i \equiv c_i(x, t)$ die Konzentration des gelösten Stoffes oder der Lösungsspezies am Ort x und zur Zeit t , \bar{D} der Diffusionstensor 2. Stufe, $v \equiv v(x, t)$ das orts- und zeitabhängige Strömungsfeld als Ergebnis des hydraulischen Modells (Kapitel 3.6.1), $r_i \equiv r_i(x)$ der nuklid- und ortsspezifische Retardationsfaktor, der sich aus Gesteinsdichte, transportwirksamer Porosität des Mediums und nuklid- und gesteinsabhängigem linearem Sorptionskoeffizient (K_d -Wert) errechnet (siehe Kapitel 3.9), und $Q(c_i, x, t)$ der nuklidspezifische, orts- und zeitabhängige Quellterm, der sowohl den radioaktiven Zerfall und Aufbau durch Mutternuklide als auch die Freisetzung in den Abfällen beschreibt. Der Diffusionstensor berücksichtigt neben den Porendiffusionskoeffizienten auch Tortuosität, Konstriktivität und Konnektivität.

Zur Analyse der dominierenden Transportpfade und der Transportzeit innerhalb der MAW-Kammer werden stabile Tracer ohne Sorption mit repräsentativem Quellterm modelliert (siehe Kapitel 4.8).

3.8 Modellansätze für das geochemische Milieu

Unter dem Begriff des geochemischen Milieus werden die sich aus der Lösungs-, Gas- und Mineralspeziation ergebenden Charakteristika der Lösung wie pH_m^{13} , Redoxpotential, Ionenstärke, Wasseraktivität und dominierende Lösungsspezies verstanden.

Für die Berechnungen des geochemischen Milieus und der Gasbildung in der MAW-Kammer wird als zutretende Lösung eine MgCl_2 -reiche Lösung nahe der Zusammensetzung des invarianten Punkts 21 (IP21) angenommen¹⁴.

Die Entwicklung des geochemischen Milieus ist einerseits für die Gasbildung (Kapitel 3.6.3) andererseits für die Freisetzung und den Transport der Radionuklide (Kapitel 3.9) von Bedeutung. Aufgrund der Vielzahl komplexer Wechselwirkungen zwischen der Lösung und den unterschiedlichen reaktiven Festphasen (Sorelbeton, Portlandzement, Metalle) und aufgrund der kleinräumigen, aber weitgehend unbekannt räumlichen Verteilung der reaktiven Festphasen im Fasskegel (zementierte Matrix, bituminierte Matrix, mit Sorelbeton verfüllte Zwickelräume, mit Gas und/oder MgCl_2 -Lösung aufgefüllte Zwickelräume) kann die Entwicklung des geochemischen Milieus an den verschiedenen relevanten Lokationen - wie z. B. innerhalb der Fässer, an korrodierenden Metalloberflächen - mit den Methoden der reaktiven Transportmodellierung nicht direkt berechnet werden. Angesichts der Variabilität und Ungewissheiten bei der Milieuabhängigkeit der Korrosionsraten und der Radionuklidfreisetzung ist eine solche Berechnung auch nicht zielführend. Vielmehr ist es sinnvoll, anhand der verfügbaren Stoffmengen reaktiver Materialien und ihrer groben Aufteilung innerhalb der MAW-Kammer die Bandbreiten der Milieubedingungen, deren Extremwerte und zeitliche Entwicklung sich verbal-argumentativ begründen lassen, abzuschätzen.

Wie bereits in Kapitel 3.5 erwähnt, werden die Milieus in Gleichgewichtsrechnungen der reaktiven Inventare mit der Geochemiesoftware PHREEQC und der thermodynamischen Referenz-Datenbank THEREDA [6] berechnet. Die Ergebnisse dieser Berechnungen werden in Kapitel 5.3 diskutiert.

¹³ negativer dekadischer Logarithmus der H^+ -Ionen Molalität

¹⁴ Es kann davon ausgegangen werden, dass die der MAW-Kammer zutretende Lösung auf ihrem Weg durch das Baufeld in der Südflanke und durch den Abbau 8a/532 mit großen Mengen Sorelbeton in Kontakt kommt. Die Lösungszusammensetzung der gemäß Notfallplan veranschlagten technischen MgCl_2 -Lösung wird durch diesen Kontakt nicht bedeutend alteriert.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 27

3.9 Modellansätze für Radionuklidlöslichkeit und -sorption

Für die Abschätzung des Rückhalts von Radionukliden im Fasskegel der MAW-Kammer werden zwei geochemische Prozesse unterschieden:

- Die Einstellung eines Gleichgewichts zwischen gelösten Radionukliden und Radionukliden in Festphase wird definiert durch die Löslichkeit der radionuklidhaltigen Festphase. Löslichkeitskontrollierte Prozesse sind vor allem die Ausfällung einer Radionuklidfestphase oder die Bildung einer festen Lösung (solid solution) mit Einbau von Radionukliden in die Struktur der Mischkristalle.
- Sorptionsreaktionen beeinflussen, neben Auflösungs- und Ausfällungsreaktionen, ebenfalls die Immobilisierung von Radionukliden. Im Unterschied zur löslichkeitskontrollierenden Prozessen werden bei der Sorption die Radionuklidspezies in Lösung an den Oberflächen bestehender Mineralphasen angelagert und somit zurückgehalten.

Beide Prozesse sind stark vom vorliegenden geochemischen Milieu abhängig, die die Radionuklidspezies in Lösung bestimmen. Bei der Sorption ist zusätzlich noch die Stabilität der sorbierenden Oberflächen unter den gegebenen geochemischen Bedingungen zu berücksichtigen.

Im Folgenden werden die Radionuklidlöslichkeit und die Radionuklidsorption im Kontext der MAW-Kammer genauer dargestellt, bevor auf die Methoden der Quantifizierung eingegangen wird. Da bei beiden Prozessen die Speziation des jeweiligen Radionuklids in Lösung eine entscheidende Rolle spielt, werden diese Abhängigkeiten zuerst diskutiert.

3.9.1 Abhängigkeit von der Lösungsspeziation

Die Speziation eines Radionuklids in Lösung bestimmt maßgeblich sowohl dessen Löslichkeit als auch dessen Sorption. Die Speziation eines Radionuklids in Lösung wird vom geochemischen Milieu bestimmt. Dabei spielen insbesondere der pH_m -Wert, sowie die Art und Menge an vorhandenen Mineralsalzen, redoxaktiven Stoffen und komplexierenden Liganden eine Rolle. Grundsätzlich werden diese Größen durch die reaktiven Hauptelemente bestimmt, nicht durch die im Vergleich hierzu nur in Spuren vorhandenen Radionuklide (siehe Kapitel 3.8). D. h., eine Beeinflussung des geochemischen Milieus durch die Radionuklidspeziation kann vernachlässigt werden.

Die Bandbreite der pH_m -Werte, die für die MAW-Kammer und Teilbereiche der angrenzenden Grubenbaue zu berücksichtigen sind, liegen im Bereich $pH_m \approx 8,5$ bzw. 13, wie sie sich durch Kontakt der Lösung mit $Mg(OH)_2$ -basierten („Sorel“) oder mit $Ca(OH)_2$ -basierten („Zement“) Festphasen einstellen können. Die mengenmäßig dominierenden Ionenspezies (Na^+ , Mg^{2+} , K^+ , Ca^{2+} , Cl^- , SO_4^{2-}) liegen aufgrund der hohen Löslichkeit der verfügbaren Minerale bzw. eingebrachten Stoffe in hoher bis sehr hoher Konzentration vor. In den MAW-Abfallgebinden befinden sich weiterhin große Mengen an Nitrat. Diese Lösungshauptkomponenten beeinflussen die Radionuklidspeziation über spezifische Reaktionen mit den Radionukliden (hierzu zählen bspw. die Bildung von Chlorid- bzw. Nitratkomplexen bzw. von Na-, Mg-, K-, Ca-haltigen Radionuklidfestphasen), über Aktivitätseffekte (Ionenstärkeeffekte), oder auch indirekt, indem sie die freie Konzentration an potentiell mit den Radionukliden wechselwirkenden Liganden mitbestimmen.

Manche Radionuklide können innerhalb des Stabilitätsfeldes von Wasser und je nach den vorliegenden Redoxbedingungen in verschiedenen Oxidationsstufen vorliegen. Dies gilt bspw. für die Actinidelemente wie U, Np, Pu, nicht jedoch für die Alkali- bzw. Erdalkalimetalle Cäsium und Strontium. Jede Oxidationsstufe eines Radionuklids weist ein vollständig eigenständiges Löslichkeits- und Sorptionsverhalten auf und muss spezifisch betrachtet werden. Grundsätzlich werden die hohen Oxidationsstufen eines Elements durch oxidierende Bedingungen stabilisiert (wie

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 28

sie sich z. B. durch die Gegenwart von Sauerstoff oder anderer Oxidationsmittel einstellen), die niedrigen durch reduzierende Bedingungen (wie sie sich z. B. bei Anwesenheit von Wasserstoff oder metallischem Eisen bilden können). Neben den wasserintrinsischen Liganden ($\text{H}_2\text{O-OH-O-O}_2\text{-H}_2$) sowie Chlorid, Nitrat und Sulfat, welchen in der MAW-Einlagerungskammer stets eine große Relevanz zukommt, können auch andere komplexierende Liganden die Radionuklidlöslichkeit beeinflussen. Hierzu zählen anorganische und organische Liganden und Komplexbildner wie Carbonat, Carboxylate, Salze der Ethylendiamintetraessigsäure und der Isosaccharinsäure, etc., welche typischerweise eine Erhöhung der Mobilität der Radionuklide bewirken (grundsätzlich ist auch eine Verringerung der Radionuklidmobilität aufgrund der Bildung fester Radionuklid-Organik Phasen denkbar). Bei den Ableitungen in Kapitel 5.4, wird davon ausgegangen und begründet, dass diese Liganden die Radionuklidlöslichkeit und –Sorption in der MAW-Kammer nicht wesentlich beeinflussen.

3.9.2 Löslichkeit

Die Radionuklidlöslichkeit lässt sich als Gleichgewicht zwischen einer löslichkeitskontrollierenden Radionuklidfestphase und der gelösten Radionuklidspezies auffassen. Sie stellt einen Höchstwert der Konzentration (Löslichkeitslimit, Maximalkonzentration) dar. Berechnet wird die Löslichkeit einer Radionuklidspezies als Ionenaktivitätsprodukt der Edukte der Fällungsreaktion im Verhältnis zur Löslichkeitskonstante der löslichkeitsbestimmenden Festphase. Der dekadische Logarithmus dieses Verhältnisses wird als Sättigungsindex bezeichnet.

3.9.3 Sorption

Die Sorption eines Stoffes (Sorptiv) an der Oberfläche eines Sorptionsmittels (Adsorbens) wird durch Adsorptionsisothermen quantifiziert, welche den Gleichgewichtszustand der Sorptionsreaktion bei konstanter Temperatur beschreibt. Das einfachste Modell stellt die lineare Isotherme dar. Diese geht von folgenden Vereinfachungen und Annahmen aus:

1. Die Sorptive sorbieren unabhängig voneinander an der Oberfläche.
2. Die Wechselwirkungsenergie jedes Teilchens mit der Oberfläche ist gleich und unabhängig vom Grad der Belegung.
3. Es tritt keine Sättigung der Oberfläche (Bildung einer vollständigen Monolage) auf.

Das Modell der lineare Sorptionsisotherme wird mit folgender Gleichung beschrieben:

$$q = K_d \cdot C_l$$

Darin ist q die Beladung des Adsorbens (Masse Sorptiv bezogen auf Masse Sorbens), die proportional zur Konzentration des Sorptivs in Lösung, C_l , ist, mit dem Sorptionskoeffizienten K_d als Proportionalitätsfaktor. Lineare Sorptionsisothermen stellen empirische Modelle dar, welche keine Aussagen über die Mechanismen und Einflussgrößen liefern und daher nicht aufgrund von Eigenschaften des Sorbens oder Sorptivs berechnet werden können.

Das Ausmaß der Adsorption eines Stoffes wird stark von der Art und Menge der vorhandenen reaktiven Oberflächen beeinflusst. Die Stabilität der Festphasen, deren Oberflächen sorptionswirksam sind, wird durch das geochemische Milieu bestimmt, welches wiederum von Zusammensetzung und Mengenverhältnissen der reaktiven Kammerinhaltsstoffe (Zement, Sorelbeton, MgCl_2 -Lösung, etc.) abhängig ist. Für die Sorption der Radionuklide sind vor allem $\text{Mg}(\text{OH})_2$ -haltige Baustoffe (z. B. Sorelbeton), zementbasierte Stoffe und Eisenmetalle sowie deren Korrosionsprodukte von Bedeutung.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 29

3.9.4 Methodik der Quantifizierung von Radionuklidlöslichkeit und -sorption

Eine modellbasierte Beschreibung der Radionuklidlöslichkeit ist prinzipiell im Rahmen der chemischen Thermodynamik mittels entsprechender Gleichgewichtskonstanten (z. B. Löslichkeitsprodukte „ $\log K_{sp}$ “, Komplexbildungskonstanten „ $\log \beta_n$ “, Pitzer-Wechselwirkungsparameter) möglich. Für zahlreiche Radionuklide sowie inaktive Elemente des Hintergrundsystems mit Relevanz für die Einlagerungskammern der Schachanlage Asse II sind entsprechende thermodynamische Daten in den etablierten Referenzdatenbanken der OECD NEA (www.oecd-nea.org) bzw. des THEREDA-Projektes [6] zusammengestellt. Inwieweit es möglich ist, für ein ausgewähltes System die Radionuklidlöslichkeiten allein auf Basis der vorliegenden thermodynamischen Datenbanken durchzuführen, hängt von der jeweiligen Datenlage ab. Eine Berechnung von Radionuklidlöslichkeiten für die erwarteten geochemischen Milieus ist derzeit nur in Einzelfällen möglich. Zusätzlich werden gemessene Radionuklidkonzentrationen aus experimentellen Untersuchungen vergleichbarer geochemischer Systeme für die Ableitung der Radionuklidlöslichkeit und -sorption herangezogen. Bei Radionukliden und/oder Systemen, wo die thermodynamischen und experimentellen Daten eine direkte Bewertung der Löslichkeit und Sorption nicht zulassen, wird auf Vergleiche mit chemisch ähnlichen Systemen (Analoge) zurückgegriffen. Bei der Zusammenstellung der Ergebnisse für die MAW-Kammer in Kapitel 5.4 wird die zugrundeliegende Literatur umfassend referenziert.

3.10 Umgang mit Ungewissheiten

Ein detaillierter Umgang mit Ungewissheiten ist nach Stand von W&T ein wesentlicher Teil eines langzeitsicherheitlichen Nachweises. Für den Umgang mit Ungewissheiten im Kontext der Endlagerung radioaktiver Abfälle wurden international Methoden entwickelt (z. B. [72]), die auf die Sicherheitsbetrachtungen für die Schachanlage Asse II übertragen werden können. Demnach müssen alle Ungewissheiten, die in die Sicherheitsbetrachtungen eingehen, identifiziert und bezüglich ihrer Relevanz bewertet werden.

Für die vorliegenden Betrachtungen können die Ungewissheiten, gemäß ihren Ursachen in folgende Kategorien eingeteilt werden:

1. Ungewissheiten bezüglich der aktuellen Situation (in der MAW-Kammer als auch in ihrer Umgebung, im Grubengebäude und den geologischen Strukturen im Umfeld der Schachanlage Asse II)
2. Ungewissheiten bezüglich der möglichen Entwicklungen des Systems (Szenariungewissheiten)
3. Modellungsgewissheiten
 - a) Ungewissheiten bei der Auswahl der abzubildenden Prozesse, der Kopplungen, der mathematischen Prozessgleichungen und ggf. deren numerischen Lösung
 - b) Ungewissheiten bei der Parametrisierung der Modelle (Parameterungewissheiten).

Das den Betrachtungen in diesem Bericht zu Grunde liegende Szenario leitet sich aus den Analysen zur Notfallplanung für den Bezugsfall 20a ab [33]. Dieser Bezugsfall stellt eine repräsentative Systementwicklung für ein wahrscheinliches Szenario beim Eintreten des Notfalls und der plangemäßen Realisierung der Vorsorge- und Notfallmaßnahmen dar. Daher werden Ungewissheiten der aktuellen Situation und Szenariungewissheiten im hydraulischen Modell der MAW-Kammer nicht betrachtet, sofern sie sich nicht in Form von Parameterungewissheiten im Modell ausdrücken lassen.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 30

Modellungsgewissheiten im hydraulischen Modell der MAW-Kammer betreffen vor allem den begrenzten Kenntnisstand über die Gültigkeit der 2-Phasenflussgesetze für die Betrachtung der Strömungsprozesse im Sorelbeton, im Fasskegel und den aufgelockerten Bereichen des umgebenden Salzgesteins und deren Parametrisierung. Die Berücksichtigung des 2-Phasenflusses erfolgt durch phänomenologische Ansätze, welche die Abhängigkeiten der relativen Permeabilität und des Kapillardrucks von der Flüssigkeitssättigung beschreiben (siehe Kapitel 3.6.1). Im Basisfall werden die Abhängigkeiten anhand von bestehenden Literaturdaten und Plausibilitätsüberlegungen abgeschätzt und dann in geeigneter Form mit einem Referenzmodell parametrisiert. Die Ungewissheiten bezüglich der hydraulischen Funktionen werden durch Vergleichsrechnungen mit unterschiedlichen Modellansätzen und durch Überführung in Parameterungewissheiten behandelt.

Im Modell der korrosiven Gasbildung bestehen die größten Ungewissheiten in den flächenbezogenen Raten der Metallkorrosion¹⁵ und dem Inventar an korrodierendem Metall. Diese werden als Parameterungewissheiten betrachtet. Die Ungewissheiten bei der Entwicklung der korrodierenden Oberfläche mit dem Korrosionsfortschritt werden durch die Variationen der flächenbezogenen Korrosionsrate abgedeckt. Die qualitativen Ungewissheiten des geochemischen Milieus beeinflussen die 2-Phasenprozesse im hydraulischen MAW-Modell ebenfalls nur über die flächenbezogenen Raten der Metallkorrosion.

Zusätzliche Ungewissheiten im MAW-Modell bestehen in der Anbindung an das Modell der Restgrube über die Druckverläufe an den Randbedingungen. Diese Druckverläufe inklusive des aufwärts gerichteten hydraulischen Gradienten werden ebenfalls zu Parameterungewissheiten überführt und als solche behandelt.¹⁶

Damit bestehen die wesentlichen Ungewissheiten im hydraulischen Modell der MAW-Kammer in Parameterungewissheiten. Die Quantifizierung dieser Ungewissheiten erfolgt üblicherweise zum einen durch deterministische Variationsrechnungen und zum anderen durch probabilistische Betrachtungen. Probabilistische Betrachtungen werden für das MAW-Modell nicht durchgeführt. Die Gründe dafür sind vor allem:

- Die bestehende Datenlage lässt eine begründete Festlegung von Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen für die Modellparameter derzeit nicht zu. Die Aussagekraft der probabilistischen Analyse wird durch die Verwendung von schlecht definierten Verteilungsfunktionen stark gemindert.
- Die Ungewissheiten im MAW-Modell können nicht immer durch Variationen von Parameterwerten im Rechenmodell berücksichtigt werden, sondern erfordern teilweise eine Anpassung der Prozessmodelle bzw. der Modellgeometrie.
- Für eine probabilistische Analyse wäre die Durchführung von einigen hundert bis tausend Rechenläufen erforderlich. Das zur Analyse verwendete Rechenmodell weist auf Grund seiner Komplexität Rechenzeiten auf, die die mögliche Anzahl Rechenläufe limitieren (~4 Stunden pro Rechenlauf mit 8 parallelen Prozessen).

Anstelle von probabilistischen Sensitivitäts- und Ungewissheitsanalysen wird das Systemverhalten mit deterministischen Variationsrechnungen für einzelne Modellparameter analysiert. Durch die Analyse der Auswirkungen einzelner Parametervariationen auf das Modellergebnis lassen sich Kombinationen von extremen Parametern innerhalb des erwarteten Spektrums identifizieren, die zu extremen Modellergebnissen führen. Diese Ergebnisse von extremen Parameterkombinationen

¹⁵ speziell der Einfluss hoher Nitratkonzentrationen

¹⁶ Konkret werden die Auswirkungen unterschiedlicher Druckgradienten zwischen den Randbedingungen auf die Modellergebnisse in Variationsrechnungen geprüft.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 31

werden als Ränder des Spektrums der zu erwartenden Entwicklungen betrachtet. Die Auswahl der variierten Parameter und die jeweils betrachteten Parameterwerte werden in Kapitel 4.10 dargelegt. Wichtig bei diesem Vorgehen ist, dass dem Basisfall *a priori* keine größere Eintrittswahrscheinlichkeit zugeordnet wird als einer der Variationsrechnungen.

Die orientierenden Abschätzungen der Radionuklidlöslichkeit in Abhängigkeit der geochemischen Milieus (Kapitel 3.9) sind mit relativ großen Ungewissheiten behaftet. Dies liegt einerseits daran, dass die heterogenen, zeitabhängigen Entwicklungen der Milieus innerhalb der Abfallgebinde nur näherungsweise bestimmt werden können. Andererseits sind die Ungewissheiten verbunden mit Übertragungen von Literaturdaten, Ungewissheiten der Experimente, Modellrechnungen, Verwendung von experimentellen Daten für vergleichbare aber nicht gleiche geochemische Verhältnisse. Aus diesen Gründen ist eine quantitative Behandlung der Ungewissheiten hier nicht möglich. Stattdessen werden qualitative Einschätzungen zur Verlässlichkeit der angegebenen Werte auf Grundlage von Experteneinschätzungen diskutiert (siehe Kapitel 5.3).

Große Ungewissheiten bestehen derzeit bei der Menge an Nitrat in den Abfällen, sowie der Aufteilung auf die bituminierten und zementierten Abfallgebinde. Es ist, im Verhältnis zu den LAW-ELK, von sehr hohen Nitratgehalten in den Porenlösungen im Fasskegel auszugehen. Die Auswirkungen der hohen erwarteten Nitratkonzentrationen im Fasskegel auf die Korrosion eisenhaltiger Materialien und die Radionuklidsorption werden in den Kapiteln 4.6.1 respektive 5.4.2 diskutiert.

4 Parametrisierung des hydraulischen Modells

4.1 Modellgeometrie

Die Geometrie des MAW-Modells basiert auf dem räumlichen Konzept zur Modellierung der Fluidbewegungen und des Schadstofftransports (siehe Kapitel 3.2). Die Modellgeometrie entspricht weitgehend dem in Abbildung 6 dargestellten räumlichen Modellkonzept. Sie umfasst die MAW-Kammer und anschließende hydraulischen Wegsamkeiten, wie Auffahrungen und aufgelockerte Gesteinsbereiche (ALZ) in Pfeilern und Schweben:

- Kegel der eingelagerten Abfallgebinde (bezeichnet als Fasskegel),
- mit Sorelbeton verfüllte MAW-Kammer (Notfallmaßnahme SV-511-1),
- liegende Schweben der MAW-Kammer (ALZ zum Abbau 8a/532),
- hangende Schweben der MAW-Kammer (ALZ zur Beschickungskammer),
- aufgelockerte Konturzonen der MAW-Kammer.

Die Verhältnisse der RB-Kammern werden mit zeitabhängigen Randbedingungen abgebildet (siehe Kapitel 4.3). Um Symmetrieeigenschaften zu erhalten, werden die vertikalen Randbedingungen am Übertritt zu den RB-Kammern im Modell als horizontale Randbedingungen an der Unterseite der liegenden Schweben und an der Oberseite der hangenden Schweben abgebildet. Unter Ausnutzung der sich damit ergebenden Symmetrieebenen entlang der vertikalen Quer- und Längsachse der MAW-Kammer wird die Größe der Simulationsdomäne auf ein Viertel reduziert.

Die nachfolgend aufgeführten geometrischen und volumetrischen Daten sind in [13] dokumentiert; alle korrigierten Daten aus dem Risswerk [17] sind als solche gekennzeichnet. Die planimetrierte Grundfläche der Kammer wurde für das Jahr 2009 mit 500 m² angegeben¹⁷, die mittlere Kammerhöhe

¹⁷ Die Seitenlängen der MAW-Kammer 8a/511 werden für das Jahr 2009 mit rund 23 m angegeben.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 32

mit 14 m. Die Ungewissheit wird mit 5% angegeben. In der zukünftigen Betriebsphase (bis zum evtl. Eintreten eines Notfalls) wird sich das Volumen der MAW-Kammer konvergenz-bedingt verringern¹⁸. Zum Modellzeitpunkt t=0 wird daher konvergenz-bedingt vereinfacht eine gleichermaßen reduzierte Länge und Breite der MAW-Kammer von jeweils 19 m abgeschätzt.

Das gegenwärtig noch unverfüllte Volumen in der MAW-Kammer soll zum Zeitpunkt t=0 mit Sorelbeton A1 verfüllt sein – gemäß Notfallmaßnahme SV-511-1. Der geplante Verfüllgrad ist bisher nicht genannt. Es wird davon ausgegangen, dass die MAW-Kammer bestmöglich verfüllt wird – jedoch ohne die „offenen“ Konturzonen gezielt nach zu injizieren¹⁹. Der Sorelbeton wird aufgrund des hohen Fließvermögens und der hohen Topfzeit in die Zwickelräume zwischen den Abfallgebänden vordringen. Der Verfüllgrad der Zwickel wird auf 50% geschätzt.

Das Gesamtvolumen des Fasskegels wurde auf der Basis eines idealen Kegels berechnet, der einen Radius von 8,25 m und eine Höhe von 6,5 m aufweist. Damit ergibt sich ein Kegel mit einem Volumen von 463 m³. Das Gebindebruttovolumen im Fasskegel (ohne Zwickel) wurde mit 325 m³ angegeben. Bei Abzug des Gebindebruttovolumens verbleibt ein Restvolumen von 138 m³, das den Zwickelraum zwischen den Gebänden repräsentiert. Das Porenvolumen in allen Gebänden wurde in [13] auf 8 m³ geschätzt.

Im MAW-Modell wird der Fasskegel als eine Melange aus Metallfässern, Abfallmatrizes (Zement, Bitumen), Abfall, Sorelbeton (in den Zwickeln) und Fluiden modelliert (siehe Kapitel 3.2). Unterstellt man die o. g. Referenzwerte, ergibt sich für die Melange ein Volumen von 463 m³ mit einem Porenvolumen von 82 m³, was einer integralen Porosität von 18% entspricht.

Die Auflockerungszonen in den Pfeilern (Konturzonen) und Schweben werden im MAW-Modell ebenfalls mittels repräsentativer Modellparameter abgebildet; lokale Risse bzw. Rissssysteme werden somit nicht separat ausgewiesen (siehe Kapitel 3.6.2).

Der liegenden Schweben der MAW-Kammer zum Abbau 8a/532 werden als Referenzwerte eine Mächtigkeit von 6 m zugewiesen. Die mittlere Mächtigkeit der hangenden Schweben der MAW-Kammer zur Beschickungskammer beträgt 5 m. Im MAW-Modell werden die hangende und liegende Schweben so abgebildet, dass sie die MAW-Kammer inklusive der lateralen Kontur- und Auflockerungszonen vollständig überdecken bzw. unterfüttern.

Für die Konturzonen der MAW-Kammer werden vereinfacht in allen Pfeilern 0,5 m mächtige ALZ über die gesamte Kammerhöhe angenommen. Die aufgelockerten Konturzonen in der Sohle und in der Firste werden über die hochdurchlässigen Schweben hinreichend berücksichtigt. In Tabelle 1 sind die geometrischen Basisdaten in Gesamtheit aufgelistet.

¹⁸ Für 2018 wurde ein unverfülltes Volumen von 5038 m³ prognostiziert [20].

¹⁹ Injektionsmaßnahmen sind in der Notfallplanung [14] und in den speziellen Ausführungen für die MAW-Kammer [18] nicht genannt.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 33

Tabelle 1: Geometrische Basisdaten für die Modellkompartimente

Kompartimentname	Volumen [m ³]	Geometrie [m] / [m ²]	Höhe / (Mächtigkeit) [m]	Ungewissheit [%]
Melange Fasskegel (MAW-Gebinde)	463	8,25 m (Radius)	6,5	+/- 15
Sorelbetonglocke (Maßnahme SV-511-1)	4900	-	14	+/- 5
Schwebe 8a/511 (ALZ hangende Schwebe)	nicht relevant	196 m ² (Querschnitt)	5 (Mächtigkeit)	+ 10 / - 50
Sohle 8a/511 (ALZ liegende Schwebe)		361 m ² (Querschnitt)	6 (Mächtigkeit)	+ 10 / - 50
aufgelockerte Konturzonen Pfeiler		12 m x 0,5 m	14	+/- 100

4.2 Räumliche Diskretisierung

Für die numerische Lösung des Systems aus gekoppelten nichtlinearen partiellen Differentialgleichungen, das die Modellansätze in Kapitel 3.6 und 3.7 beschreibt, wird die räumliche Simulationsdomäne als Umhüllende der Modellkompartimente definiert. Für die räumliche Diskretisierung wird die Modelldomäne in 20.000 würfelförmige Volumenelemente mit einer Kantenlänge von 50 cm unterteilt.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	


**BUNDESGESELLSCHAFT
FÜR ENDLAGERUNG**

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
 und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

Blatt: 34

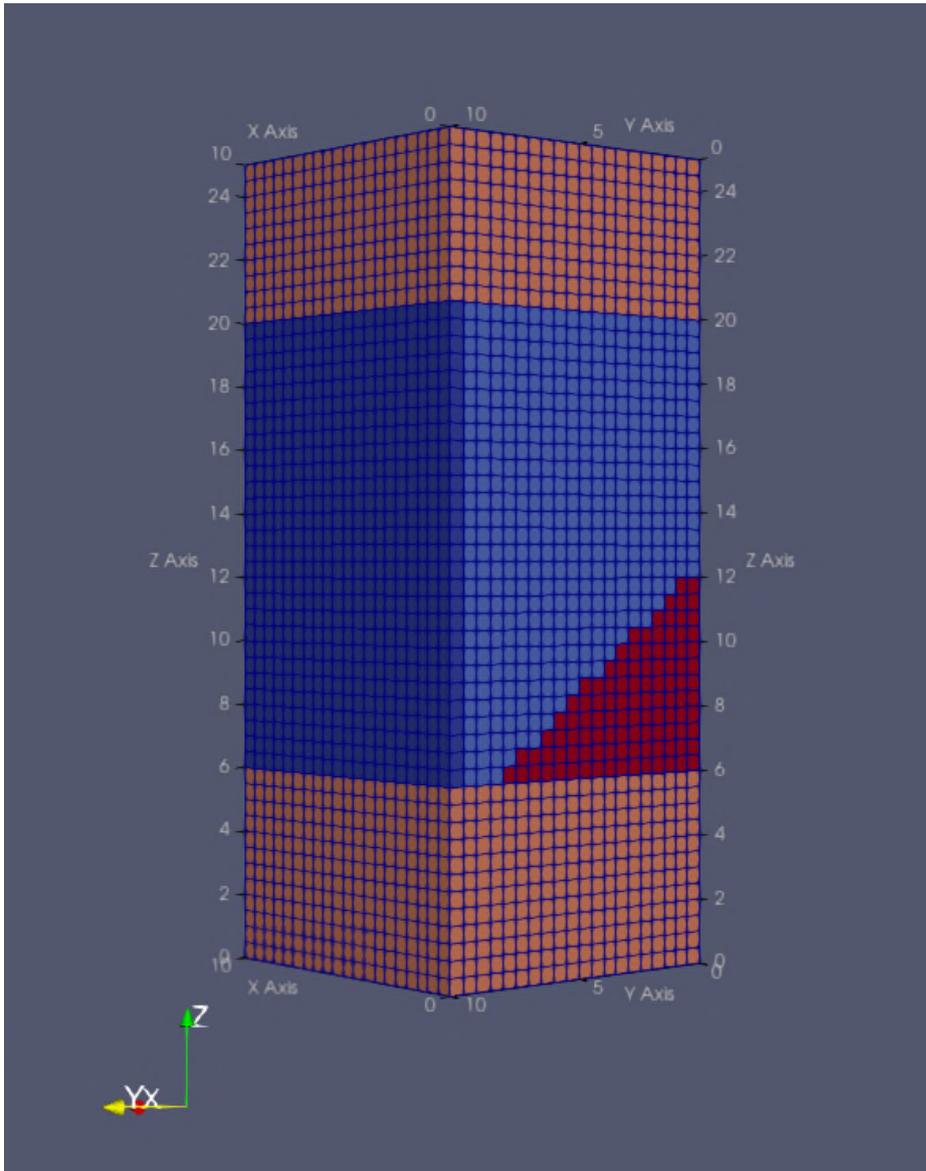


Abbildung 9: Modelldomäne, Modellkompartimente und räumliche Diskretisierung (Konturzone: dunkelblau, Sorelbetonglocke: hellblau, Fasskegel: dunkelrot, liegende und hangende Schweben: hellrot).

Die Modelldomäne mit den Modellkompartimenten und der räumlichen Diskretisierung ist in Abbildung 9 dargestellt. Der Fasskegel (in rot) ist als Kegel mit einer kreisrunden Grundfläche abgebildet. Dagegen wird die MAW-Kammer mit einer quadratischen Grundfläche angenähert. Unter Ausnutzung der Symmetrieeigenschaften, wird nur ein Viertel der tatsächlichen MAW-Kammer im Modell gerechnet.

4.3 Randbedingungen

Für das MAW-Modell werden zeitlich veränderliche Druckrandbedingungen an der Oberseite und Unterseite der Modelldomäne gemäß Abbildung 10 angesetzt. Als Modellzeit $t=0$ ist der Beginn des Lösungszutritts in die liegende Schweben definiert (siehe Kapitel 3.3). Die Fluiddrücke werden an diskreten Stützstellen bei 0, 15, 150 und 1.000 Jahren vorgegeben; zwischen diesen Stützstellen wird linear interpoliert (die Zeitachse in Abbildung 10 hat einen logarithmischen Maßstab). Damit ergibt sich eine vereinfachte jedoch weitgehend übereinstimmende Fluiddruckentwicklung im Vergleich mit dem Bezugsfall BF20a [33]. Die Differenz zwischen dem Fluiddruck am oberen und unteren Modellrand ergibt sich aus der hydrostatischen Druckdifferenz und der hydrodynamischen

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	


**BUNDESGESELLSCHAFT
FÜR ENDLAGERUNG**

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme	Blatt: 35
--	-----------

Druckdifferenz von 75 kPa (Abschätzung siehe Anhang C). Die Modellrechnungen werden in 2 Phasen durchgeführt, um den Wechsel von gas- zu lösungsgesättigten Bedingungen am oberen Modellrand nach 0,5 Jahren nachzubilden.

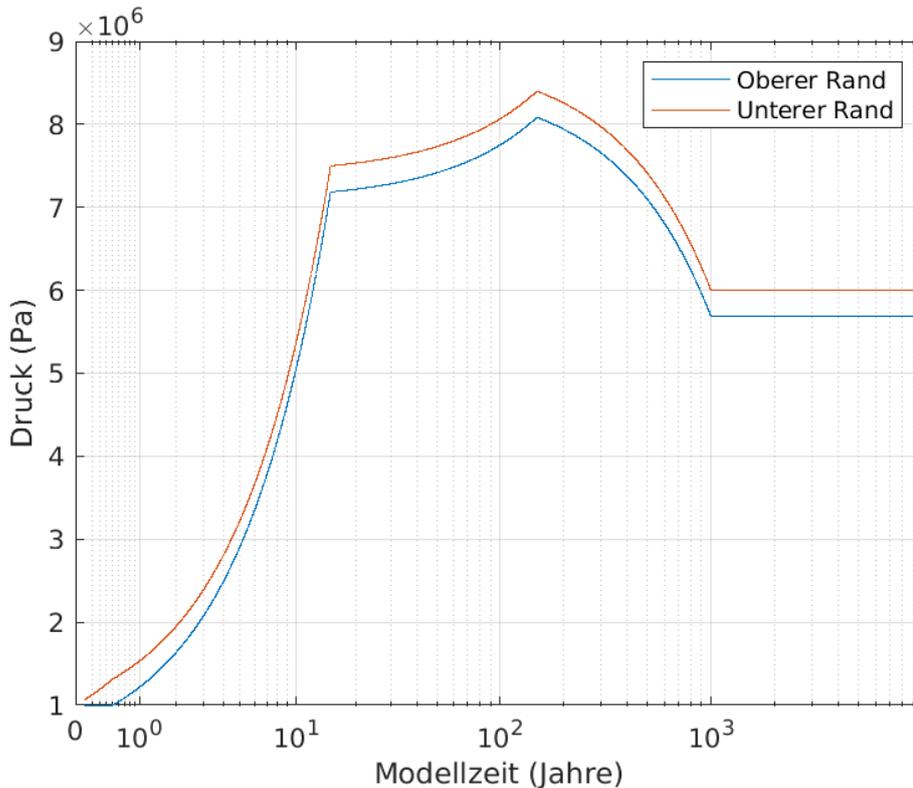


Abbildung 10: Zeitlich veränderliche Druckrandbedingungen des MAW-Modells in 490 m Teufe (Oberer Rand) und 532 m Teufe (Unterer Rand).

Der Einfluss unterschiedlicher hydrodynamischer Druckgradienten auf das Modellergebnis wird in der Betrachtung der Ungewissheiten analysiert.

4.4 Anfangsbedingungen

In Übereinstimmung mit den Druckrandbedingungen (Kapitel 4.3) beträgt der Gasdruck zum Zeitpunkt $t=0$ 1 MPa – entsprechend dem aufgeprägten pneumatischen Stützdruck gemäß Notfallplanung [14]. Zu diesem Zeitpunkt sind die Porenräume im Versatz, aufgelockertem Gestein und Sorelbeton größtenteils luftefüllt. Die initiale Lösungssättigung im Basisfall wird daher in der gesamten Simulationsdomäne mit 10% angesetzt.

4.5 Parametrisierung der hydraulischen Eigenschaften

4.5.1 Porosität und Permeabilität

Die Werte der Porosität und Permeabilität in den differenzierten Modellkompartimenten sind für den Basisfall in Tabelle 3 aufgeführt. Eine ausführliche Diskussion und Begründung dieser Werte liefert Anhang B.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 36

Tabelle 2: Porosität und Permeabilität der Modellkompartimente für den Basisfall

Modellkompartimente	Effektive Porosität [-]	Absolute Permeabilität [m ²]
Fasskegel (MAW-Gebinde, verfüllte und unverfüllte Zwickelzwischenräume)	0,18	1·10 ⁻¹⁵
Sorelbetonglocke (SV-511-1)	0,065	5·10 ⁻¹⁹
Schwebe 8a/511 (ALZ hangende Schwebe)	0,15	1·10 ⁻¹⁴
Sohle 8a/511 (ALZ liegende Schwebe)	0,15	Horizontal: 1·10 ⁻¹⁴ Vertikal: 1·10 ⁻¹⁵
aufgelockerte Konturzonen	0,05	Horizontal: 1·10 ⁻¹⁶ Vertikal: 1·10 ⁻¹⁵

4.5.2 Materialparameter 2-Phasenfluss

Im Unterschied zur Porosität und Permeabilität werden bei den relativen Permeabilitäts- und Kapillardruck-Sättigungsbeziehungen nur Sorelbeton und übrige Materialien unterschieden. Auf die großen Ungewissheiten bei den Materialparametern für den 2-Phasenfluss wurde bereits in Kapitel 3.10 hingewiesen.

Im Sorelbeton sind die Parameter so gewählt, dass sie eine Porengrößenverteilung mit Modalwert im Bereich von Mikroporen, die erhebliche Kapillarkräfte erzeugen, näherungsweise repräsentieren. Bei den übrigen Materialien (geklüftetes Salzgestein und Materialmelange im Fasskegel) ist es plausibel, von der Dominanz großer Hohlräume bzw. Klüfte auszugehen. Entsprechend spiegelt die geschätzte Parametrisierung dieser Bereiche eine geringe Kapillarwirkung wider.

Tabelle 3 fasst die Parametrisierung der ungesättigten hydraulischen Charakteristika für das van Genuchten/Mualem Modell (Kapitel 3.6.1) für den Basisfall zusammen. Abbildung 11 stellt die 2-Phasencharakteristika graphisch dar.

Tabelle 3: Hydraulische Materialcharakteristika für den Basisfall

Parameter	Sorelbeton	Übrige Materialien
Residuale Lösungssättigung s_{rl} der Kapillardruck-Sättigungsbeziehung [-]	0,0	0,0
Residuale Lösungssättigung s_{rl} der relativen Lösungspermeabilitäts-Sättigungsbeziehung [-]	0,1	0,0
Residuale Lösungssättigung s_{rl} der relativen Gaspermeabilitäts-Sättigungsbeziehung [-]	0,0	0,0
Residuale Gassättigung s_{rg} der relativen Gaspermeabilitäts-Sättigungsbeziehung [-]	0,05	0,01
Parameter m [-]	0,333	0,6
Parameter $\alpha = 1/p_c^0$ [1/Pa]	4·10 ⁻⁶	1·10 ⁻³
Maximaler Kapillardruck [Pa]	1·10 ¹⁰	1·10 ¹⁰

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	


**BUNDEGESELLSCHAFT
FÜR ENDLAGERUNG**

**Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme**

Blatt: 37

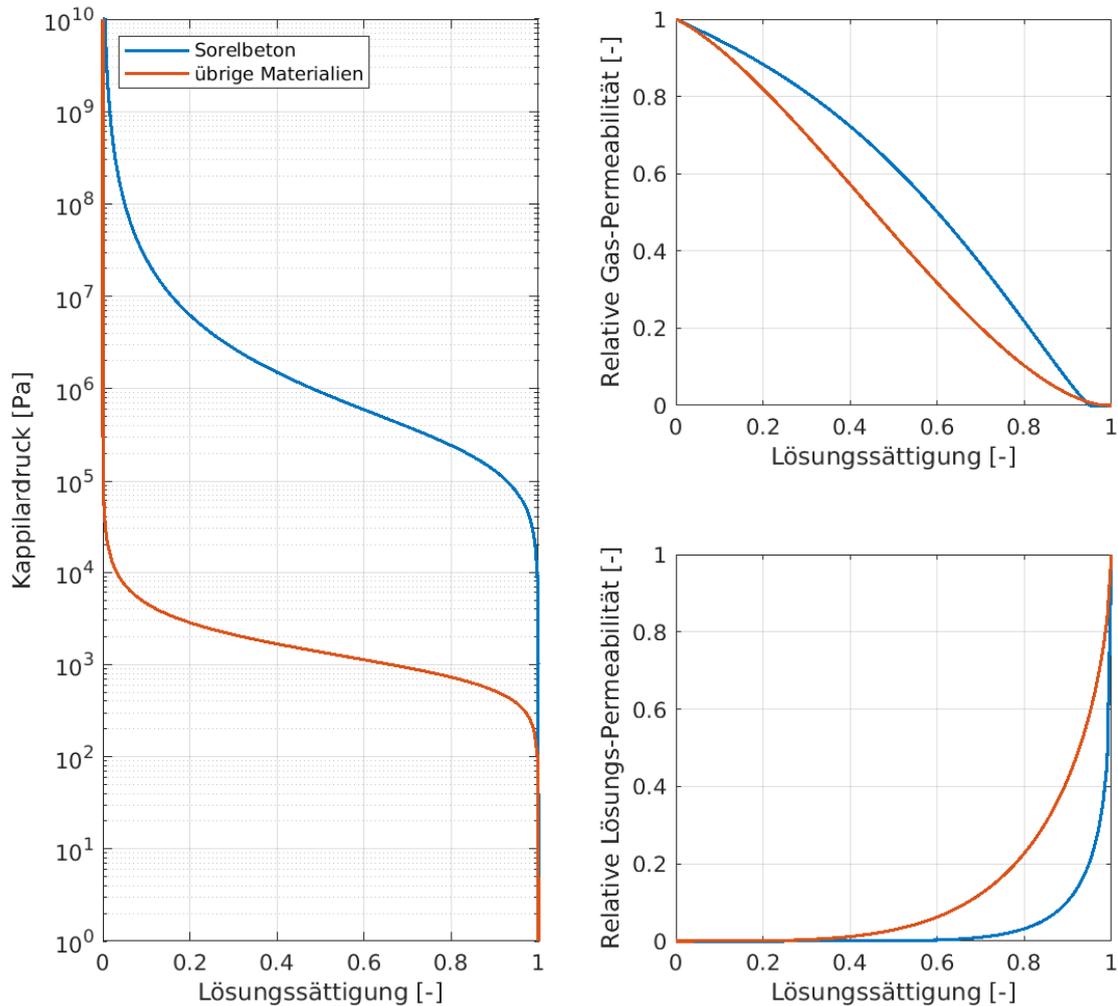


Abbildung 11: Van Genuchten – Mualem Modell für Kapillardruck-Sättigungsbeziehung und für die relativen Permeabilitäts-Sättigungsbeziehungen für Gas und Lösung.

4.6 Parametrisierung der Eisenkorrosion

4.6.1 Einfluss hoher Nitratkonzentrationen auf die Korrosion eisenhaltiger Materialien

Der Einfluss von Nitrat auf die Korrosion von eisenhaltigen Materialien in chloridhaltiger Lösung ist stark von den geochemischen Eigenschaften abhängig. Von großer Bedeutung ist die Zusammensetzung des eisenhaltigen Materials, die Konzentration an NO_3^- und Cl^- , der pH_m -Wert und die Temperatur. Im Allgemeinen kann davon ausgegangen werden, dass der Korrosionsprozess durch die Anwesenheit von Nitrat verlangsamt wird. Dieser Effekt wird wahrscheinlich durch eine kompetitive Adsorption und Verdrängung von oberflächengebundenen Cl^- gegen NO_3^- verursacht, da beide Anionen eine vergleichbare Elektromobilität aufweisen [102][102]. Während Cl^- die Korrosion begünstigt, zeigt NO_3^- einen passivierenden, oder zumindest einen die Korrosion nicht-stimulierenden Effekt. Ein passivierender, die Korrosion unterdrückender Effekt von NaNO_3 auf die Bildung und Ausbreitung von Lochfraßkorrosion von rostfreiem Stahl in NaCl -Lösungen wurde von Schwenk beobachtet [93]. Auch hier wurde dieser Effekt auf die Verdrängung von Chloridionen durch Nitrationen aus den sich bildenden Korrosionslöchern zurückgeführt, wodurch eine Ausweitung der initialen Korrosionslöcher verhindert wird. Diese Interpretation wurde unterstützt durch die

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 38

Beobachtung, dass der passivierende Effekt stärker ausgeprägt ist mit steigendem Verhältnis von Nitrat zu Chlorid. Jedoch ist nach wie vor nicht vollständig verstanden, warum Nitrat einen passivierenden Effekt oder zumindest einen nicht-stimulierenden Effekt aufweist. Z. B. müsste SO_4^{2-} , basierend auf seiner Größe, Leitfähigkeit und Diffusionskoeffizienten, einen ähnlichen passivierenden Effekt aufweisen, falls kompetitive Adsorption der einzige Mechanismus wäre. Jedoch zeigt NO_3^- einen deutlich stärkeren passivierenden Effekt als SO_4^{2-} [27].

Es wurden diverse Modelle entwickelt, welche versuchen, den passivierenden Effekt von NO_3^- zu erklären. Mögliche Erklärungen sind eine bessere Selbstheilung des eisenhaltigen Materials durch die Bildung einer passivierenden Oxidschicht, Bildung von n-Typ-Halbleiterschichten auf der Eisenoberfläche und Erhöhung des Korrosionspotentials, oder eine Unterdrückung der Keimbildung und Vermehrung von metastabilen, initialen Korrosionslöchern durch eine schnelle Repassivierung der Metalloberfläche [101]. Die meisten dieser Prozesse sind jedoch stark vom vorhandenen elektrochemischen Potential und vom $\text{NO}_3^-/\text{Cl}^-$ -Verhältnis abhängig. So kann z. B. ein niedriges elektrochemisches Potential die Bildung von $\text{Fe}^{2+}/\text{NO}_3^-$ -Komplexen in der wässrigen Phase begünstigen, wodurch zum einen die Auflösung der Oxidschicht begünstigt wird und zum anderen eine Sorption des NO_3^- an der Oberfläche behindert wird. Hierdurch kann sich der passivierende Effekt von NO_3^- in einen aktivierenden Effekt umkehren [90], [39]. Ein weiterer potentieller Effekt ist, dass NO_3^- leicht durch Fe^0 reduziert werden kann, wodurch die Oxidation der eisenhaltigen Phase begünstigt wird [4]. Da bei der Reduktion von NO_3^- allerdings immer Protonen verbraucht werden, ist dieser Prozess primär in saurer Lösung von Bedeutung. Ein weiterer wichtiger Parameter ist die Zusammensetzung der eisenhaltigen Phase. So konnte gezeigt werden, dass für rostfreien Stahl, welcher primär aus Fe, Cr und Ni besteht, insbesondere der Anteil an Cr bestimmt, welchen Einfluss NO_3^- auf die Korrosion zeigt [10].

Bezüglich der Korrosion von eisenhaltigen Materialien kann NO_3^- als *gefährlicher Inhibitor* („dangerous Inhibitor“) beschrieben werden. Dies bedeutet, dass man in neutralen und alkalischen NaCl-haltigen Milieus im Allgemeinen von einem passivierenden, die Korrosion von eisenhaltigen Materialien behindernden Effekt von NO_3^- ausgehen kann. Es kann sich allerdings auch ein aktivierender Effekt einstellen. Welcher Effekt sich schlussendlich einstellt, hängt stark von diversen Systemparametern wie $\text{NO}_3^-/\text{Cl}^-$ -Verhältnis, dem elektrochemischen Potential, der Zusammensetzung der eisenhaltigen Phase und der Temperatur ab. Eine Abschätzung des Einflusses von Nitrat auf die Korrosionsprozesse, welche sich in der MAW-Kammer abspielen, ist daher schwierig und erfordert eine Kenntnis der oben beschriebenen Parameter.

4.6.2 Abbildung der Eisenkorrosion im Modell

Für die Parametrisierung der Eisenkorrosion wird die Eisenmenge der Fässer bezogen auf das Volumen des Fasskegels (siehe Tabelle 1) aus der Anzahl zylindrischer Metallfässer (1301) mit einer geschätzten Masse an Eisen je Abfallgebinde von 16,9 kg zu $0,85 \text{ kmol/m}^3$ berechnet. Die volumenbezogene Korrosionsrate wird zusammen mit der Dichte (7860 kg/m^3) und der Molmasse von Eisen ($55,847 \text{ kmol/kg}$) aus der flächenbezogenen Korrosionsrate ($4 \text{ } \mu\text{m/a}$) und der volumenbezogenen korrodierenden Oberfläche²⁰ ($6,065 \text{ m}^2/\text{m}^3$) zu $1,08 \cdot 10^{-10} \text{ (kmol/s/m}^3)$ berechnet. Die flächenbezogene Korrosionsrate entspricht einem Schätzwert für hoch-salinare MgCl_2 -Lösungen bei moderat-alkalischem pH_m .

Die restliche Eisenmenge (gesamte Eisenmenge in der MAW-ELK: $7,06 \cdot 10^6 \text{ Mol}$) wird entsprechend der Mengen an zementierten und bituminierten Abfällen zu 2/3 auf die zementierten und zu 1/3 auf die bituminierten Abfälle aufgeteilt. Die flächenbezogene Korrosionsrate des Eisens in den zementierten Abfällen wird für die hoch-alkalische Zementporenlösung auf $0,1 \text{ } \mu\text{m/a}$ geschätzt. Für

²⁰ Gesamte korrodierende Oberfläche im Fasskegel im Verhältnis zum Volumen des Fasskegels

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 39

die Schätzung der reaktiven Oberfläche wird angenommen, dass das Eisen in Form von 5 cm langen zylindrischen Stäben mit einem Radius von 1 cm vorliegt. Wie beim Eisen der Fässer wird angenommen, dass sich die reaktive Oberfläche nicht mit dem Korrosionsfortschritt ändert. Für das Eisen in den bituminierten Abfällen wird eine 10 Mal kleinere flächenbezogene Korrosionsrate als für die zementierten Abfälle angesetzt.

Wie in Kapitel 3.6.3 bereits erwähnt, kann die Entwicklung der korrodierenden Oberfläche mit dem Korrosionsfortschritt nicht zuverlässig vorhergesagt werden, sodass diese schlussendlich nur durch Variationen der Korrosionsraten berücksichtigt werden können (siehe Kapitel 4.10). Gleiches gilt für den im vorgängigen Kapitel 4.6.1 beschriebenen Einfluss hoher Nitratkonzentrationen.

Im Unterschied zu den langfristigen Entwicklungen der korrodierenden Oberflächen ist es jedoch naheliegend, dass die korrodierende Oberfläche der Fässer initial an den Fassaußenseiten durch die Lackierung reduziert ist. Daher wird die volumenbezogene Korrosionsrate der Fässer anfangs um den Faktor 0,1 reduziert. Dieser Faktor wird linear mit der Reduktion des aktuellen Eiseninventars erhöht, sodass nach der Korrosion von 10% der initialen Eisenmenge der Faktor 1,0 beträgt und die Außenhülle der Fässer als vollständig korrosionswirksam modelliert wird.

Zur Abbildung der Abhängigkeit der Eisenkorrosion von der Verfügbarkeit von Lösung wird die volumenbezogene Korrosionsrate zusätzlich im Bereich der lokalen Lösungssättigungen von 0,3 bis 0,1 linear reduziert, sodass die Korrosionsrate bei Lösungssättigungen kleiner 0,1 vollständig zum Erliegen kommen, während sie bei Lösungssättigungen grösser 0,3 nicht durch die Lösungssättigung eingeschränkt ist. Die Reduktion der Korrosionsrate wird mit der Vorstellung begründet, dass die Metalloberflächen bei niedrigeren Lösungssättigungen nicht mehr vollständig mit Lösung benetzt ist. Die konkreten Werte für Ober- und Untergrenze der Reduktion der Metallkorrosion sind Schätzwerte, die sich in Testrechnungen im Rahmen plausibler Bandbreiten als insensitiv erwiesen haben.

4.7 Parametrisierung Gas- und Lösungseigenschaften

Als dem MAW-Bereich zutretende Lösung wird von $MgCl_2$ -reicher Lösung mit einer Zusammensetzung nahe dem invarianten Punkt 21 des hexären Systems der ozeanischen Salze ausgegangen (siehe Kapitel 3.8). Der Lösung im hydraulischen Modell wird daher eine Dichte von 1.285 kg/m^3 und einer dynamischen Viskosität von $6 \cdot 10^{-3} \text{ Pa s}$ zugewiesen²¹. Der Gasphase wird eine dynamische Viskosität von $9 \cdot 10^{-6} \text{ Pa s}$, entsprechend der dominierenden Gaskomponente Wasserstoff, zugewiesen. Für den Wasserstoff selbst wird eine dimensionslose Henry-Konstante von $1 \cdot 10^{-10}$ verwendet.

Das geochemische Milieu spielt für die Modellierung des 2-Phasenflusses – abgesehen von der Entwicklung von Lösungseigenschaften wie Dichte und Viskosität (siehe Kapitel 4.9) – hauptsächlich eine Rolle für die Raten der korrosiven Gasbildung²² (siehe Kapitel 4.6). Eine detaillierte Betrachtung des geochemischen Milieus spielt jedoch eine herausragende Bedeutung für die Freisetzung von Radionukliden aus den zementierten und bituminierten Abfallmatrizes sowie deren Mobilität. Ergebnisse von Modellrechnungen hierzu werden in Kapitel 5.3 dargestellt.

4.8 Parametrisierung des Transports

Für die Modellierung des Transports von nicht-reaktiven, konservativen Tracern aus dem Fasskegel in die an die MAW-Kammer angrenzenden Kammern der Abbaureihe 8 wird ein isotroper homogener

²¹ In geringer Abweichung zum Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude (dort 1311 kg/m^3 , $8 \cdot 10^{-3} \text{ Pa s}$). Die Parameter der Nahfeldmodelle wurde in einer Variationsrechnung berücksichtigt.

²² Die Bedeutung der mikrobiellen Gasbildung wird bei den zu erwartenden geochemischen Bedingungen als nachrangig eingestuft (s. 3.1).

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 40

Diffusionskoeffizient in Lösung von $1 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ verwendet. Es wird ein Tracer mit konstanter Konzentration (1 mol/L) innerhalb des Fasskegels zur Abbildung löslichkeitsbegrenzter Radionuklide (Tracer A) und ein weiterer Tracer mit instantaner Freisetzung (1 mol/L) und ohne Löslichkeitsbegrenzung zur Abbildung inventarbegrenzter Radionuklide (Tracer B) simuliert.

An den Modellrändern werden konstante Konzentrationen nahe Null ($1 \cdot 10^{-10} \text{ mol/L}$) als Dirichlet-Bedingungen vorgegeben.

4.9 Zeitliche Entwicklungen der Modellparameter

Zeitliche Änderungen von Lösungs- (z. B. Dichte und Viskosität) und Materialeigenschaften (z. B. Porosität und Permeabilität) als Folge der Mineralumbildung (z. B. Zementkorrosion) und der Konvergenz der Auflockerungszonen werden zu Gunsten der Einfachheit und der Nachvollziehbarkeit der Parametrisierung im MAW-Modell nicht berücksichtigt, sondern deren Auswirkungen werden mit Hilfe von Variationsrechnungen analysiert. Auswirkungen von sich im Verlauf der Zeit ausbildender Parameterheterogenitäten können allerdings so nicht betrachtet werden.

4.10 Variationsrechnungen

In den Variationsrechnungen werden zur Betrachtung der Parameterungewissheiten Modellrechnungen mit gegenüber dem Basisfall veränderten Eigenschaften durchgeführt und die Ergebnisse verglichen. Zum Teil werden dabei nicht nur einzelne Parameterwerte variiert, sondern auch weitreichendere Modelleigenschaften, wie z. B. die Modellgeometrie, Randbedingungen, Sättigungs-Kapillardruckbeziehung sowie Kombinationen von Parametern. Die Parametervariationen erfassen auch Ungewissheiten des geochemischen Milieus bezüglich dessen Auswirkungen auf Metallkorrosion, Gasbildung und 2-Phasenfluss. Da die Parameterungewissheiten durch Bandbreiten ausgedrückt werden, innerhalb derer unterschiedliche Eintrittswahrscheinlichkeiten nicht weiter differenziert werden²³, ist es ausreichend, die Extremwerte der Bandbreiten zu untersuchen. Mit dem aus der Modellierung gewonnenen Systemverständnis können die möglichen Modellausgänge mit Relevanz für die Gasbildung und Radionuklidfreisetzung durch einen limitierten Satz an Variationsrechnungen abgebildet werden. Tabelle 4 gibt eine Übersicht über die durchgeführten Variationsrechnungen.

²³ Gleichförmige Eintrittswahrscheinlichkeit innerhalb der Bandbreiten.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

Blatt: 41

Tabelle 4: Variationsrechnungen

Nummer	Beschreibung
(1)	Basisfall
(2)	Korrosion von Eisen nur der Fässer, aber keine Korrosion von Eisen, das sich nicht in den zementierten und bituminierten Abfallmatrizes befindet
(3)	Korrosion von Eisen der Fässer und Korrosion von Eisen in der zementierten Abfallmatrix, aber keine Korrosion von Eisen in der bituminierten Abfallmatrix
(4)	Erhöhung der Korrosionsraten um Faktor 10
(5)	Verringerung der Korrosionsraten um Faktor 10
(6)	Erhöhung der Eisenmenge der Fässer um Faktor 2 bei entsprechender Verringerung der Eisenmenge in den zementierten und bituminierten Abfallmatrizes
(7)	Erhöhung der Korrosionsrate der Fässer um Faktor 10 und Erhöhung der Permeabilität der Sorelbetonglocke um Faktor 20 auf 10^{-17} m^2
(8)	Erhöhung der Korrosionsraten um Faktor 10 und Erhöhung der Eisenmenge der Fässer um Faktor 2 bei entsprechender Verringerung der Eisenmenge in den zementierten und bituminierten Abfallmatrizes
(9)	Erhöhung der Permeabilität der Sorelbetonglocke um Faktor 20 auf 10^{-17} m^2
(10)	Betrachtung der Sorelbetonglocke als quasi-impermeabel (10^{-40} m^2)
(11)	Verringerung der Permeabilität des Fasskegels um Faktor 10
(12)	Verringerung der Permeabilität der Sohle um Faktor 10 (horizontal) bzw. Faktor 100 (vertikal)
(13)	Verringerung der Permeabilität der Konturzone um Faktor 10 (horizontal) bzw. Faktor 100 (vertikal)
(14)	Erhöhung der Permeabilität der Konturzone um Faktor 10
(15)	Erhöhung der initialen Lösungssättigung der Sorelbetonglocke auf 0,8
(16)	Erhöhung der Porosität im Fasskegel auf 0,3
(17)	Verringerung des van Genuchten Parameters α in allen Einheiten außer Sorelbetonglocke um Faktor 10
(18)	Erhöhung des van Genuchten Parameters α in allen Einheiten außer Sorelbetonglocke um Faktor 10
(19)	Verringerung des van Genuchten Parameters m in allen Einheiten außer Sorelbetonglocke auf 0,2
(20)	Erhöhung des van Genuchten Parameters m in allen Einheiten außer Sorelbetonglocke auf 0,6
(21)	Verringerung des van Genuchten Parameters α in der Sorelbetonglocke um Faktor 10
(22)	Erhöhung des van Genuchten Parameters α in n der Sorelbetonglocke um Faktor 10
(23)	Verringerung des van Genuchten Parameters m in der Sorelbetonglocke auf 0,2
(24)	Erhöhung des van Genuchten Parameters m in der Sorelbetonglocke auf 0,5
(25)	Verringerung der residualen Lösungssättigung in der Sorelbetonglocke auf 10^{-3}
(26)	Verringerung der residualen Lösungssättigung in der Sorelbetonglocke auf 10^{-2}
(27)	Verringerung der residualen Lösungssättigung in der Sorelbetonglocke auf 0.05
(28)	Erhöhung der residualen Lösungssättigung in der Sorelbetonglocke auf 0.02
(29)	Erhöhung der residualen Lösungssättigung in der Sorelbetonglocke auf 0.5
(30)	Erhöhung der residualen Lösungssättigung in der Sorelbetonglocke auf 0.8
(31)	Verringerung der residualen Gassättigung in der Sorelbetonglocke auf 10^{-3}
(32)	Verringerung der residualen Gassättigung in der Sorelbetonglocke auf 10^{-2}
(33)	Erhöhung der residualen Gassättigung in der Sorelbetonglocke auf 0.1
(34)	Parametrisierung der 2-Phaseneigenschaften mit äquivalentem Brooks-Corey Modell
(35)	Erhöhung des Druckgradienten zwischen den Randbedingungen um 1000 Pa
(36)	Erhöhung der Lösungsdichte auf 1311 kg/m^3 und der dynamischen Viskosität auf $8 \cdot 10^{-3} \text{ Pa s}$

5 Ergebnisse und Diskussion

5.1 2-Phasenfluss, Gasbildung

Abbildung 12 zeigt die zeitliche Entwicklung wichtiger Zielgrößen der 2-Phasenmodellierung als volumengewichtetes Mittel der numerischen Zellen im jeweiligen Modellkompartiment. Räumliche Darstellungen der Entwicklungen im Basisfalls anhand von Abbildungssequenzen sind Anhang D beigelegt. In Anhang E sind Abbildungen der Verläufe jeder einzelnen Variationsrechnung im

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 42

Vergleich mit dem Basisfall hinterlegt. Zunächst wird der Basisfall diskutiert, bevor auf die Variationsrechnungen eingegangen wird.

Die hydraulischen Parameter der Kapillardruck-Sättigungsbeziehung im Fasskegel (Kapitel 4.5) sind so gewählt, dass sich oberhalb des Lösungsspiegels nur ein geringmächtiger Kapillarsaum ausbildet. Die mittlere Lösungssättigung im Fasskegel (Teil (a) in Abbildung 12) kann daher näherungsweise als Anteil an Abfällen interpretiert werden, die im Kontakt mit Lösung stehen. Beginnend bei der initialen Lösungssättigung von 10% steigt die Sättigung im Fasskegel innerhalb von ca. 4 Jahren soweit an, dass der Porenraum fast vollständig lösungsgesättigt ist. Danach, nach ca. 50 Jahren sinkt die mittlere Lösungssättigung auf unter 50% ab. Das sich bildende Gaspolster bleibt etwa 500 Jahre bestehen. Die Erhöhung des Gasdrucks infolge des kontinuierlichen Anstiegs des Lösungspegels in der Grube zusammen mit dem Herauspressen der Lösung aus den tieferen Grubenbauen durch die Konvergenz entgegen dem Strömungswiderstand im Deckgebirge bis etwa 150 Jahre hat eine zunehmende Kompression der bestehenden und gebildeten Gase im Fasskegel zur Folge. Dies führt initial zu einem schnellen Vordringen von Lösung in den Fasskegel und wirkt dann der Entsättigung des Fasskegels und dem Aufbau eines Gaspolsters als Folge der Gasbildung entgegen. Aufgrund des eingeschränkten Kontakts mit Lösung und deren reduzierter Mobilität ist die Freisetzung von Radionukliden im Bereich des Gaspolsters eingeschränkt. Dies betrifft zum Zeitpunkt der größten Ausdehnung des Gaspolsters (nach ca. 200 Jahren) ca. 50% der Abfälle im Fasskegel. An die Phase mit verringerter Lösungssättigung schließt eine Wiederaufsättigung des Fasskegels an, da die Gasbildung durch die Korrosion der Abfallfässer zum Erliegen kommt. Erst wenn die Sorelbetonglocke lösungsgesättigt und der Abfluss von Gas über die Sorelbetonglocke damit weitgehend unterbunden ist (ab ca. 3.000 Jahren), führt die Korrosion der Eisenkomponenten in den zementierten Abfällen wieder zu einer Entsättigung des Fasskegels. Gegen Ende des Modellierungszeitraums ist das gasbildende Eisen in den zementierten Abfällen am Fuß des Fasskegels aufgebraucht, sodass die Lösungssättigung langsam wieder ansteigt.

Teil (b) zeigt den kontinuierlichen Anstieg der Lösungssättigung in der Sorelbetonglocke. Anders als der Fasskegel sättigt sich die Sorelbetonglocke aufgrund ihrer hohen Kapillarität nicht von unten her auf, sondern von ihren Rändern her, denen über die Schweben, die lateralen Auflockerungszonen und zeitweise über den Fasskegel Lösung zuströmt. Die Aufsättigung mit Lösung geht mit einer Verringerung der relativen Gaspermeabilität einher.

Teil (c) der Abbildung zeigt die Entwicklung des mittleren Gasdrucks im Fasskegel. Der Gasdruck folgt ohne große Dämpfungseffekte dem über die Randbedingungen aufgeprägten Signal (siehe Abbildung 10). Die Gasbildung hat gegenüber den Druckschwankungen an den Modellrändern einen geringen Einfluss auf den Gasdruck im Fasskegel. Trotz geringer Permeabilität kann das gebildete Gas ausreichend schnell über die Kontur- und Auflockerungszonen abfließen.

Teile (d-f) zeigen die kontinuierliche Abnahme der Menge an gasbildendem Eisen (Fe^0) in den verschiedenen Eisenpools im Fasskegel. Die Abbildungen zeigen, dass die Korrosion der Fässer kaum merklich durch die Verfügbarkeit von Wasser limitiert ist. Die Korrosion des metallischen Eisens in den zementierten und bituminierten Abfällen ist jedoch in einem Zeitraum um 10^4 Jahre durch die Verfügbarkeit von Wasser z. T. erheblich eingeschränkt.

Teil (g) zeigt die Rate der korrosiven Gasbildung im gesamten Fasskegel. Sie ergibt sich aus der zeitlichen Änderung der Menge an korrodierbarem Eisen und dem stöchiometrischen Faktor von 4/3 (siehe Kapitel 3.6.3). Die ungleichmäßigen Verläufe bei manchen Variationsrechnungen (siehe Anhang E) kommen durch die räumliche Diskretisierung und durch die Ableitung aus den zeitlich diskreten Ergebnissen der aktuellen Eiseninventare zustande.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 43

Teil (h) zeigt die kumulierte Menge an gebildetem Wasserstoffgas im Fasskegel. Sie ergibt sich aus der Gesamtmenge an korrodierbarem Eisen im Verhältnis zur initialen Menge und dem stöchiometrischen Faktor von 4/3 (siehe Kapitel 3.6.3).

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00



**BUNDESGESELLSCHAFT
FÜR ENDLAGERUNG**

Blatt: 44

**Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme**

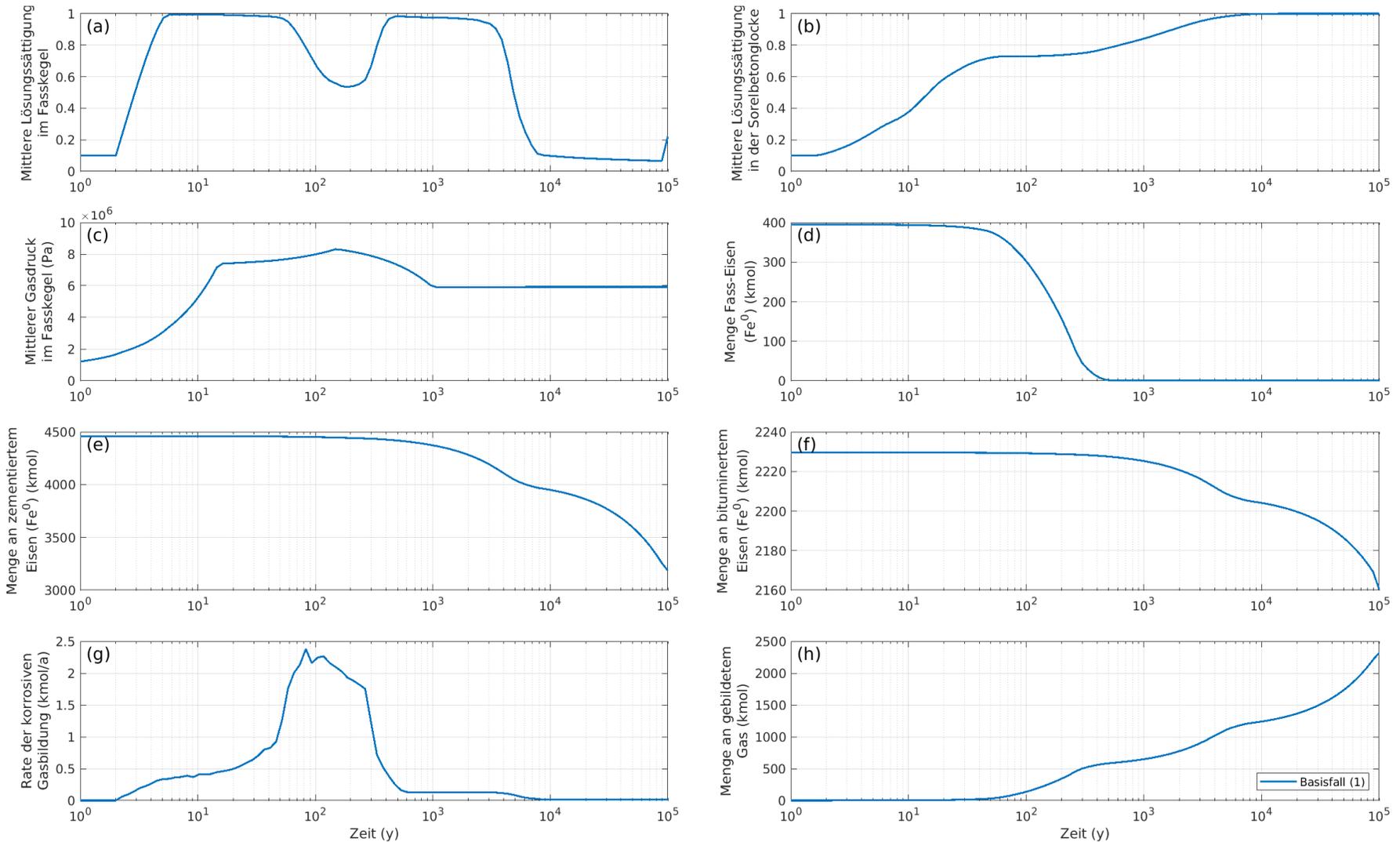


Abbildung 12: Entwicklungen wichtiger Zielgrößen der 2-Phasenmodellierung als kompartimentbezogene Volumenmittelwerte: (a) mittlere Lösungssättigung im Fasskegel, (b) mittlere Lösungssättigung in der Sorelbetonglocke, (c) mittlerer Gasdruck im Fasskegel, (d) Menge an korrodierbarem Eisen (Fe⁰) der Fässer, (e) Menge an korrodierbarem Eisen (Fe⁰) in den zementierten Abfallmatrizes, (f) Menge an korrodierbarem Eisen (Fe⁰) in den bituminierten Abfallmatrizes, (g) Rate der korrosiven Gasbildung im Fasskegel, (h) gesamte gebildete Gasmenge im Fasskegel.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	


**BUNDESGESELLSCHAFT
FÜR ENDLAGERUNG**

**Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme**

Blatt: 45

Die Massenbilanzen der Komponenten Wasser und Wasserstoff aufgeteilt nach flüssiger und gasförmiger Phase sind in Abbildung 13 dargestellt. Deutlich zu erkennen ist der Anstieg der Gasmasse zwischen 50 und 200 Jahren (Teil (b)) infolge der korrosiven Gasbildung sowie das leichte Absinken der Lösungsmasse durch Auspressung (Teil (a)).

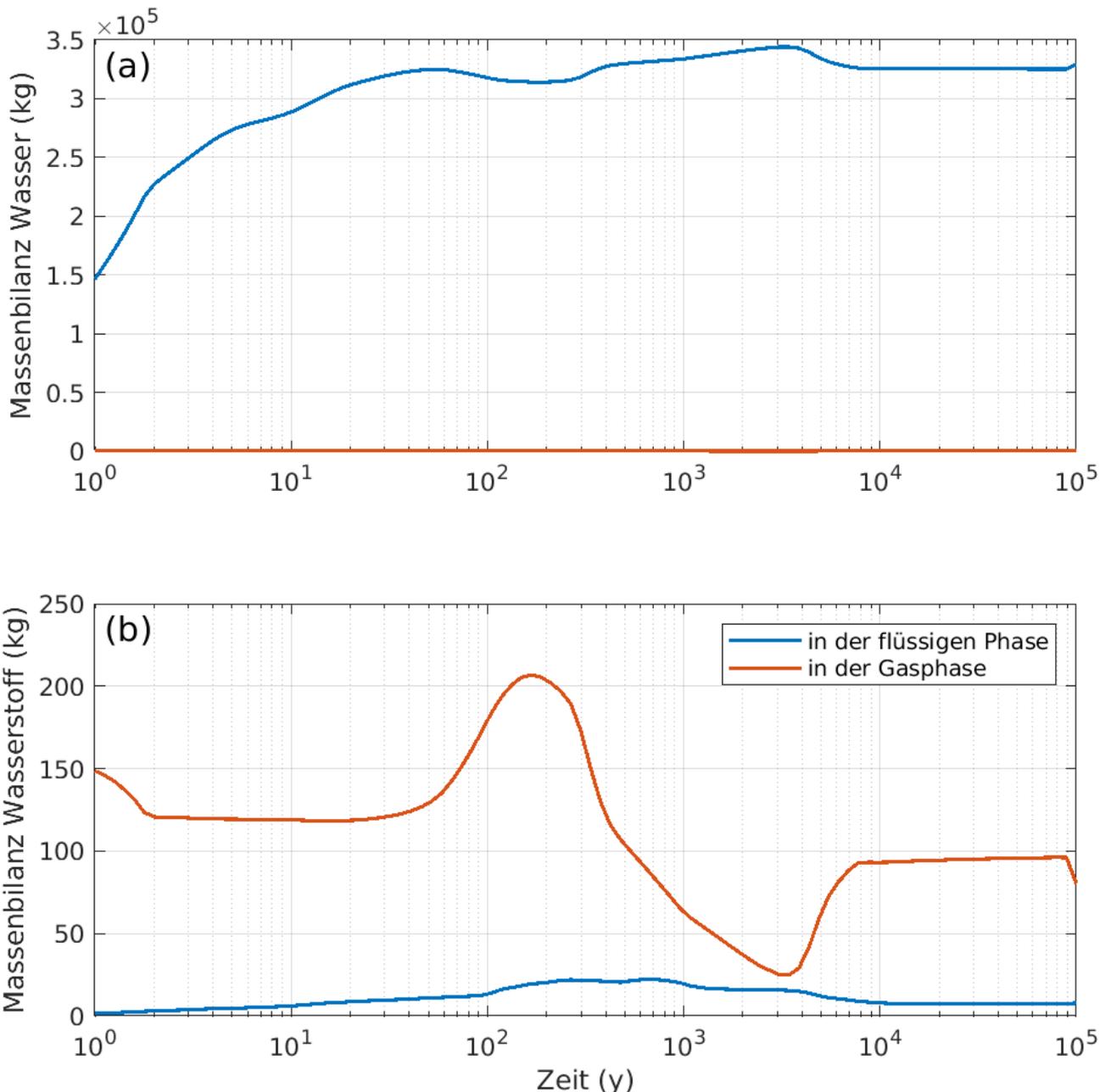


Abbildung 13: Massenbilanz der 2-Phasenkomponenten Wasser und Wasserstoff.

Die kumulierten Flüsse von Wasser und Wasserstoff an der oberen und unteren Modellrandbedingung sind in Abbildung 14 dargestellt. Nach innen gerichtete Flüsse in die Simulationsdomäne hinein (d. h. Zuflüsse) werden positiv gerechnet. Teil (a) zeigt, dass Lösung etwa zu gleichen Teilen über das Liegende wie über das Hangende in die MAW-ELK eindringt. Wie der Abbildung ebenfalls zu entnehmen ist, wird die Kammer ab etwa 10.000 Jahren entsprechend dem dynamischen hydraulischen Gradienten von unten nach oben durchströmt. Der stufenförmige Anstieg des Lösungsflusses am oberen Modellrand zwischen ca. 300 und 4.000 Jahren ist der groben

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

Blatt: 46

vertikalen Diskretisierung zuzuordnen (siehe Kapitel 4.3). Der Teil (b) zeigt, dass ein Großteil des Wasserstoffs über die obere Randbedingung abgeführt wird.

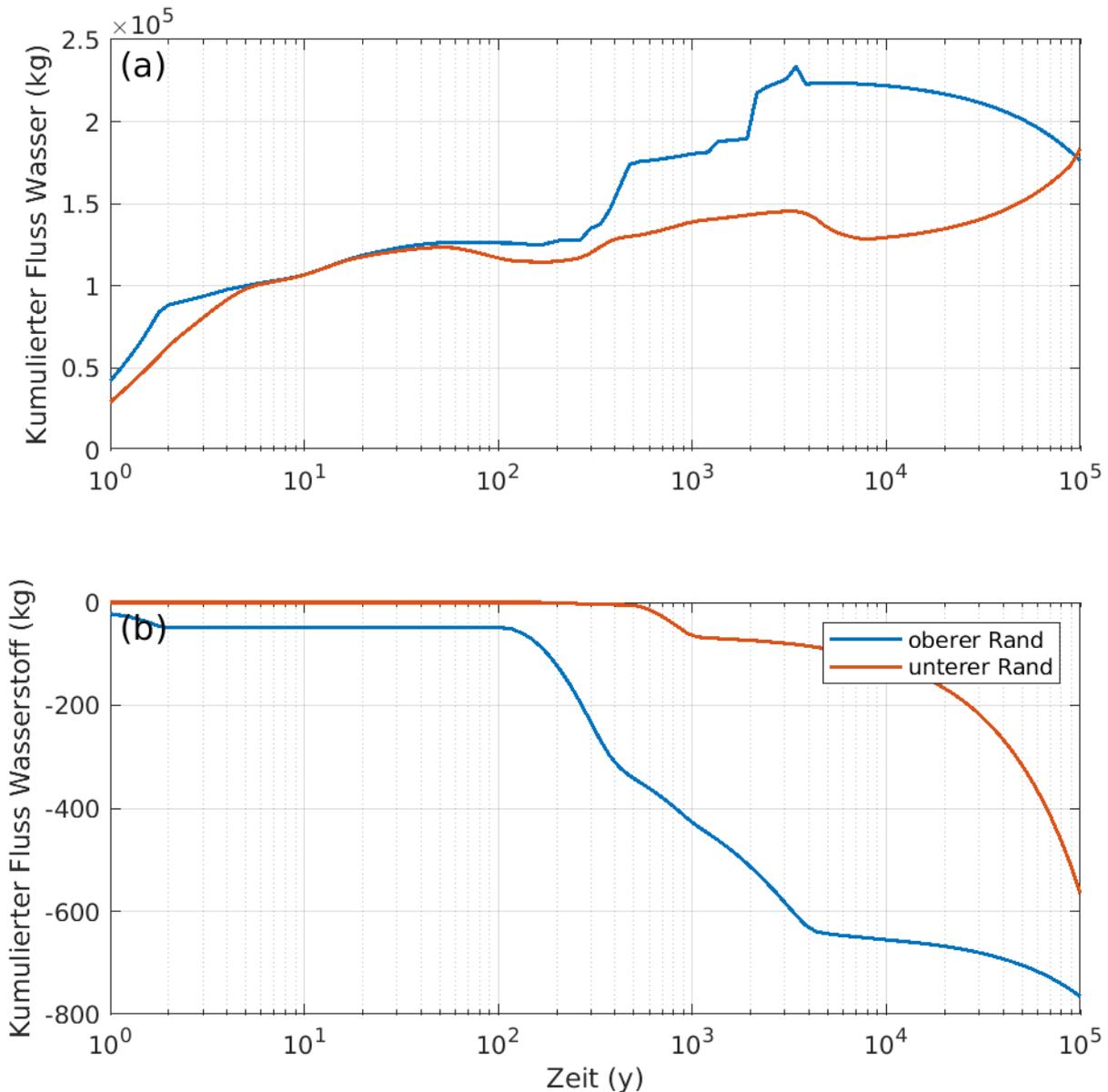


Abbildung 14: Kumulierte Massenflüsse der 2-Phasenkomponenten Wasser und Wasserstoff über die obere und untere Modellrandbedingung.

Die Sättigungsentwicklung in der MAW-Kammer lässt sich anhand der dargestellten Ergebnisse in 5 Phasen gliedern:

- Phase 1 (0 bis ca. 4 Jahre):

Aufsteigen der Lösung über den unteren Modellrand, die liegende Schwebel- und Sohle der Modellkammer sowie über die Kontur- und Auflockerungszonen der Pfeiler. Ab 0,5 Jahren gleichzeitiges Vordringen von Lösung über die obere Modellrandbedingung und die hangende Schwebel; Vordringen von Lösung in den Fasskegel über die liegende Schwebel; Kompression der Gasphase; Aufsättigung der Sorelbetonglocke mit Lösung von den Rändern sowie vom „Dach“ des Fasskegels.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 47

- Phase 2 (ca. 4 bis 50 Jahre):

Fast vollständig lösungsgesättigte Verhältnisse im Fasskegel; Aufbau eines Gasdrucks in Folge der Korrosion der Abfallfässer; zunehmende Lösungssättigung in der Sorelbetonglocke.

- Phase 3 (ca. 50 bis 500 Jahre):

Abnehmende Drücke an den Modellrändern und anhaltende Gasbildung führen zum Auspressen von Lösung aus dem Fasskegel und die Ausbildung eines Gaspolsters von der Kegelspitze her. Das Gaspolster besteht mehrere hundert Jahre und schließt sich später wieder durch Gasabfluss über die Sorelbetonglocke und Gasdiffusion. Ab etwa 200 Jahre lässt die Gasbildung in Folge des Rückgangs der Menge an korrodierbarem Metall der Fässer im Fuß des Fasskegels nach.

- Phase 4 (ca. 500 bis 3.000 Jahre):

Fast vollständig lösungsgesättigter Fasskegel

- Phase 5 (ca. 3.000 Jahre bis 100.000 Jahre):

Da die Sorelbetonglocke jetzt fast vollständig lösungsgesättigt ist und damit die Mobilität der Gasphase dort stark absinkt, reicht die anhaltende Korrosion von Eisen in den zementierten Abfallmatrices aus, erneut ein Gaspolster im Fasskegel zu bilden. Dieses bleibt bestehen, bis die Menge an korrodierbarem Eisen in den zementierten Abfällen aufgebraucht ist.

Im Folgenden werden die Ergebnisse der Variationsrechnungen kurz erläutert. Die Nummerierung der Abschnitte stimmt mit der Variationsnummer in Tabelle 4 überein. Die Abbildungen in Anhang E zeigen Vergleiche der Variationsrechnungen mit dem Basisfall (1).

- (2) Korrosion von Eisen nur der Fässer, aber keine Korrosion von Eisen, das sich in den zementierten und bituminierten Abfallmatrices befindet

Die Vernachlässigung der Eisenkorrosion in der zementierten und bituminierten Abfallmatrix führt dazu, dass es nach der Aufsättigung der Sorelbetonglocke nach ca. 3.000 Jahren nicht wieder zur Bildung eines Gaspolsters im Fasskegel kommt.

- (3) Korrosion von Eisen der Fässer und Korrosion von Eisen in der zementierten Abfallmatrix, aber keine Korrosion von Eisen in der bituminierten Abfallmatrix

Die Eisenkorrosion in der bituminierten Abfallmatrix hat mit den angesetzten Korrosionsraten keinen nennenswerten Einfluss auf die Modellergebnisse.

- (4) Erhöhung der Korrosionsraten um Faktor 10

Die Erhöhung der Korrosionsraten sämtlicher Eiseninventare führt zur früheren Ausbildung eines Gaspolsters im Fasskegel, das aber nur wenige 10er Jahre bestehen bleibt. Nach einer temporären Wiederaufsättigung bildet sich ab ca. 1.000 Jahren erneut ein Gaspolster im Fasskegel. Nach ca. 5.000 Jahren ist das korrodierbare Eisen in der Zementmatrix aufgebraucht, sodass gegen Ende der Simulationsperiode nur die Korrosion in der Bitumenmatrix zur Aufrechterhaltung des Gaspolsters beiträgt.

- (5) Verringerung der Korrosionsraten um Faktor 10

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 48

Bei um einen Faktor 10 verringerten Korrosionsraten kommt es kaum mehr zu Ausbildung eines Gaspolsters.

- (6) Erhöhung der Eisenmenge der Fässer um Faktor 2 bei entsprechender Verringerung der Eisenmenge in den zementierten und bituminierten Abfallmatrizes

Bei einer Erhöhung der Eisenmenge, die den Fässern zugeordnet wird, verlängert sich der Zeitraum mit Gaspolster (Phase 3) etwa um das doppelte. Die Ausbildung des Gaspolsters ist leicht verzögert, da die Korrosionsrate initial bis zur Korrosion von 10 % der initialen Eisenmenge verringert ist (siehe Kapitel 3.6.3). Mit größerer korrodierbarer Eisenmenge muss also erst eine größere absolute Menge korrodieren, bevor die Korrosion ungebremst voranschreitet.

- (7) Erhöhung der Korrosionsrate der Fässer um Faktor 10 und Erhöhung der Permeabilität der Sorelbetonglocke um Faktor 20 auf 10^{-17} m^2

Mit erhöhter Permeabilität der Sorelbetonglocke kommt es nicht zur Ausbildung eines temporären Gaspolsters. Die erhöhte Korrosionsrate des zementierten Eisens führt aber zu einer graduellen Entsättigung des Fasskegels beginnend bei etwa 200 Jahren.

- (8) Erhöhung der Korrosionsraten um Faktor 10 und Erhöhung der Eisenmenge der Fässer um Faktor 2 bei entsprechender Verringerung der Eisenmenge in den zementierten und bituminierten Abfallmatrizes

Die Erhöhung der Korrosionsrate bei gleichzeitiger Erhöhung der Menge korrodierbaren Eisens der Abfallfässer führt zu einer früheren und ausgeprägten Phase mit temporärem Gaspolster. Nach etwa 100 Jahren sättigt sich der Fasskegel jedoch wieder auf. Da das korrodierbare Eisen im Fuß des Fasskegels schneller aufgebraucht ist, stellt sich dort ein höherer Lösungsspiegel ein als mit geringerer Korrosionsrate.

- (9) Erhöhung der Permeabilität der Sorelbetonglocke um Faktor 20 auf 10^{-17} m^2

Mit erhöhter Permeabilität der Sorelbetonglocke bildet sich kein temporäres Gaspolster aus, da das Gas schnell durch den initial größtenteils gasgesättigten Porenraum der Sorelbetonglocke entweichen kann. Allerdings sättigt sich die Sorelbetonglocke auch schneller von den Rändern her mit Lösung auf und ist dann quasi gasdicht. Dadurch kommt es schon nach ca. 300 Jahren zu einer langanhaltenden Entsättigung des Fasskegels.

- (10) Betrachtung der Sorelbetonglocke als quasi-impermeabel (10^{-40} m^2)

Bei quasi-impermeabler Sorelbetonglocke kommt es erwartungsgemäß zur weitgehenden Entsättigung des Fasskegels nach 200 Jahren. Die Druckerhöhung über die Randbedingungen führt aber zuvor zum temporären Vordringen der Lösung in den Fasskegel.

- (11) Verringerung der Permeabilität des Fasskegels um Faktor 10

Die verringerte Permeabilität im Fasskegel hat keinen nennenswerten Einfluss auf die Modellergebnisse.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 49

- (12) Verringerung der Permeabilität der Sohle um Faktor 10 (horizontal) bzw. Faktor 100 (vertikal)

Die verringerte Permeabilität der Sohle führt zu einer verzögerten initialen Aufsättigung des Fasskegels und behindert danach das Auspressen der Lösung und die Ausbildung eines temporären Gaspolsters.

- (13) Verringerung der Permeabilität der Konturzone um Faktor 10 (horizontal) bzw. Faktor 100 (vertikal)

Die verringerte Permeabilität der Konturzone hat keinen nennenswerten Einfluss auf die Modellergebnisse.

- (14) Erhöhung der Permeabilität der Konturzone um Faktor 10

Die erhöhte Permeabilität der Konturzone hat keinen nennenswerten Einfluss auf die Modellergebnisse.

- (15) Erhöhung der initialen Lösungssättigung der Sorelbetonglocke auf 0,8

Aufgrund der reduzierten Gasmobilität führt eine höhere initiale Lösungssättigung in allen Phasen zu einer früheren und länger anhaltenden Auspressung von Lösung aus dem Fasskegel.

- (16) Erhöhung der Porosität im Fasskegel auf 0,3

Eine Erhöhung der Porosität im Fasskegel hat keinen nennenswerten Einfluss auf die Modellergebnisse.

- (17)-(24) Parameter der Kapillardruck-Sättigungsbeziehung

Von den Variationsrechnungen der van Genuchten Parameter α und m der Kapillardruck-Sättigungsbeziehung hat der Parameter α für die Sorelbetonglocke den größten Einfluss auf die Entwicklung der Lösungssättigung im Fasskegel. Dieser Parameter kann mit dem Inversen des Gaseindringdrucks in Verbindung gebracht werden²⁴. Der niedrigere Wert für α sorgt dafür, dass im Fasskegel nach der ersten Benetzungsphase zwischen 5 und 100 Jahren eine geringe Lösungssättigung < 20% vorherrscht. Beim höheren Wert sinkt die Lösungssättigung nach 5 Jahren nicht mehr unter 60%. Interessanterweise führen sowohl der niedrigere als auch der höhere Wert des Parameters m für die Sorelbetonglocke zu einem stärkeren Absinken der Lösungssättigung im Fasskegel nach 50 Jahren. Dieser Parameter stellt ein Maß für die Standardabweichung der Porengrößenverteilung dar.

- (25)-(33) Parameter der relativen Permeabilitäts-Sättigungsbeziehung

Sowohl erhöhte Werte der residualen Gassättigung als auch der residualen Lösungssättigung führen zu einem stärker ausgeprägten temporären Gaspolster nach etwa 50 Jahren. Da sich der Sorelbeton bei Gassättigungen unterhalb der residualen Gassättigung gasdicht verhält (relative Gaspermeabilität = 0), kann bei einer Erhöhung der residualen Gassättigung weniger Gas aus dem Fasskegel in das durchfeuchtete Dach der Sorelbetonglocke abfließen.

²⁴ Im Gegensatz zum Brooks-Corey Modell gibt es beim van Genuchten Modell keinen definierten Gaseindringdruck.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 50

Bei Lösungssättigungen unterhalb der residualen Lösungssättigung wird dagegen die flüssige Phase immobil (relative Lösungspermeabilität = 0). Damit ändert sich die Lösungssättigung in diesen Bereichen nur noch durch Übergang in die Gasphase und Gasdiffusion. Wurde im Verlauf einer Simulation die residuale Lösungssättigung einmal überschritten (wie zum Beispiel im Dach des Fasskegels, während der initialen Benetzungsphase) wird dieser Wert im weiteren Verlauf der Simulation kaum mehr unterschritten.

- (34) Parametrisierung der 2-Phaseneigenschaften mit äquivalentem Brooks-Corey Modell

Bei Verwendung des Brooks-Corey Modells für die Abbildung der 2-Phaseneigenschaften kommt es nach der ersten Benetzungsphase und der Ausbildung eines Gaspolsters im Fasskegel nicht zu einem neuerlichen Anstieg der Lösungssättigung. Dies kann hauptsächlich der höheren relativen Lösungspermeabilität in der Sorelbetonglocke (schneller Aufsättigung des Sorelbetons während der initialen Benetzungsphase) und dem definiertem Gaseindringdruck von 0.25 MPa zugeschrieben werden.

- (35)-(36) Variationen des hydraulischen Gradienten und der Lösungsdichte und -viskosität

Die Variationen des hydraulischen Gradienten und der Lösungsdichte und -viskosität haben keinen nennenswerten Einfluss auf die Modellergebnisse.

Aus der detaillierten Analyse sämtlicher Ergebnisse der 2-Phasenmodellierung mit Gasbildung lassen sich folgende Schlüsse ziehen:

- Die Kompression der Gasphase im Fasskegel durch den Anstieg des Gasdrucks in der MAW-ELK (als Folge des Lösungsanstiegs und der Konvergenz im Grubengebäude) führt zu einer initialen Durchfeuchtungs- bzw. Benetzungsperiode im Fasskegel (ca. 50 Jahre im Basisfall).
- Im Zeitraum zwischen ca. 50 und 500 Jahren kann es in Folge der korrosiven Gasbildung zum Auspressen von Lösung aus dem Fasskegel kommen, sodass ca. 50% der Abfälle trockenfallen²⁵. In diesem Zeitraum wäre die Freisetzung von Radionukliden aus den Abfallmatrizes eingeschränkt.
- Die Dauer und Intensität der Phase, in denen die Abfälle nach der initialen Benetzungsperiode trockenfallen, hängt maßgeblich von der Korrosionsrate des Eisens und der Permeabilität der Sorelbetonglocke ab. Bei geringerer Korrosionsrate des Eisens und bei geringerer Permeabilität der Sorelbetonglocke stehen die Abfälle über einen längeren Zeitraum nur teilweise im Kontakt mit Lösung.
- Bei erhöhter Permeabilität der Sorelbetonglocke bildet sich das Gaspolster zwar erst später aus, dieses bewirkt aber eine langanhaltende Entsättigung des Fasskegels.
- Bei erhöhten Eisenkorrosionsraten (z. B. durch eine größere reaktive Oberfläche) und gleichem Inventar an metallischem Eisen verkürzt sich die Periode der Gasbildung und damit auch der Zeitraum und der Anteil der Abfälle mit Lösungskontakt.
- Für die Ausbildung eines (temporären) Gaspolsters während der ersten 1.000 Jahre ist die Korrosion der Abfallfässer verantwortlich. Die Korrosion des Eisens in den zementierten und bituminierten Abfallmatrizes ist von untergeordneter Relevanz.
- Die Gasbildung durch die Korrosion der Abfallfässer ist kaum in nennenswerter Weise durch die Verfügbarkeit von Wasser begrenzt. Die effektiven Gasbildungsraten richten sich also

²⁵ im Sinne von Lösungssättigungen < 20 %

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 51

nach den spezifischen Gasbildungsraten unter den jeweiligen geochemischen Bedingungen und der korrodierenden Oberfläche.

- Für die Abschätzung der gebildeten Gasmenge während der gesamten Simulationsperiode ist die Berücksichtigung der Korrosion von Eisen in den zementierten und bituminierten Matrices unerlässlich.
- Bei einigen, als relevant erachteten Variationsrechnungen kommt es nicht zur Ausbildung eines (temporären) Gaspolsters im Fasskegel. Eine durchgängige, vollständige Benetzung der Abfälle mit Lösung kann also bezüglich der Freisetzung von Radionukliden nicht ausgeschlossen werden.

5.2 Tracer-Transport

Die Ausbreitungsberechnungen für die beiden nicht-reaktiven Tracer A (konstante Konzentration) und B (instantane Freisetzung, siehe Kapitel 4.8) liefern wichtige Anhaltspunkte zur Zeitskala des Transports innerhalb der MAW-ELK und zu den dominierenden Transportpfaden, ohne dabei die spezifischen Quellterme, Sorptions- und Zerfallskonstanten der Radionuklide zu berücksichtigen. Die Berechnungen dienen hauptsächlich dem Systemverständnis und der Plausibilisierung der Strömungs- und Transportrechnungen in der Grube. Die Transportrechnungen beziehen sich auf Tracer nach der Freisetzung aus den Abfallgebänden. Die Freisetzung aus den Abfallgebänden wird gesondert in Kapitel 5.5 behandelt. Als Eingangsgröße für das Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude sind die Radionuklid-Quellterme, die die Freisetzung aus den Abfallgebänden beschreiben, relevant, nicht der Austrag aus der MAW-ELK.

Abbildung 15 zeigt den Austrag der Tracer A (Teil (a)) und B (Teil (b)) an den Modellrändern anhand der momentanen Stoffflüsse. Aufgrund der räumlichen Nähe und der niedrigeren Transmissivität durch die Auflockerungszonen in der Kontur des Pfeilers zur hangenden Schweben werden beide Tracer hauptsächlich über die liegende Schweben ausgetragen. Die größten momentanen Flüsse fallen für Tracer B mit der Auspressung der Lösung aus dem Fasskegel zwischen etwa 100 und 1.000 Jahren zusammen. Der Tracer wird also hauptsächlich advektiv durch die Lösungsverdrängung in Folge der Gasbildung aus dem Fasskegel ausgepresst. Aufgrund der konstanten Konzentration im Fasskegel nehmen die Austräge des Tracer A an den Randbedingungen im Simulationsverlauf fast kontinuierlich zu. Die Zunahme des Austrags wird auch hier von der Lösungsauspressung im Zusammenhang mit der korrosiven Gasbildung dominiert. Allerdings bleibt der Transport durch Diffusion auch zu späten Zeiten aufrechterhalten.

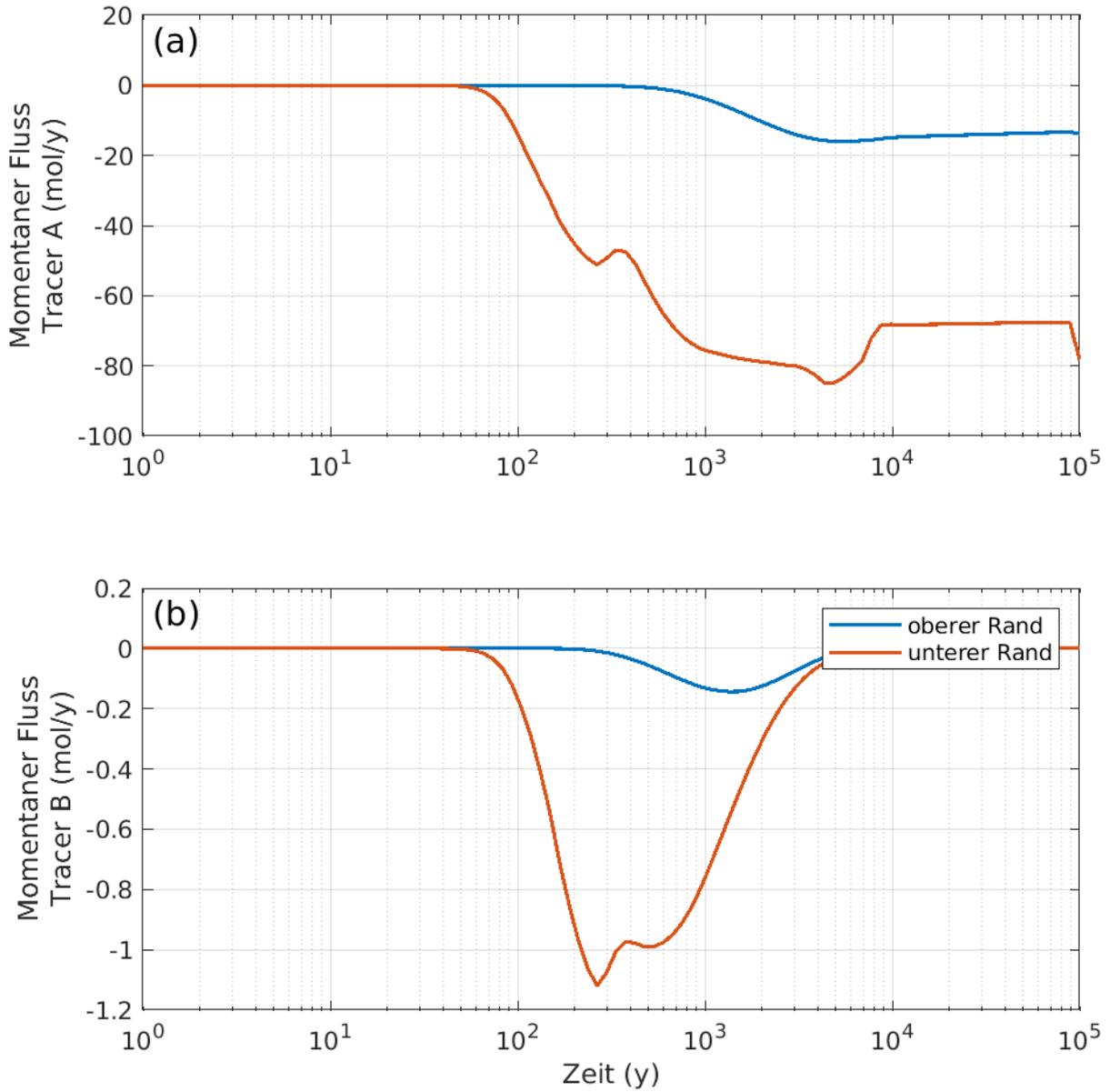


Abbildung 15: Tracerflüsse an den Modellrändern.

Der kumulierte und anhand des initialen Inventars normalisierte Austrag von Tracer B an den Modellgrenzen ist in Abbildung 16 dargestellt.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

Blatt: 53

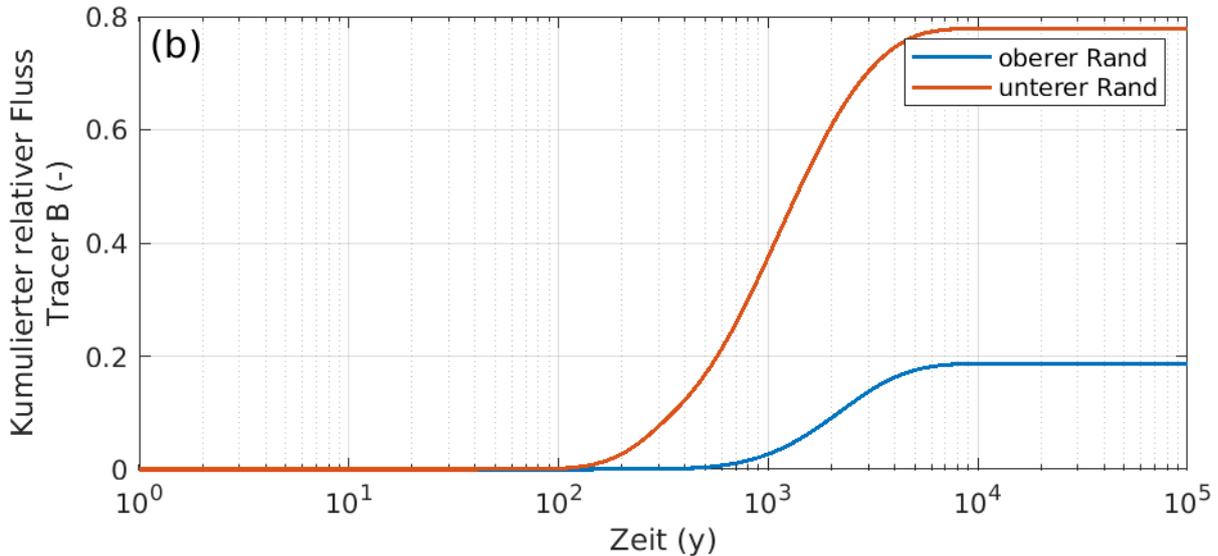


Abbildung 16: Kumulierter Austrag von Tracer B an den Modellrändern im Verhältnis zum initialen Inventar.

Abbildung 15 und Abbildung 16 zeigen, dass die Radionuklide auch bei instantaner Freisetzung und ohne Sorption oder Löslichkeitsbeschränkung erst nach ca. 100 Jahren aus der MAW-Kammer transportiert werden.

5.3 Geochemische Milieus

Die relevanten geochemischen Milieubedingungen für die Gasbildung und für die Freisetzung von Radionukliden aus den Abfallmatrizes sowie den Transport bzw. Rückhaltung von Radionukliden innerhalb der MAW-Kammer und in die benachbarten Grubenbaue lassen sich folgendermaßen eingrenzen:

- A. In den zementierten Abfallgebänden (etwas zwei Drittel der Fässer) liegt initial eine NaNO_3 -reiche, zementkonditionierte Lösung vor, die sich anhand einer angenommenen Elementzusammensetzung der Zement- und Abfallbestandteile errechnen lässt (Milieu A).
- B. In den übrigen Bereichen des Fasskegels (Zwickelräume und Randsaum der Sorelbetonglocke) dominiert direkt nach dem Lösungszufluss ein MgCl_2 -reiches Milieu, das sich aus der Reaktion der eingebrachten Lösung mit Sorelbeton ergibt (Milieu B)²⁶.
- C. Bei vollständiger Reaktion der milieubestimmenden Inventare im Fasskegel, bestehend aus der zudringenden MgCl_2 -reichen Lösung im Porenraum und den nicht verfüllten Zwickelräumen, dem Sorelbeton in den verfüllten Zwickelräumen, dem Zement der zementierten Abfälle und dem Natriumnitrat der zementierten und bituminierten Abfälle ergibt sich ein Milieu C, das die mittelfristig erwarteten geochemischen Bedingungen im Fasskegel repräsentiert.

Der Berechnung des Milieus in der Porenlösung der zementierten Abfälle (Milieu A) werden die relativen Stoffmengen in Tabelle 5 zugrunde gelegt. Die Stoffmengen charakterisieren einen Portlandzement CEM I 32,5R mit Wasser/Zement Verhältnis von 0,4 und 10 Masse-% NaNO_3 .

²⁶ Es kann davon ausgegangen werden, dass bereits auf dem Weg in die MAW-ELK ein chemischer Austausch mit dem Sorelbeton in den verfüllten Zugängen stattgefunden hat.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 54

Tabelle 5: Zusammensetzung der zementierten Abfälle für die Berechnung des geochemischen Milieus der Porenlösung.

Komponente	Menge (mol/kg Zement)
CaO	7.73
SiO ₂	1.97
Al ₂ O ₃	3.85·10 ⁻¹
MgO	2.95·10 ⁻¹
K ₂ O	1.12·10 ⁻¹
Na ₂ O	3.20·10 ⁻²
NaNO ₃	8.65·10 ⁻¹
SO ₃	3.97·10 ⁻¹
CaCl ₂	9.33·10 ⁻³
H ₂ O	1.47·10 ¹

Zur Berechnung des Milieus A werden die Komponenten im geochemischen Modell in das thermodynamische Gleichgewicht mit den Mineralphasen Portlandit, Mononitrat, Glauberit, Kalisalpeter, Thenardit und Hydrotalcit und einer Feststofflösung (solid solution) entsprechend dem Modell für C-S-H-Phasen mit Alkalikomponenten „CSH-quat_KSH_NaSH_ss“ in THEREDA gebracht (siehe [59]). Die Porenlösung bleibt als „Rest“ der Lösungs- und Mineralspeziation zurück.

Für die Berechnung des Milieu B wird Wasser mit den Mineralphasen Halit, Carnallit, Kainit, Sylvin und Polyhalit ins Gleichgewicht gebracht. Die entstehende IP21-Lösung wird zusätzlich mit Sorelbeton A1 mit einer angenommenen Zusammensetzung entsprechend Tabelle 6 equilibriert.

Tabelle 6: Zusammensetzung des Sorelbeton A1 für die Berechnung des geochemischen Milieus in den Zwickelräumen des Fasskegels.

Komponente	Menge (mol/kg Sorelbeton A1)
MgO	2.60
MgCl ₂	8.07·10 ⁻¹
MgSO ₄	4.05·10 ⁻²
CaSO ₄	1.84·10 ⁻⁵
KCl	2.35·10 ⁻³
NaCl	1.07·10 ¹
H ₂ O	9.31

Bei der Berechnung des Milieus C wird das Milieu B zusätzlich mit dem Zementinventar in den Abfallgebänden gemäß Tabelle 5, dem Sorelbeton in den Zwickelräumen und dem Inventar an Natriumnitrat in den bituminierten Abfällen equilibriert. Die Mengenverhältnisse von MgCl₂-reicher Lösung im Porenraum zu Zement der zementierten Abfallgebände sowie zu Sorelbeton in den Zwickelräumen entsprechen dabei den Verhältnissen im Fasskegel. Für das Natriumnitrat wird von einer Gesamtmenge von 4,72·10⁵ Mol in den zementierten und bituminierten Abfallmatrizes ausgegangen [87].

Die berechneten Milieus A bis C sind in Tabelle 7 dargestellt.

Projekt NAAN	PSP-Element NNNNNNNNNN	Funktion/Thema NNAAANN	Komponente AANNNA	Baugruppe AANN	Aufgabe AAAA	UA AA	Lfd Nr. NNNN	Rev. NN	 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 55

Tabelle 7: Charakteristika der relevanten geochemischen Milieus.

Parameter	Milieu A Zementporenlösung	Milieu B MgCl ₂ -reiche Lösung im Kontakt mit Sorelbeton	Milieu C Lösung im Gleichgewicht der reaktiven Komponenten im Fasskegel
pH _m (-log ₁₀ (mol/kg H ₂ O))	12,5	8,8	11,8
pE-Wert*	-8,5 bis +5	-8,5 bis +5	-8,5 bis +2
a _w -Wert	0,65	0,5	0,65
Ionenstärke (eq/kgH ₂ O)	16	14	14
Ca ²⁺ (mol/kgH ₂ O)	2,1·10 ⁻²	5,6·10 ⁻⁴	3,7
Cl ⁻ (mol/kgH ₂ O)	1,0·10 ⁻¹	8,7	5,4
K ⁺ (mol/kgH ₂ O)	1,3	5,6·10 ⁻¹	7,5·10 ⁻¹
Mg ²⁺ (mol/kgH ₂ O)	1,8·10 ⁻⁸	4,1	2,6·10 ⁻⁵
NO ₃ ⁻ (mol/kgH ₂ O)**	10,6	0,0	4,7
Na ⁺ (mol/kgH ₂ O)	13,6	5,5·10 ⁻¹	1,9
SO ₄ ²⁻ (mol/kgH ₂ O)	1,6	3,6·10 ⁻¹	5,5·10 ⁻³

*Das Redoxpotential kann nicht mit Hilfe der thermodynamischen Gleichgewichtrechnungen bestimmt werden. Schätzungen orientieren sich an den zu erwartenden Gehalten redoxbestimmender Spezies (z. B. Eisenkorrosionsprodukte, Nitrat).

**Die hohen Konzentrationen von Natrium und Nitrat der Zementporenlösung (Milieu A) ergeben sich aus dem hohen Gehalt an NaNO₃ in den zementierten Abfällen (ca. 10 M.-%). Die Nitratkonzentration ist durch die Löslichkeit von Kalisalpeter (KNO₃) und Mononitrat (Ca₄Al₂(OH)₁₂N₂O₆(H₂O)₄, siehe CEMDATA [65]) nicht aber durch Natriumnitrat (NaNO₃) begrenzt.

Für die zeitliche Entwicklung der Milieus in der MAW-ELK und speziell im Fasskegel wird folgender Ablauf erwartet:

- Beginnend bei einem Milieu A wird sich die Porenlösung in den zementierten Abfällen zunächst in Richtung eines Milieu C, bei dem die Stoffkomponenten innerhalb des Fasskegel im Gleichgewicht stehen, entwickeln.
- Entsprechend entwickelt sich mittelfristig auch das Milieu B in den Zwickelräumen des Fasskegels in Richtung des Milieus C. Diese Angleichung der geochemischen Verhältnisse im Fasskegel innerhalb und außerhalb der zementierten Abfälle ist Folge der fortschreitenden Zementkorrosion²⁷.
- Beim Kontakt der zutretenden MgCl₂-reichen Lösung (Milieu B) mit den Abfällen ist zuerst mit einem Anstieg der NaNO₃-Konzentration durch die Auflösung leichtlöslicher Nitratsalzen aus den bituminierten und zementierten Abfallmatrizes zu rechnen, noch bevor sich die Auswirkungen der Zementkorrosion auf die Porenlösung außerhalb der Abfallgebinde bemerkbar machen
- Langfristig entwickelt sich das geochemische Milieu im Fasskegel nach der Reaktion der milieubestimmenden Kammerinhaltsstoffe (Milieu C) in Folge des diffusionsdominierten Stofftransports zwischen Fasskegel und Sorelbetonglocke sowie zwischen der MAW-Kammer und der Restgrube wieder in Richtung geochemischer Bedingungen ähnlich einem Milieu B.

Da der Transport von Radionukliden entlang der Transportpfade in der MAW-ELK durch Bereiche erfolgt, die initial von Milieu B dominiert werden, ist in dieser Phase die Freisetzung von Radionukliden aus dem Fasskegel nicht nur von Milieu A bestimmt, sondern bezüglich Löslichkeit

²⁷ Unter dem Begriff der Zementkorrosion werden die Mineralumbildungen infolge lokaler thermodynamischer Ungleichgewichte im Zement, welche durch den (diffusiven) Transport von Ionen aus und in den Zementkörper hervorgerufen werden, subsummiert.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 56

und Sorption zusätzlich durch Milieu B begrenzt. Andererseits führt eine Freisetzung von Radionukliden aus den zementierten Abfällen immer auch zu einer Beeinflussung des Milieus B durch lösliche Bestandteile des Zements. Für die Freisetzung der Radionuklide aus dem Fasskegel ist also letztlich ein Milieu im Bereich zwischen B und C relevant.

Auf Grund der hohen Mengen an Magnesium- bzw. Calcium-basierter Festphasen ist die freie Konzentration an Carbonat (CO_3^{2-}) gering und damit ein spezifischer Effekt auf das Milieu und die Radionuklidspeziation nicht zu erwarten. Im Einklang mit den Betrachtungen zur Gasbildung (Kapitel 3.6.3) wird das Inventar an Organika (größtenteils Bitumen in bituminierten Abfallmatrizes) bezüglich seines Einflusses auf das Milieu vernachlässigt.

Es ist davon auszugehen, dass die sich langfristig einstellenden Redoxbedingungen (pE-Werte) in der MAW-ELK im Bereich mäßig reduzierend bis sehr stark reduzierend liegen werden und sich demnach unterhalb der sogenannten Redox-neutralen Linie bei $\text{pE} + \text{pH} = 13,8$ bewegen (siehe auch Kapitel 2.2). Auch wenn eine nähere Eingrenzung prinzipiell erstrebenswert ist, reichen diese Angaben für eine verlässliche Bestimmung der Radionuklidlöslichkeit für die hier betrachteten Systeme bzw. Radionuklide aus.

Es sei an dieser Stelle ausdrücklich darauf hingewiesen, dass die berechneten Milieus nur als grobe Orientierungshilfe zur Einschätzung der relevanten Milieubedingungen im Fasskegel der MAW-ELK dienen können. Der Einfluss der hohen Konzentrationen von NaNO_3 in Milieu A auf die Bildung von und Einbau in Zementphasen kann mit den zur Verfügung stehenden Datenbasen nicht zuverlässig abgebildet werden. Die Lösungskonzentration von NaNO_3 in der Zementporenlösung ist daher als oberer Grenzwert zu verstehen. Ähnliches gilt für die Aufnahme bzw. Sorption von pH_m -bestimmenden Alkali K^+ und Na^+ in bzw. an C-S-H-Phasen. Die Menge und Löslichkeit der Nitratbelastung der bituminierten Abfälle ist mit großen Ungewissheiten behaftet (siehe auch Kapitel 5.5.2).

Die Milieus A-C werden als Eckpunkte der möglichen geochemischen Bedingungen im Fasskegel verstanden. Trotzdem können in Folge der inhomogenen Inventarverteilung lokal Milieus auftreten, die nicht von den Milieus A-C abgedeckt werden. Deren Beständigkeit wird jedoch aufgrund ausgleichender Transportprozesse als kurz und ihre Relevanz für das Systemverhalten als untergeordnet eingeschätzt. Andererseits können schon während der Reaktion der milieubestimmenden Kammerinhaltsstoffe signifikante Anteile die MAW-Kammer durch Transportprozesse verlassen, sodass die dem Milieu C zugrunde gelegten Mengen an Zement und Natriumnitrat überschätzt sind. Bei der Equilibrierung der reaktiven Stoffe im Fasskegel (Milieu C) ist weiterhin davon auszugehen, dass auch ein gewisser Teil der Sorelbetonglocke an der Reaktion teilnimmt. Im Kontakt mit Milieu C ist der Sorelbeton chemisch nicht stabil und wird umgesetzt. D. h. die zu erwartende Menge an reagiertem Sorelbeton übersteigt mittel- bis langfristig die in die Zwickelräume eingedrungene und in Milieu C berücksichtigte Menge. Testrechnungen ergaben, dass Milieu C sich auch bei der mehrfachen Menge Sorelbeton nicht wesentlich ändert. Bei zusätzlicher Reaktion von Sorelbeton entwickelt sich Milieu C in Richtung Milieu B. Das berechnete Milieu C begrenzt die Bandbreite der möglichen Milieubedingungen in der MAW-Kammer ohne Einwirkung der Sorelbetonglocke, das Milieu B bei Verfügbarkeit der Sorelbetonglocke bis zur chemischen Stabilität des Sorelbeton.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 57

5.4 Radionuklidlöslichkeit und -sorption

5.4.1 Überblick

Für die im Rahmen dieses Berichts betrachteten Radionuklide existieren keine Löslichkeitsuntersuchungen bzw. thermodynamischen Modelle, welche deren Verhalten in den erwarteten Milieus aus Kapitel 5.3 vollständig konsistent abbilden. Allerdings lassen sich z. T. Ergebnisse aus ähnlichen Systemen (bezüglich wesentlicher geochemischer Eigenschaften wie Konzentration von Komplexbildnern, Ionenstärke, pE und pH_m) mit ausreichender experimenteller und theoretischer Datenbasis auf das Verhalten der Radionuklide in den erwarteten Milieus übertragen.

Bezüglich des Redoxverhaltens lässt sich folgendes festhalten: Cäsium, Strontium, und Americium liegen für alle hier betrachteten Lösungsbedingungen ausschließlich als Cs(I), Sr(II) bzw. Am(III) vor. In den stark alkalischen Lösungen (Milieu A und C) liegt Pu als Pu(IV) vor. In der schwach alkalischen $MgCl_2$ -reichen Lösung (Milieu B) kann sich neben Pu(IV) als wesentliche Oxidationsstufe potentiell auch Pu(III) bilden, allerdings nur unter sehr stark reduzierenden Bedingungen.

1. Cäsium kommt in wässriger Lösung als einwertiges Cs(I) vor und geht lediglich sehr schwache Komplexe mit OH^- , SO_4^{2-} , Cl^- und NO_3^- ein. Der primäre Sorptionsmechanismus von Cs(I) ist ein Kationenaustausch an geladenen Sorptionsplätzen der Oberfläche [79]. Im Allgemeinen wird die Sorption eines Ions, welches über diesen Mechanismus an einer Oberfläche sorbiert, durch eine hohe Ionenstärke und durch hohe Konzentrationen an kompetitiven Kationen (Na^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , etc.) stark zurückgedrängt [3], [5], [11], [78]. Es ist daher davon auszugehen, dass im vorliegenden System die Sorption von Cs(I) sehr gering ist.
2. Strontium kommt in wässriger Lösung als divalentes Sr(II) vor, und liegt fast über den gesamten pH-Bereich als hydratisiertes Sr^{2+} -Ion vor. Lediglich bei $pH > 13$ stellt $SrOH^+$ die dominante Spezies dar. Unter den betrachteten Bedingungen spielen spezifische Komplexe des Sr^{2+} mit SO_4^{2-} und CO_3^{2-} keine Rolle. Jedoch kann es aufgrund der sehr geringen Löslichkeit von $SrCO_{3,s}$ und $SrSO_{4,s}$ zur Bildung dieser Festphasen kommen [77]. Ein möglicher Rückhalte Mechanismus ist der Einbau von Sr^{2+} in einen Calcium-Strontium-Sulfat- oder einen Calcium-Strontium-Carbonat-Mischkristall, welcher jedoch in den hier zu betrachtenden, magnesiumchloridreichen Salzlösungen nicht belastbar quantifizierbar ist [94]. Der primäre Sorptionsmechanismus von Sr^{2+} ist der Kationenaustausch mit oberflächengebundenen Kationen [94], [99]. Aufgrund der ähnlichen chemischen Eigenschaften spielt die Konkurrenz mit Ca^{2+} und Mg^{2+} hierbei eine wichtige Rolle [95]. So konnte gezeigt werden, dass Sr^{2+} und Ca^{2+} eine annähernd gleiche Affinität an C-S-H-Phasen aufweisen [95]. Diese Befunde lassen eine geringe Rückhaltung von Sr^{2+} in Ca^{2+} - und Mg^{2+} -reichen Milieus erwarten.
3. Americium liegt in den betrachteten Milieus ausschließlich als trivalentes Am(III) vor. Es zeigt eine ausgeprägte Hydrolyse-reaktion, weshalb bei $pH > 7$ die $AmOH_n^{3-n}$ ($n = 1, 2, 3$) Komplexe die Speziation dominieren [53]. Hierdurch zeigt Am(III) unter alkalischen Bedingungen eine starke Tendenz zur Sorption an Oberflächen welche amphotere OH-Gruppen besitzen, wobei es direkt an eine deprotonierte OH-Gruppe gebunden wird (inner-sphere-Komplex) [25]. Da dies eine starke chemische Bindung darstellt, haben kompetitive Kationen, welche eine deutlich schwächere Bindung mit den amphoteren OH-Gruppen eingehen, lediglich einen geringen Einfluss. Es sind auch weitere Rückhalte Mechanismen bekannt, wie z. B. der Einbau von Am(III) und dem analogen Eu(III) in die Kristallstruktur von C-S-H-Phasen und Calcit [92], [82]. Anhand von Untersuchungen von standortspezifischen Lösungs-/ Feststoffsystemen

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BUNDEGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 58

wurde sowohl in stark alkalischer $\text{CaCl}_2\text{-MgCl}_2$ -haltiger Lösung als auch in schwach alkalischer, MgCl_2 -reicher Lösung eine starke Sorption von Am(III) an Zement und Zementkorrosionsprodukten beobachtet [66], [68]. Daher ist davon auszugehen, dass Am(III) stark über Sorptionsprozesse zurückgehalten wird.

- Plutonium stellt ein redoxsensitives Element dar, welches in wässriger Lösung, abhängig vom pH_m -Wert und dem Redoxpotential, Oxidationsstufen von +3 bis +6 annehmen kann. Unter den hier zu betrachtenden reduzierenden Bedingungen stellen Pu(III) und Pu(IV) die relevanten Oxidationsstufen dar. Da die exakten Redoxbedingungen schlecht prognostizierbar sind, werden im Rahmen dieser Arbeit beide Oxidationsstufen betrachtet. Das chemische Verhalten von Pu(III) ähnelt stark dem von Am(III). Daher werden die für Am(III) abgeschätzten Daten näherungsweise auch auf Pu(III) angewandt. Pu(IV) zeigt eine höhere Reaktivität, verglichen mit der dreiwertigen Oxidationsstufe, und geht bereitwillig Komplexe mit Hydroxidionen ein. Dadurch sind unter den vorliegenden Bedingungen der $\text{Pu(OH)}_{4,(aq)}$ Komplex bzw. Pu(IV)-Kolloide ($\text{PuO}_{2,(coll,aq)}$) die dominanten Spezies in wässriger Lösung. Im Allgemeinen weist Pu(IV) ähnliche Sorptionsmechanismen wie Am(III) und Pu(III) auf (Bindung an amphotere OH-Oberflächengruppen, Einbau in C-S-H-Phasen, etc.) und zeigt daher analog zu diesen eine starke Sorption, welche nur wenig von kompetitiven Kationen und der Ionenstärke beeinflusst wird [79]. So konnte gezeigt werden, dass Pu(IV) unter den hier zu betrachtenden geochemischen Bedingungen eine nahezu quantitative Rückhaltung an Zementkorrosionsprodukten zeigt [68].

5.4.2 Einfluss hoher Nitratkonzentrationen auf die Radionuklidsorption

Die Bewertung des Einflusses von NO_3^- auf die Sorption von Radionukliden an Mineraloberflächen ist sehr schwierig. Die Bildung von Nitratkomplexen in der wässrigen Phase kann vernachlässigt werden, da Nitrat ein verhältnismäßig schwacher Ligand gegenüber Radionukliden ist. Daher erfolgt die Bildung von entsprechenden Komplexen erst bei relativ hohen Nitratkonzentrationen, und wird durch das Vorliegen von deutlich stärkeren Liganden (z. B. Hydroxid) quasi vollständig unterdrückt. Allerdings ist bekannt, dass Nitrat an Mineraloberflächen binden kann, wodurch die Sorption von Radionukliden an diesen stark beeinflusst werden kann. Hofmann et al. haben den Einfluss von Nitrat auf die Sorption von Eu(III) an Calcit bei niedrigen Ionenstärken untersucht [46]. Es konnte gezeigt werden, dass bereits geringe Mengen an Nitrat die Oberfläche des Calcits verändern, wodurch die Sorption von Eu(III) signifikant verringert wird. Diese Veränderung der Calcitoberfläche durch Nitrat konnte mittels diverser spektroskopischer und theoretischer Methoden quantifiziert werden [47].

Der Einfluss von Nitrat auf die Sorption an Calcit steht beispielhaft für die großen Ungewissheiten, die von den hohen zu erwartenden Nitratkonzentrationen im Fasskegel der MAW-Kammer auf die in anderen geochemischen Milieus belastbar beschreibbare Sorption von Radionukliden induziert werden. Die fehlende Datengrundlage zur Einschätzung des Einflusses auf weiteren sorptionsrelevanten Mineralphasen macht gesamthaft eine belastbare Einschätzung des Einflusses von Nitrat auf den Sorptionsrückhalt von Cs(I), Sr(II), Am(III) und Pu(III/IV) im Fasskegel der MAW-Kammer derzeit unmöglich. In der Konsequenz kann der Radionuklidrückhalt durch Sorption bei der Ableitung der orientierenden Quellterme für das Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude (Kapitel 6) nicht belastet werden.

5.4.3 Löslichkeit

Für alle drei Milieus A, B und C ist für das zu den Alkalimetallen zählende Cäsium(I) hinsichtlich des vorhandenen Inventars in der MAW-Kammer keine signifikante Limitierung der Maximalkonzentration durch Löslichkeitskontrolle zu erwarten, da die entsprechenden, unter den gegebenen

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 59

Lösungsbedingungen als relevant einzustufenden Cs(I)-Festphasen (Chlorid, Hydroxid, Sulfat, Nitrat) allesamt sehr leichtlöslich sind, mit einem Mindestwert für die Löslichkeit von $\log [\text{Cs(I)}]^{28} - 1$.

Im Vergleich hierzu ist die Löslichkeit von Sr(II) in Milieu A, B und C durch das in den betrachteten Lösungen vorhandene Sulfat und die damit potentielle Bildung von schwerlöslichem $\text{SrSO}_4(\text{cr})$ insgesamt geringer einzuschätzen. Zur Ermittlung der Sr(II)-Löslichkeit stehen jedoch für die gemischten Salzsysteeme gemäß Tabelle 7 keine geeigneten experimentellen Daten bzw. Modelle zur Verfügung. Die beiden wesentlichen Einflussfaktoren auf die Sr(II)-Löslichkeit, nämlich Sulfat-Konzentration (bzw. Aktivität) und Ionenstärke, lassen sich zumindest für Milieus B und C anhand der folgenden generischen Lösungen relativ verlässlich ableiten: $4,3 \text{ mol kg}^{-1} \text{ H}_2\text{O}^{-1} \text{ MgCl}_2 + 0,36 \text{ mol kg}^{-1} \text{ H}_2\text{O}^{-1} \text{ MgSO}_4$ (Milieu B) bzw. $4,9 \text{ mol kg}^{-1} \text{ H}_2\text{O}^{-1} \text{ CaCl}_2 + 5,5 \cdot 10^{-3} \text{ mol kg}^{-1} \text{ H}_2\text{O}^{-1} \text{ CaSO}_4$ (Milieu C). Wie im Anhang näher ausgeführt, liegen die Sr(II)-Löslichkeiten bei $\log [\text{Sr(II)}] = -4,6 \pm 0,5$ für Milieu B bzw. $\log [\text{Sr(II)}] = -2,5 \pm 0,5$ für Milieu C.

Die Ermittlung der Sr(II)-Löslichkeit für Milieu A ist mit großen Ungewissheiten behaftet, da keine experimentellen Vergleichsdaten für dieses System zur Verfügung stehen, und die für eine geochemische Berechnung notwendigen (Pitzer) Modelle und Parameter nicht ausreichend sind. Unter Annahme, dass sich die Ionenaktivitäten von Milieu A vereinfacht durch eine Lösung mit $5,3 \text{ m NaNO}_3 + 2,4 \text{ m Na}_2\text{SO}_4$ abbilden lassen, ergibt sich ein orientierender Wert von $\log [\text{Sr(II)}] = -4,5 \pm 1,5$.

Für Am und Pu stehen keine passenden experimentellen Daten zur Quantifizierung der Löslichkeit in alkalischer hochkonzentrierter $\text{Na}^+\text{-K}^+\text{-NO}_3\text{-SO}_4^{2-}$ -dominierter Lösung (Milieu A) zur Verfügung. Aufgrund der Redoxverhältnisse in der MAW-Kammer, die erwartungsgemäß im Bereich redox-neutral bis stark reduzierend liegen, ist jedoch davon auszugehen, dass Americium als Am(III) und Plutonium als Pu(IV) vorliegt, wie aus den orientierenden, für verdünnte Ionenstärken berechneten Pourbaix-Diagrammen in Abbildung 17 hervorgeht. Weiterhin ist für die stark alkalischen Bedingungen belastbar anzunehmen, dass für beide Radionuklidoxidationsstufen die Löslichkeit durch Gleichgewichte zwischen (hydr)oxidischen Festphasen und gelöster Hydrolysespezies kontrolliert werden. Die Löslichkeit letzterer sind auf Basis des aktuellen Kenntnisstandes als relativ unabhängig von der Ionenstärke einzustufen. Entsprechend ist unter diesen Bedingungen kein spezifischer Einfluss der Anionen Nitrat bzw. Sulfat sowie der Kationen Natrium, Kalium, und, aufgrund der geringen Konzentration, Calcium auf die Am(III)- bzw. Pu(IV)-Löslichkeit zu erwarten. Als Löslichkeitswerte ergeben sich $\log [\text{Am(III)}] = -8 \pm 1,5$ und $\log [\text{Pu(IV)}] = -7,9 \pm 1$, wobei eine relativ hohe Ungewissheit aufgrund der genannten Einschränkungen besteht.

²⁸ Die eckigen Klammern stehen im Folgenden für molale Konzentrationen (Mol/kg H₂O). Die angegebenen Werte stellen somit die Größenordnung der löslichkeitsbegrenzten molalen Maximalkonzentration für das jeweilige Element dar.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	 BUNDEGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

Blatt: 60

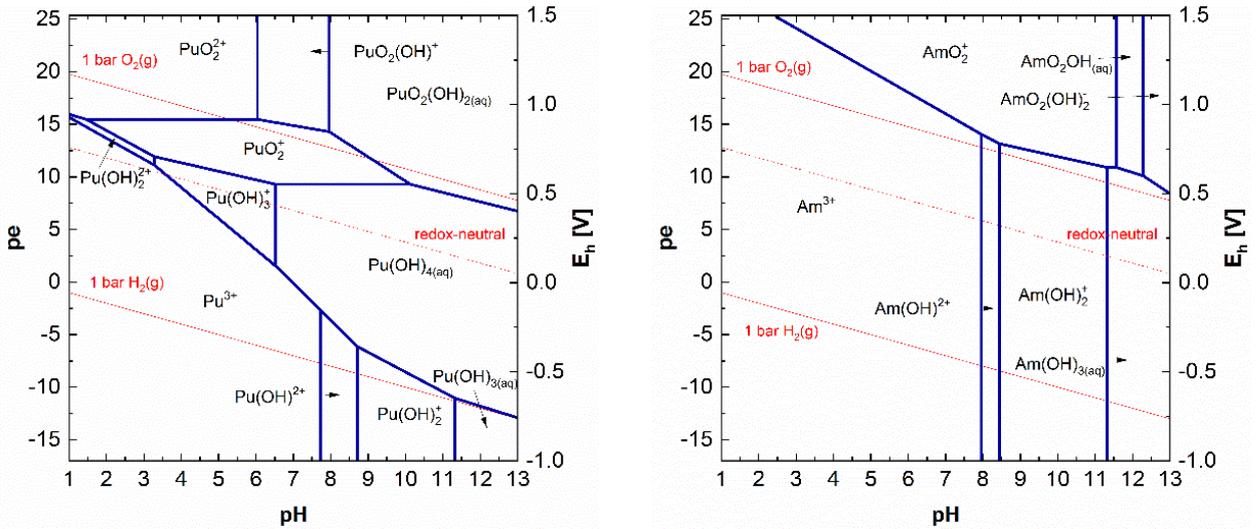


Abbildung 17: Pourbaix-Diagramme für Plutonium und Americium, berechnet für $[An] = 10^{-11}$ M in 0,1 M NaCl unter Verwendung der Daten aus [40].

In schwach-alkalischer $MgCl_2$ -dominierter Lösung (Milieu B) dominieren die Oxidationsstufen Am(III) bzw. Pu(IV). Unter sehr stark reduzierenden Bedingungen, die sich z. B. durch Korrosion von metallischem Eisen bilden, kann sich potentiell auch Pu(III) bilden. Experimentelle Studien zum Löslichkeitsverhalten von Am(III), Pu(III) und Pu(IV) für die gemischten Salzlösungen gemäß Tabelle 7 liegen nicht vor. Im Falle von Am(III) und Pu(III) spielen gemäß aktuellem Kenntnisstand spezifische Wechselwirkungen mit Chlorid (löslichkeitskontrollierend ist eine gemischte An-Cl-OH Festphase) sowie Sulfat (dominierende gelöste An-Spezies ist ein An-Sulfat-Komplex) eine wesentliche Rolle. Na^+ und K^+ beeinflussen erwartungsgemäß die Aktivität der Lösung in Form von Ionenstärkeeffekten, weisen jedoch keinen spezifischen Effekt auf das vorherrschende An(III)-Löslichkeitsgleichgewicht auf. Das betrachtete Lösungssystem kann daher vereinfachend anhand einer generischen Lösung mit $4,3 \text{ mol kg}^{-1} \text{ H}_2\text{O}^{-1} \text{ MgCl}_2 + 0,36 \text{ mol kg}^{-1} \text{ H}_2\text{O}^{-1} \text{ MgSO}_4$ abgeleitet werden, was hinsichtlich Ionenstärke, Chloridgehalt sowie Sulfatkonzentration der zu betrachteten Lösungszusammensetzung in Tabelle 7 sehr nahekommt. Die entsprechenden Löslichkeitswerte liegen sowohl für Am(III) als auch Pu(III) bei $\log [An(III)] = -4,9 \pm 1$. Im Falle von Pu(IV) ist das vorherrschende Löslichkeitsgleichgewicht primär durch Wechselwirkung zwischen fester und gelöster (hydr)oxidischer Spezies geprägt. Ein spezifischer Einfluss der vorherrschenden, potentiell reaktiven Stoffe Sulfat und Chlorid auf die Pu(IV)-Löslichkeit ist nicht zu erwarten. Vielmehr spielen hier die Gesamtionenstärke und die daran gekoppelten Aktivitätseffekte eine Rolle. Die Löslichkeit kann daher in guter Näherung anhand einer 4,5 m $MgCl_2$ -Lösung ermittelt werden, für die sich das Pu(IV)-Verhalten gut ableiten lässt. Die entsprechenden Löslichkeitswerte liegen bei $\log [Pu(IV)] = -7,9 \pm 1$. Nähere Erklärungen sind im Anhang G ausgeführt.

Im Falle der alkalischen Ca-Cl- NO_3 -reichen Lösung (Milieu C) liegen Americium als Am(III) und Plutonium als Pu(IV) vor. In beiden Fällen ist das Löslichkeitsgleichgewicht primär durch Wechselwirkung fester und gelöster (hydr)oxidischer Spezies bestimmt. Für die gemischten Salzsysteeme gemäß Tabelle 7 stehen keine expliziten experimentellen Daten bzw. Modelle zur Verfügung. Allerdings ist sowohl für Am(III) als auch Pu(IV) ein spezifischer Einfluss auf die Radionuklidlöslichkeit lediglich durch Ca^{2+} zu erwarten (ternäre Komplexe), nicht jedoch durch Na^+ , K^+ sowie Cl^- und NO_3^- (keine Bildung spezifischer Na-, K-, Cl-, NO_3^- -haltiger Festphasen oder Komplexe bei den betrachteten pH_m -Bedingungen). Letztere tragen jedoch zu Aktivitätseffekten (Ion-Ion-Wechselwirkungen) bei, die relativ gut eingeschätzt werden können. Weiterhin ist von keinem die Radionuklidlöslichkeit erhöhenden Effekt durch die Spuren an Sulfat auszugehen. Die Löslichkeit von Am(III) und Pu(IV) wird daher anhand einer generischen Lösung mit 4,0 m $CaCl_2$ abgeschätzt, was

Projekt NAAN	PSP-Element NNNNNNNNNN	Funktion/Thema NNAAANN	Komponente AANNNA	Baugruppe AANN	Aufgabe AAAA	UA AA	Lfd Nr. NNNN	Rev. NN	 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 61

eine leichte Überbewertung der Ca^{2+} -Konzentration (bzw. der Löslichkeit) bei gleichzeitiger leichter Unterbewertung der Gesamtionenstärke darstellt (bzw. der Löslichkeit), wobei sich die gegenläufigen Trends hinsichtlich der Löslichkeit ungefähr aufheben. Für diese Bedingungen ist eine verlässliche Datenbasis sowohl für Nd(III)/Am(III) bzw. Pu(IV) vorhanden. Es ergeben sich Werte von $\log [\text{Am(III)}] = -6,5 \pm 0,5$, und $\log [\text{Pu(IV)}] = -7,5 \pm 0,5$. Nähere Erklärungen sind im Anhang G ausgeführt.

Allgemein gilt: Da für Am(III) und Pu(III) keine systematischen experimentellen Löslichkeitsuntersuchungen in konzentrierter MgCl_2 - bzw. CaCl_2 -Lösung zur Verfügung stehen, wird deren Verhalten anhand der sehr guten experimentellen und thermodynamischen Datenbasis des Analogon Nd(III) abgebildet. Die angegebenen Fehlergrenzen ergeben sich als Experteneinschätzung bzw. basierend auf einer Überprüfung anhand von vorhandenen Einzelmessungen mit Am(III). Wesentliche, hierbei berücksichtigte Faktoren sind i) die Qualität und Streuung der zugrundeliegenden experimentellen Rohdaten, ii) die Abweichung zwischen generischer und berechneter Lösungszusammensetzung, iii) das Ausmaß der Abhängigkeit der Löslichkeit im betrachteten Bereich, iv) die notwendige Analogiebetrachtung $\text{Am(III)/Pu(III)} = \text{Nd(III)}$.

Tabelle 8: Radionuklidlöslichkeit (molale Skala „ $\text{mol kg}^{-1} \text{H}_2\text{O}^{-1}$ “) für die beiden betrachteten Lösungsbedingungen. Die Ermittlung der Werte erfolgte anhand vergleichbarer generischer Lösungen, siehe Text.

	NaNO_3 -dominierte Lösung (Milieu A)	MgCl_2 -dominierte Lösung (Milieu B)	Ca-Cl-NO_3 -reiche Lösung (Milieu C)
Cs = Cs(I)	$\log [\text{Cs(I)}] > -1$	$\log [\text{Cs(I)}] > -1$	$\log [\text{Cs(I)}] > -1$
Sr = Sr(II)	$\log [\text{Sr(II)}] = -4,5 \pm 1,5$	$\log [\text{Sr(II)}] = -4,6 \pm 0,5$	$\log [\text{Sr(II)}] = -2,5 \pm 0,5$
Pu = Pu(IV) bzw. Pu(III)	$\log [\text{Pu(IV)}] = -7,9 \pm 1$	$\log [\text{Pu(IV)}] = -7,9 \pm 1$ $\log [\text{Pu(III)}] = -4,9 \pm 1$	$\log [\text{Pu(IV)}] = -7,5 \pm 0,5$
Am = Am(III)	$\log [\text{Am(III)}] = -8 \pm 1,5$	$\log [\text{Am(III)}] = -4,9 \pm 1$	$\log [\text{Am(III)}] = -6,5 \pm 0,5$

Bezüglich des Einflusses von Nitrat (der in Tabelle 8 bereits berücksichtigt ist) gilt folgendes: Chloridreiche Lösungen mit Relevanz für die Schachanlage Asse II unterscheiden sich von nitratreichen Lösungen trivialerweise primär durch das vorhandene Anion, die dominanten kationischen Lösungsbestandteile (Na, K, Mg, Ca) bleiben jedoch gleich. Hinsichtlich der Bewertung von Ionenstärkeeffekten auf die Radionuklidlöslichkeit ist davon auszugehen, dass Prozesse in nitratdominierten und chloriddominierten Lösungen nicht identisch sind, jedoch prinzipiell vergleichbar. Somit ist eine orientierende Einschätzung von Ionenstärkeeffekten in nitrathaltigen salinaren Lösungen durch den Vergleich mit analogen chloridreichen Lösungen möglich.

Nitrat hat zudem die Charakteristik, schwache Komplexe mit Radionukliden wie Americium oder Plutonium zu bilden. Dieses wird z. B. in stark salpetersauren Lösungen offenbar, wo durch spektroskopische Befunden eindeutig Actinid-Nitratkomplexe nachgewiesen wurden und entsprechende thermodynamische Daten für diese Systeme vorhanden sind. In wässrigen Lösungen ist jedoch immer Hydroxid vorhanden, wobei sich die Konzentration dieses sehr stark komplexierenden Liganden als Funktion des pH-Werts ganz wesentlich ändert. Während im sauren Bereich die Hydroxidkonzentration vernachlässigbar ist, steigt sie im neutralen pH-Bedingungen an und wird letztlich in hyperalkalinen Systemen (Anwesenheit von Zement) absolut dominant. Entsprechend wird auch bei sehr hohen Nitratkonzentrationen in Lösung eine Nitratkomplexierung von Actiniden mit steigendem pH-Wert zunehmend von der Hydroxidkomplexierung verdrängt. Gerade bei alkalischen pH-Bedingungen werden dementsprechend ausschließlich hydroxidische

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 62

Komplexe von Am und Pu erwartet. Die Einschätzung von Radionuklidlöslichkeiten in nitrat-reichen Lösungen kann entsprechend der verschiedenen pH-Bedingungen zumindest orientierend erfolgen.

5.5 Radionuklidfreisetzung aus den Abfallgebinden

Mit der Konzeptualisierung des Fasskegels sowohl im hydraulischen Modell (Kapitel 3.6) als auch im Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude als Abfallmelange können die Prozesse bei der Radionuklidfreisetzung aus den Abfallgebinden selbst nicht modelliert werden. Diese Prozesse führen zu einer zeitlich verzögerten Verfügbarkeit der Radionuklide für den Transport aus dem Fasskegel und haben damit potentiell auch einen erheblichen Einfluss auf den Radionuklidaustrag aus der MAW-Kammer.

Die Radionuklidfreisetzung aus den Abfallgebinden beruht hauptsächlich auf dem diffusiven Transport der Radionuklide aus dem Porenraum der Matrices in die umgebende Lösung (siehe [34]). Dieser Transport wird von den Konzentrationsgradienten innerhalb des Porenraums der Abfallmatrix sowie zwischen Abfallmatrix und Umgebungslösung angetrieben. Die Transportgeschwindigkeit wird einerseits von radionuklid- und milieuspezifischen Eigenschaften der Löslichkeitslimitierung und der Sorption und andererseits von den Transportparametern, wie dem effektiven Diffusionskoeffizienten, beeinflusst.

Da die Entwicklung des geochemischen Milieus innerhalb der Abfallmatrices mit Ungewissheiten behaftet ist und selbst für die zu erwartenden initialen Milieus aufgrund der Beladungen mit NaNO_3 kaum Daten zur Sorption und Löslichkeit vorliegen, wird die zeitliche Verzögerung, die sich aus der Freisetzung aus den Abfallmatrices ergibt, für einen stabilen Lösungsinhaltsstoff ohne nennenswerte Rückhaltung abgeleitet. Diese zeitliche Verzögerung wird im Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude auf sämtliche Radionuklide übertragen. Damit wird zwar die Freisetzung der stark sorbierenden und löslichkeitslimitierten Radionuklide aus den Abfallmatrices überschätzt, dieser Effekt wird aber z. T. durch die Berücksichtigung von Löslichkeitslimitierung außerhalb der Abfallgebände im Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude kompensiert.

Es muss davon ausgegangen werden, dass die Fässer aufgrund von Beschädigungen bei der Einlagerung und Korrosion keinen bedeutenden Betrag zur zeitlichen Verzögerung der Freisetzung leisten. Die Fässer werden also bei der Betrachtung der Radionuklidfreisetzung aus den Abfallgebinden nicht berücksichtigt.

5.5.1 Radionuklidfreisetzung aus den zementierten Abfallgebinden

Initial ist die Zementmatrix von einer geringen transportwirksamen Porosität und einem geochemischen Milieu entsprechend dem Milieu A in Kapitel 5.3 charakterisiert. Durch den (diffusiven) Austausch von Zementporenlösung und der MgCl_2 -reichen Umgebungslösung kommt es nicht nur zum Austrag von Radionukliden aus den zementierten Abfällen, sondern auch zum Eintrag von Ionen der Umgebungslösung (hauptsächlich Mg^{2+} und Cl^-). Dieser Austausch mit der Umgebungslösung führt langfristig zur Korrosion der Zementmatrix, was mit einer Erhöhung der transportwirksamen Porosität und Entwicklung des geochemischen Milieus im Porenraum in Richtung Milieu C einhergeht.

Für die Freisetzung von Radionukliden aus zementierten Abfallfässern (deren Matrix und Beladung weitgehend denen der MAW-Abfälle entspricht) in MgCl_2 -reicher Umgebungslösung liegen umfangreiche Ergebnisse aus experimentellen [29], [51], [52] und modelltechnischen [50], [34] Untersuchungen vor. Diese Ergebnisse bei uneingeschränktem Lösungskontakt der Zementkörper zeigen, dass die Freisetzung eines stabilen Tracers ohne nennenswerte Sorption und

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 63

Löslichkeitsbegrenzung vereinfachend durch eine vollständige Freisetzung mit konstanter Rate innerhalb von 20 bis 30 Jahren angenähert werden kann.

5.5.2 Radionuklidfreisetzung aus den bituminierten Abfallgebinden

In der Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachanlage Asse II [56] wird der unzureichende Kenntnisstand zur Radionuklidmobilisierung aus bituminierten Abfallgebinden als Defizit ausgewiesen und der Zeitbedarf zum Beheben des Defizits als langfristig eingeschätzt. Aufgrund des hohen Zeitbedarfs ist das Defizit bis heute nicht behoben. Entsprechend kann im Rahmen der vorliegenden Arbeiten hier nur eine vorläufige, grobe Abschätzung der Radionuklidfreisetzung aus den bituminierten Abfallgebinden auf Grundlage einer begrenzten Literaturrecherche vorgenommen werden.

Die an der Radionuklidfreisetzung aus den bituminierten Abfallgebinden beteiligten Prozesse sind weitgehend dieselben, wie bei den zementierten Abfällen: Diffusions-dominiertes Transport in der transportwirksamen Porenstruktur mit Löslichkeitslimitierung und Sorption. Die Porenstruktur im Bitumen bildet sich allerdings erst im Verlauf der Zeit durch abiotische Degradation, Wasseraufnahme, Radiolyse und vor allem dem Herauslösen der Salzbeladung beim Kontakt mit Lösung aus [81]. Ein Ansatz, der die Freisetzung nicht-sorbierender und nicht-löslichkeitslimitierter Radionuklide aus den bituminierten Abfallgebinden näherungsweise auf Grundlage der Auslaugungsversuche von [57] ableitet, ist in Anhang F dargestellt. Der Ansatz basiert, ebenso wie die unten genannten experimentellen Ansätze, auf der Freisetzung der Komponenten Na^+ und NO_3^- aus den Abfallgebinden. Mit diesem Ansatz wird der Zeitraum bis zu vollständigen Freisetzung aus den bituminierten Abfallmatrizes mit ca. 90.000 Jahren berechnet.

Irisawa et al. [48] berichten effektive Diffusionskoeffizienten für die Auslaugung von bituminierten Abfällen in de-ionisiertem Wasser und in der Porenlösung von Tonstein (je nach Salzbeladung) in der Größenordnung von $10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ – $10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$. Diese würde die Freisetzung von nicht-reaktiven Radionukliden aus einem typischen Abfallfass der MAW-ELK innerhalb von 1.000 bis 10.000 Jahren bedeuten. Ein ähnlicher Diffusionskoeffizient von $1,4 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ wurde von van Iseghem et al. [96] für die Auslaugung der Salzbeladung in destilliertem Wasser bestimmt.

Während die oben genannten Diffusionskoeffizienten unter der Annahme einer konstanten, linearen Freisetzungsrates über die Quadratwurzel der Zeit bestimmt wurden, berichten weitere Autoren von mehreren diffusionsgesteuerten Prozessen unterschiedlicher Geschwindigkeit im Verlauf von Langzeitexperimenten im Kontakt von bituminierten Gebinden mit Wasser: Während zu Beginn mit destilliertem Wasser als Umgebungslösung Diffusionskoeffizienten in der Größenordnung von $10^{-15} \text{ m}^2/\text{s}$ ermittelt wurden, stieg die Diffusionsgeschwindigkeit nach 100 Tagen im Zusammenhang mit der Quellung in Folge der Wasseraufnahme des Bitumens auf Werte um $10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ – $10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ an [71]. Der gleiche Zusammenhang zwischen Anstieg der Diffusionsgeschwindigkeit und Quellung wurde von Bleyen et al. [24] nach einer Versuchsdauer von ca. 2 Jahren mit einer Umgebungslösung mit 0.1 M KOH festgestellt. Die Quellung der Gebinde ist auf das osmotisch gesteuerte Eindringen von Wasser in die Gebinde zurückzuführen [67]. Durch fortschreitende Wasseraufnahme erfolgt die Auflösung der Salze unter Ausbildung einer porösen Struktur. Die Eindringtiefe dieser porösen, durchlässigen Struktur zeigt in Experimenten ebenfalls einen Zunahme proportional zur Quadratwurzel der Zeit [43]. Aufgrund dieses Zusammenhanges zwischen Quellung und Diffusionskoeffizienten ist davon auszugehen, dass die langfristige Freisetzungsgeschwindigkeit in salinarem Milieu durch die geringere Wasseraktivität gegenüber der Freisetzung in destilliertem Wasser reduziert ist. Diese Tendenz wird auch durch Versuche mit unterschiedlichen Salzgehalten in der Umgebungslösung der bituminierten Gebinde bestätigt [57], [71]. Ebenso kann sich der

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 64

Umgebungsdruck unter in-situ Bedingungen einschränkend auf die Quellung der Gebinde und damit auf die diffusive Freisetzung auswirken.

Aufgrund der großen Ungewissheiten bei der Freisetzung von Radionukliden aus den bituminierten Abfällen wird hier vorläufig von einem Freisetzungszeitraum zwischen 1.000 und 100.000 Jahren ausgegangen.

Es sei darauf hingewiesen, dass bei der diffusiven Freisetzung sowohl aus den zementierten als auch aus den bituminierten Abfallgebänden in der frühen Phase der Freisetzung (entsprechend dem Wurzel-Zeit-Gesetz) erheblich größere Freisetzungsraten zu erwarten sind, die nur ungenügend durch eine lineare Freisetzung mit konstanter Rate wiedergegeben werden.

6 Schnittstelle zum Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude

6.1 Modellierung im Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude

Wesentliche Ergebnisse der Modellierung der Fluidbewegung im hydraulischen Modell und der Betrachtungen zur Radionuklidfreisetzung und –rückhaltung sollen auf geeignete Weise in das Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude (Modell des Grubengebäudes D8 für Berechnungen des Fluid- und Radionuklidtransports mit KAFKA und LOPOS; [41]) übertragen werden. Solche Ergebnisse sind:

- die zeitliche Entwicklung der Gasbildung (infolge der Metallkorrosion) im Fasskegel
- die Freisetzung von Radionukliden aus den Abfallmatrizes der Fässer und
- die Rückhaltung von Radionukliden infolge Löslichkeitsbegrenzung und Sorption.

Die Ausbildung eines Gaspolsters wird von KAFKA näherungsweise berechnet und muss nicht übergeben werden.

Die Übertragung von Ergebnissen aus den Modellrechnungen und Expertisen in Kapitel 5 auf das Nahfeldmodell des Grubengebäudes muss einerseits der Struktur des Nahfeldmodells, andererseits der vereinfachten Abbildung von Prozessen in KAFKA und LOPOS Rechnung tragen. Beide resultieren aus dem bzw. sind beeinflusst durch das Modellkonzept zur Modellierung der Fluidbewegung und des Radionuklidtransports im Grubengebäude (siehe „Methodik der Modellrechnungen zur Konsequenzenanalyse“ in [21]). Hinsichtlich der Struktur des Strömungs- und Transportmodells Grubengebäude [41] ist hier hervorzuheben, dass die Modellkammer MAW nur den Abfallkegel (als Melange aus Gebinden und Sorelbeton), aber nicht die Sorelbetonglocke charakterisiert. Die liegende Schwebel (S-UMAW) bildet die Verbindung der MAW-Kammer mit ihrem Nahbereich auf der 532-m-Sohle. Der Nahbereich der MAW-Kammer umfasst im Strukturmodell die Modellkammer UMAW, die die Abbaue 8a/532 und 8b/532 abbildet. Diese Abbaue sind durch Durchhiebe (Modellstrecke H-UMAW) mit dem Oberen Baufeld in der Südflanke verbunden. Die hydraulischen Wegsamkeiten in der Sorelbetonglocke (Rissinventar), in den Konturzonen und in der hangenden Schwebel der MAW-Kammer (Risse, verfüllte Bohrungen) sind über den Modellschacht V-MAW zusammenfassend abgebildet, welcher die Verbindung der MAW-Modellkammer mit dem Oberen Baufeld in der Südflanke im Hangenden auf der 490-m-Sohle abbildet.

Die zeitliche Entwicklung von Volumina, Druck, Sättigung und Konzentration von Lösungsinhaltsstoffen wird im Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude durch geeignete vereinfachte Modellansätze abgebildet, die bei der Übertragung von Ergebnissen aus den o. g. Modellrechnungen und Expertisen berücksichtigt werden müssen. Dies betrifft u. a. (siehe [21]):

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AAANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

Blatt: 65

- a) ein vereinfachter Ansatz zur expliziten Beschreibung der zeitlichen Entwicklung der Gasbildung durch zwei Raten erster Ordnung (in KAFKA) bzw. durch einen einheitlichen exponentiellen Ansatz mit maximal drei unterschiedlichen Stoffgruppen (in LOPOS).

Parametrisierung der Gasbildung in KAFKA:

$$r_i^g = r_i^{gk} + r_i^{gm}$$

$$r_i^{gk} = \begin{cases} \frac{M^g}{V_{mol}^g} \cdot V_{gk,l} \cdot \lambda_{gk,l} \cdot e^{-\lambda_{gk,l}(t-t_{i,0}^{gk})} & \text{für } t \geq t_{i,0}^{gk} \\ 0 & \text{für } t < t_{i,0}^{gk} \end{cases}$$

$$r_i^{gm} = \begin{cases} \frac{M^g}{V_{mol}^g} \cdot V_{gm,l} \cdot \lambda_{gm,l} \cdot e^{-\lambda_{gm,l}(t-t_{i,0}^{gm})} & \text{für } t \geq t_{i,0}^{gm} \\ 0 & \text{für } t < t_{i,0}^{gm} \end{cases}$$

mit:

- r_i^g Gesamte Gasbildungsrate im Segment i [$\text{kg} \cdot \text{a}^{-1}$]
- r_i^{gk} Gesamte Gasbildungsrate durch Reaktion 1 im Segment i [$\text{kg} \cdot \text{a}^{-1}$]
- r_i^{gm} Gesamte Gasbildungsrate durch Reaktion 2 im Segment i [$\text{kg} \cdot \text{a}^{-1}$]
- $t_{i,0}^{gk}$ Zeitpunkt des Beginns der Gasbildung durch Reaktion 1 im Segment i [a]
- $t_{i,0}^{gm}$ Zeitpunkt des Beginns der Gasbildung durch Reaktion 2 im Segment i [a]
- V_{mol}^g molares Gasvolumen [$\text{m}^3_{\text{STP}} \cdot \text{mol}^{-1}$]
- M^g molare Masse des Gases [$\text{kg} \cdot \text{mol}^{-1}$]
- $V_{gk,l}$ gesamtes Gasvolumen bei STP, das durch Reaktion 1 im Segment i entsteht [m^3_{STP}]
- $V_{gm,l}$ gesamtes Gasvolumen bei STP, das durch Reaktion 2 im Segment i entsteht [m^3_{STP}]
- $\lambda_{gk,l}$ Gasbildungskonstante für Reaktion 1 [a^{-1}]
- $\lambda_{gm,l}$ Gasbildungskonstante für Reaktion 2 [a^{-1}]

Parametrisierung der Gasbildung in LOPOS:

$$r_G = \eta \cdot \sum_j m_{0,j} \cdot \Gamma_j \cdot u_j \cdot e^{-u_j t}$$

mit:

- j Komponenten der Gasbildung
- r_G Gasbildungsrate [mol/a]
- η Anteil der betroffenen Stoffmenge [-]
- m_0 Anfangsmasse [kg]
- Γ spezifische Gasmenge [mol/kg]
- u Umwandlungsrate [1/a]

- b) ein vereinfachter Ansatz zur Parametrisierung der Radionuklidfreisetzung aus den Abfällen [21]: Der konzeptuelle Modellansatz für die Radionuklidfreisetzung aus den Abfallgebänden beschreibt eine mit konstanter Rate zunehmende Verfügbarkeit des Radionuklid-Inventars mit dem Korrosionsfortschritt von zementierter bzw. bitumierter Abfallmatrix der Gebinde sowie mit dem Korrosionsfortschritt der verlorenen Betonabschirmung (VBA). Die Radionuklidmobilisierung wird rechnerisch als Prozess modelliert, der sich aus zwei Schritten zusammensetzt: Im ersten Schritt treten die Radionuklide aus dem Abfall in ein virtuelles Depot über, das dem ELB zugeordnet ist. Aus diesem virtuellen Depot treten die Radionuklide

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 66

im zweiten Schritt unter Berücksichtigung der maximalen Elementkonzentrationen in Lösung über, wobei das Radionuklidinventar im virtuellen Depot entsprechend abnimmt. Für inventarbestimmte Radionuklide erfolgt der zweite Schritt instantan.

Der Übertritt des Radionuklids i aus dem Abfall mit der Konditionierung k in das virtuelle Depot (d.h. der erste Schritt), $j_{ki}(t)$, wird wie folgt parametrisiert:

$$j_{ki}(t) = \begin{cases} 0 & t \leq t_0 \\ I_{k,i}(t) & t_0 < t \leq t_0 + \Delta t_{Mob,k} \\ \Delta t_{Mob,k} & \\ 0 & t > t_0 + \Delta t_{Mob,k} \end{cases}$$

mit

$j_{ki}(t)$ Rate des Übertritts des Radionuklids i aus dem Abfall mit der Konditionierung k im ELB in das virtuelle Depot zur Zeit t [mol/a]

$I_{k,i}(t)$ eingelagertes Inventar des Radionuklids i im Abfall mit Konditionierung k im ELB, Zeitabhängigkeit ausschließlich aufgrund von Zerfallsprozessen [mol]

t_0 Beginn des Mobilisierungsprozesses [a]

$\Delta t_{Mob,k}$ Dauer bis zur vollständigen Mobilisierung der Radionuklide aus den Abfällen mit der Konditionierung k [a]²⁹

- c) ein vereinfachter Ansatz der Rückhaltung von Radionukliden durch Löslichkeitslimitierung durch maximale Elementkonzentrationen mit periodenweise konstanten Werten³⁰
- d) einer vereinfachten Abbildung der 2-Phasenflüsse mit sättigungsabhängiger relativer Permeabilität von Gas und Lösung, aber Vernachlässigung von Kapillardrücken (in KAFKA). Vereinfacht wird in KAFKA das Eindringen von Gas in einen vollständig mit Lösung gesättigten Bereich durch den Gaseindringdruck berücksichtigt. Der Gaseindringdruck ist der Kapillardruck bei der geringsten Gassättigung, bei dem eine zusammenhängende Gasphase existiert und ein Eindringen von Gas in die Flüssigphase möglich wird.

In LOPOS werden keine 2-Phasenflüsse abgebildet.

6.2 Übertragungen von Ergebnissen aus dem hydraulischen Modell und aus den Betrachtungen zur Radionuklidrückhaltung

Aus den Berechnungen mit dem hydraulischen Modell (Kapitel 5.1), den Betrachtungen zur Rückhaltung (Kapitel 5.4) und zur Freisetzung aus den Abfallgebänden (Kapitel 5.5) lassen sich für das Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude mit KAFKA und LOPOS folgende Parameter, inkl. deren Ungewissheiten, ableiten:

- I. Gasbildungsraten λ_{gk} und λ_{gm} Zeitpunkte des Beginns der Gasbildung t_0^{gm} und t_0^{gk} und gesamtes Gasvolumen der zwei Reaktionen V_{gk} und V_{gm} für KAFKA, Mengen von bis zu drei gasbildenden Stoffen m_0 und der Umwandlungsraten u für LOPOS aus dem zeitlichen Verlauf des zur Gasbildung verfügbaren Eisens im Detailmodell.
- II. Gaseindringdrücke der Sorelbetonglocke aus den verwendeten Kapillardruck-Sättigungs-Beziehungen bzw. dem berechneten Einsetzen von Gasflüssen bei zugehörigen Überdrücken im zeitlichen Verlauf der Sättigung im Abfallkegel und der Sorelbetonglocke.

²⁹ In den bisherigen Modellrechnungen war der Referenzwert für zementierte Abfälle in MAW 10 Jahre und jener für bituminierte Abfälle 70 Jahre (Bandbreite 50 bis 150 000 Jahre)

³⁰ Sorption wird mangels belastbarer Daten nicht belastet (siehe Kapitel 5.4.2).

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 67

- III. Beginn des Mobilisierungsprozesses t_0 (bisher Zeitpunkt des Lösungskontakts) und Dauer bis zur vollständigen Freisetzung von Radionukliden aus den Abfällen mit Konditionierung $\Delta t_{\text{Mob,k}}$ aus dem zeitlichen Verlauf der Sättigung im Abfallkegel³¹ und den Abschätzungen zur Radionuklidfreisetzung aus den Abfallgebänden.
- IV. Löslichkeitsgrenzen: gem. Kapitel 5.4 milieuhängig (Tab. 7, Milieus A, B und C; in Tab. 9 MgCl₂-reich/CaCl₂-reich), instantan wirksam und zeitlich konstant.

6.3 Daten und Szenarien

Im Folgenden werden Szenarien und deren Parametrisierungen auf Grundlage der Ergebnisse in den vorgängigen Kapiteln definiert, für die eine Analyse des Systemverhaltens mit dem Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude vorgeschlagen wird.

6.3.1 Gasbildung

Aus den berechneten Gasbildungsraten leiten sich drei Szenarien ab mit nachfolgenden Parametern (für KAFKA³²):

Tabelle 9: Parametrisierung der Gasbildung für das Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude.

	$\lambda_{gk} [a^{-1}]$	$V_{gk} [m^3_{STP}]$	$t_0^{gk} [a]$	$\lambda_{gm} [a^{-1}]$	$V_{gm} [m^3_{STP}]$	$t_0^{gm} [a]$
Basisfall	$1.39 \cdot 10^{-5}$	41 994	14.1	$1.80 \cdot 10^{-3}$	10 765	17.2
Szenario „geringe Gasbildung“	$5.69 \cdot 10^{-4}$	11 486	515	$5.22 \cdot 10^{-6}$	44 986	12 540
Szenario „hohe Gasbildung“	$4.91 \cdot 10^{-2}$	23 599	29.1	$3.05 \cdot 10^{-4}$	124 288	111

Das Szenario „geringe Gasbildung“ basiert auf Variationsrechnung Nr. 5 „verringerte Korrosionsrate (um Faktor 10)“ in Kapitel 4.10

Das Szenario „hohe Gasbildung“ basiert auf Variationsrechnung Nr. 8 „erhöhte Korrosionsrate (Faktor 10) und erhöhte Eisenmenge der Fässer (Faktor 2)“ in Kapitel 4.10

Die Parameter in Tabelle 9 wurden mit einem Gradienten-basierten Optimierungsalgorithmus anhand der Methode der kleinsten Fehlerquadrate an die mit dem hydraulischen Modell errechneten Zeitreihen der Gasbildung gefittet.

6.3.2 Gaseindringdruck (nur KAFKA)

Aus der Parametrisierung der 2-Phasenbeziehung (Abbildung 11: Van Genuchten – Mualem Modell für Kapillardruck-Sättigungsbeziehung und für die relativen Permeabilitäts-Sättigungsbeziehungen für Gas und Lösung. Abbildung 11) leitet sich ein Gaseindringdruck für die Sorelbetonglocke von 25 kPa ab. Über die Korrelation mit der Permeabilität (Davies Regression; siehe Anhang A) ergibt sich eine zu analysierende Bandbreite von Gaseindringdrücken von 9 kPa bis 500 kPa.

³¹ In LOPOS wird im Falle Entsättigung der Parameter «Behälterausfall» auf Null gesetzt. Radionuklide sind dann nicht mehr verfügbar.

³² Parametrisierung (fit) auf Zeitachse des Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 68

6.3.3 Radionuklidfreisetzung aus den Abfällen (nur LOPOS)

Für den Zeitraum der kongruenten Freisetzung der Radionuklide aus den zementierten Abfallgebänden werden drei Szenarien vorgeschlagen, die unterschiedliche Entwicklungen der Lösungsättigung bzw. –entsättigung im Abfallkegel abbilden.

- Szenario „Lösungsättigung“ beschreibt eine lang anhaltende Lösungsättigung im Fasskegel: Es werden nur die Abschätzungen in Kapitel 5.5.1 zugrunde gelegt. Der Zeitraum bis zur vollständigen Freisetzung der Radionuklide wird entsprechend mit 25 Jahren ab dem Zustrom der Lösung über die liegende Schwebel abgeschätzt ($\Delta t_{Mob,Z} = 25$ a).
- Szenario „temporäre Entsättigung“ beschreibt einen frühen Wechsel von Lösungsättigung und –entsättigung im Fasskegel: Es wird eine Kombination von verzögerter Freisetzung und temporärer Lösungsentsättigung im Fasskegel aufgrund der Gasspeicherung unterstellt. Für den Basisfall (Kapitel 5.1) wird eine vollständige Freisetzung der Radionuklide in Lösung bis zum Ende der partiellen Lösungsentsättigung nach ca. 500 Jahren abgeschätzt ($\Delta t_{Mob,Z} = 500$ a).
- Szenario „späte Entsättigung“ beschreibt eine langzeitige Lösungsentsättigung im Abfallkegel nach 300 Jahren: Der Zeitraum bis zur vollständigen Freisetzung der Radionuklide beträgt 25 Jahre ab dem Zufluss über die liegende Schwebel. Nach 200 Jahren ist das freigesetzte Inventar, das aufgrund von wirksamen Löslichkeitsgrenzen nicht aus dem Abfallkegel ausgetragen wurde, nicht mehr für den Transport verfügbar.

Für die Freisetzung aus den bituminierten Abfällen, $\Delta t_{Mob,B}$ schlagen wir unabhängig von der Entwicklung der Lösungsättigung im Fasskegel und basierend auf den Analysen in Kapitel 5.5.2 einen Zeitraum von 10.000 Jahre vor.

6.3.4 Löslichkeitslimitierung (nur LOPOS)

Anhand der Ableitung der Löslichkeitsbegrenzungen in Kapitel 5.4.3 werden die folgenden zeitlich konstanten Löslichkeitslimitierungen zur Implementierung im Strömungs- und Transportmodell Grubengebäude vorgeschlagen.

Szenario „Ca-betontes Milieu“: $\log[Am] = -6,5$; $\log[Pu] = -7,5$

Szenario „Mg-betontes Milieu“: $\log[Am] = -4,9$; $\log[Pu] = -7,9$

Szenario „Mg-betontes Milieu stark reduzierend“: $\log[Am] = -4,9$; $\log[Pu] = -4,9$

Es wird erwartet, dass die Lösungskonzentrationen von Cäsium und Strontium zu keinem Zeitpunkt durch die Löslichkeit begrenzt sind.

6.3.5 Transportzeit in der MAW-Kammer

Im Transportmodell Grubengebäude wird die MAW-Kammer als ein Kompartiment abgebildet, aus dem die Lösungsinhaltsstoffe mit der Lösung durch Verdrängung infolge Gasspeicherung, Diffusion und ggf. Durchströmung ausgetragen werden. Dadurch werden die räumlich differenzierten Prozesse innerhalb der MAW-Kammer nur rudimentär wiedergegeben. Die Tracer im hydraulischen Modell der MAW-Kammer weisen für den Basisfall eine Transportzeit von ca. 100 Jahren innerhalb der MAW-Kammer aus (siehe Kapitel 5.2). Sollte sich im Transportmodell des Grubengebäudes ein deutlich kürzerer Zeitraum für den Austrag der Tracers aus der MAW-Kammer ergeben, wäre die Differenz zu den mit dem hydraulischen Modell berechneten Transportzeiten den Freisetzungsräumen, Δt_{Mob} (siehe 6.1b) hinzuzufügen.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 69

7 Schlussfolgerungen und Empfehlungen

- Fluidbewegungen im Fasskegel sind komplex, da sie von verschiedenen Faktoren unterschiedlich beeinflusst werden: 2-Phasen-Flüssen (insbesondere der integralen Permeabilität der Sorelbetonglocke), chemischen Milieu, Korrosion und Degradation. Es lassen sich – ausgehend von Daten-, Prozess- und Modellungswissheiten – eine Reihe potenzieller Entwicklungen prognostizieren, die zu unterschiedlichen Freisetzungsszenarien der Radionuklide aus den Abfällen führen (können).
- Beim Eintreten des Notfalls und planmäßiger Realisierung der Notfallmaßnahmen in der MAW-Kammer wird die $MgCl_2$ -reiche Lösung über die liegende Schwebelage in die MAW-Kammer eintreten und die Abfallgebinde benetzen.
- Die aus der Benetzung resultierende Gasbildung kann eine temporäre Lösungsentsättigung im Fasskegel der MAW-Kammer hervorrufen, welche die Freisetzung von lösungsgebundener Radionuklide aus den Abfallmatrizes einschränkt.
- Ungewissheiten, hauptsächlich bezüglich der hydraulischen Eigenschaften der Sorelbetonglocke und der korrosiven Gasbildung, lassen keine eindeutige, verlässliche Prognose des Zeitraums und des Grades der Lösungsentsättigung im Fasskegel zu.
- Mit den zu erwartenden chemischen Milieus im Fasskegel wird die Gasbildung aufgrund der mikrobiellen Degradation des Bitumens als vernachlässigbar eingestuft. In der Folge wird auch der Transport von volatilen C-14 aus der MAW auf dem Gaspfad als nicht relevant erachtet.
- Als relevante Radionuklide lassen sich anhand der Radiotoxizität und deren Entwicklung Am-241, Cs-137, Pu-239, Pu-240, Pu-241 und Sr-90 ausweisen.
- Die Aufteilung des Inventars der Radionuklide auf die bituminierten und die zementierten Gebinde unterliegt Ungewissheiten, die sich auf die Prognose ihrer Freisetzung auswirken.
- Bedingt durch die vergleichsweise geringe Lösungsmenge und vergleichsweise hohen Nitratgehalt in den Fässern ist mit einer – im Vergleich zu den LAW ELB – hohen Nitratkonzentration zu rechnen, die das chemische Milieu beeinflusst.
- Für diese Milieubedingungen liegen weder experimentelle Daten noch Analogie vor. Dies beeinträchtigt die Prognostizierbarkeit der Rückhaltung.
- Für Cs(I) und Sr(II) ist keine signifikante Rückhaltung durch Sorption für die salinaren Bedingungen und kammer-spezifischen Mineralphasen belastbar zu quantifizieren. Löslichkeitsgrenzen lassen sich zwar ausweisen, werden aber aufgrund ihrer Höhe und des Inventars nicht wirksam.
- Für Am(III) und Pu(III)/Pu(IV) wird eine signifikante Rückhaltung durch Sorption für die kammer-spezifischen Bedingungen erwartet, die sich aber aufgrund der vergleichsweise hohen Nitratkonzentrationen nicht belastbar quantifizieren lassen. Für Pu-Isotope wird eine wirksame Löslichkeitslimitierung erwartet.
- Der Transport der Radionuklide in und aus der MAW-Kammer wird initial durch Advektion (Lösungsbewegungen) dominiert, jedoch mittel- bis langfristig von der Diffusion bestimmt.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
									Blatt: 70

- Gegenüber der bisher unterstellten instantanen Freisetzung bei Lösungskontakt (Inventarbestimmt) kann für die Freisetzung von Radionukliden aus den zementierten Abfällen ein Zeitraum von mehreren Jahrzehnten begründet werden.
- Der Zeitraum für die Freisetzung aus den bituminierten Abfällen ist von großen Ungewissheiten geprägt. Als untere Grenze wird eine Freisetzung innerhalb von 1000 Jahren geschätzt, was über derjenigen der zementierten Abfälle liegt.
- Gasbildung, Freisetzung aus den Abfallgebänden und Rückhaltung lassen sich mit den zur Verfügung stehenden Modellansätzen von KAFKA und LOPOS durch die gewonnenen Daten modifizieren und somit die Prozesse in der MAW-Kammer realitätsnäher abbilden.
- Die verbleibenden Ungewissheiten lassen sich durch wenige Szenarien abdecken, deren Signifikanz auf den Radionuklidtransport aus dem Grubengebäude ins Deckgebirge nicht *a priori* abgeschätzt werden kann.
- Die Freisetzung von Radionukliden aus der MAW-Kammer bedarf in der frühen Nachbetriebsphase einer Transportzeit von ca. 100 Jahren. Wir empfehlen, diese Verzögerung durch die Tracer im KAFKA-Modell zu überprüfen und erforderlichenfalls im Freisetzungmodell zusätzlich zur Freisetzung aus den Abfallmatrizes zu berücksichtigen.
- Wir empfehlen, mit dem existierenden Datensatz D8 zum Bezugsfall (BF20) diese evaluierten Szenarien zu berechnen und vergleichend zu bewerten. Dabei ist eine weitaus geringere Relevanz der kurzlebigen Sr- und Cs-Isotope als im aktuellen Bezugsfall zu erwarten.
- Aus den Ergebnissen dieser Berechnungen lassen sich MAW-spezifische Kompatibilitätskriterien ableiten, die zur Bewertung von Maßnahmen im Nahbereich der MAW herangezogen werden sollten.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 71

Anhang A Kapillardruck-Sättigungsbeziehung und Sättigungsrelative Permeabilitätsbeziehungen

Es gibt in der Literatur zahlreiche Ansätze, die z. T. physikalisch begründet sind oder z. T. experimentelle Daten lediglich empirisch fitten. Speziell finden für sicherheitsanalytische Betrachtungen von Gasmigration aus geologischen Tiefenlagern mit granularer Gesteinsstruktur zumeist die Beziehungen von Brooks & Corey [26] und van Genuchten [97] Verwendung. Der generelle Funktionsverlauf der relativen Permeabilität in Abhängigkeit von der Sättigung ist ähnlich und lässt sich durch eine geeignete Parametrisierung näherungsweise überführen (weiterführende Diskussion für Beton und geklüftete poröse Medien im Anhang B).

Für die Kapillardruck-Sättigungsbeziehung und die Sättigungs-relative Permeabilitätsbeziehungen wird in diesem Modell das oft verwendete van Genuchten-Mualem Modell in Anerkennung der Grenzen der Anwendbarkeit für geklüftetes Salzgestein (Schweben, Konturzone etc.) und geringporösen, evtl. gerissenen Sorelbeton verwendet. Im Unterschied zum Modell von Brookes & Corey, bei dem das poröse Medium auch bei positivem Kapillardruck bis zum Gaseindringdruck vollständig lösungsgesättigt ist, beschreibt das van Genuchten-Modell einen kontinuierlichen Rückgang der Sättigung mit steigendem Kapillardruck.

Das van Genuchten-Modell beschreibt den Zusammenhang von Kapillardruck p_c und effektiver Lösungssättigung s_{el} mit [64]:

$$p_c = p_c^0 \left(s_{el}^{\frac{1}{m}} - 1 \right)^{1/n}.$$

Die Symbole m , n und p_c^0 bezeichnen empirische Parameter, wobei p_c^0 näherungsweise als Gaseindringdruck interpretiert werden kann³³. Die effektive Lösungssättigung ergibt sich aus der Lösungssättigung s_l

$$s_{el} = \frac{s_l - s_{rl}}{s_0 - s_{rl}}$$

wobei s_{rl} die residuale Lösungssättigung und s_0 die maximale Lösungssättigung bezeichnet.

Die Gassättigung erhält man durch

$$s_l + s_g = 1.$$

Die effektive Gassättigung ist definiert als

³³ p_c^0 bezeichnet strenggenommen den Wendepunkt der Funktion $p_c(s_{el})$.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 72

$$s_{eg} = 1 - \frac{s_l - s_{rl}}{1 - s_{rl} - s_{rg}}$$

mit s_{rg} als residuale Gassättigung.

Das entsprechende Mualem-Modell mit $m = 1 - \frac{1}{n}$ beschreibt die relative Permeabilität der Lösung als

$$k_l^r = \sqrt{s_{el}} \left[1 - \left(1 - s_{el}^{\frac{1}{m}} \right)^m \right]^2$$

und die der Gasphase als

$$k_g^r = \sqrt{1 - s_{eg}} \left(1 - s_{eg}^{\frac{1}{m}} \right)^{2m} .$$

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 73

Anhang B Diskussion und Begründung der hydraulischen Parameter

Für die Sorelbetonglocke SV-511-1 als zentrales Element des Sicherheitskonzepts in der MAW-Kammer werden hydraulische Charakteristika für den Zeitraum vor und mögliche Langzeitentwicklungen nach einer Benetzung des Sorelbeton mit Lösung unterschieden und dafür Daten abgeschätzt.

Die mittel- bis langfristigen Auswirkungen aufgrund mechanischer Verformungen des Betonkörpers sind von hoher Ungewissheit geprägt – vor allem die Bildung vernetzter Rissysteme, die den gesamten Betonkörper in vertikaler Richtung durchdringen werden. Hierzu gibt es weder spezifische Untersuchungen für dieses oder ein vergleichbares Bauwerk noch theoretische Expertenschätzungen zu integralen hydraulischen Parametern eines solchen Sorelbetonblocks. Daher werden nachfolgend integrale hydraulische Daten bei hinreichender und unzureichender Rissbeschränkung (im Verhältnis zu intaktem Sorelbeton) abgeschätzt (siehe Tabelle 10), nachfolgend erläutert und hinsichtlich ihrer Realitätsnähe eingeordnet. Als realistisch erachtete Entwicklungen werden bevorzugt betrachtet, Konservativitäten soweit wie möglich vermieden.

Tabelle 10: Hydraulische Basisdaten für die Modellkompartimente

Kompartimentname	Effektive Porosität / Bandbreite [-]	Permeabilität / Bandbreite [m ²]	Einordnung
Melange Fasskegel (MAW-Gebinde)	0,18 / +/- 0,06	>> 1·10 ⁻¹⁵	geschätzt (zu erwarten)
Sorelbetonglocke (SV-511-1) vor der Benetzung	0,06 / +/- 0,02	1·10 ⁻¹⁷ / (1·10 ⁻¹⁹ bis 1·10 ⁻¹⁵)	gemessen (realitätsnah)
Sorelbetonglocke (SV-511-1) nach der Benetzung mit Rissbeschränkung	0,06 / (0,01 bis 0,08)	5·10 ⁻¹⁸ / (< 10 ⁻²⁰ bis 10 ⁻¹⁷)	gemessen (zu erwarten)
Sorelbetonglocke (S-511-1) nach der Benetzung mit unzureichender Rissbeschränkung	0,08 / (0,06 bis 0,16)	5·10 ⁻¹⁷ / (1·10 ⁻¹⁶ bis 1·10 ⁻¹⁷)	geschätzt (nicht auszuschließen)
Sorelbetonglocke (SV-511-1) mit durchgehenden großen Rissen	> 0,08	> 1·10 ⁻¹⁶	what if Szenario
Schwebe 8a/511 (ALZ hangende Schwebe)	0,08	1·10 ⁻¹⁴	geschätzt (abdeckend)
Sohle 8a/511 (ALZ liegende Schwebe)	0,05 / +/- 0,02	1·10 ⁻¹⁵ / (5·10 ⁻¹⁶ bis 5·10 ⁻¹⁵)	geschätzt (zu erwarten)
aufgelockerte Konturzonen vor der Benetzung	0,05	5·10 ⁻¹⁵	geschätzt (abdeckend)
aufgelockerte Konturzonen nach der Benetzung	? abnehmend	? abnehmend	-

Nachfolgend werden die Parameter und Bandbreiten begründet.

Die hydraulischen Parameter für die Melange Fasskegel werden mit der Erwartungshaltung der Autoren begründet, dass sich durch die Abfallgebände weder Gassperren noch nennenswerte Strömungswiderstände ausbilden. Die Zwickelräume zwischen den Gebänden sind nur teilweise aufgefüllt. Nach Kontakt mit der in den Fasskegel eindringenden MgCl₂-reichen Lösung und dann einsetzender Korrosion der Metallfässer und Umwandlung der zementierten Abfallmatrizes werden stark vernetzte hydraulische Wegsamkeiten entstehen.

Die hydraulischen Parameter für die Sorelbetonglocke SV-511-1 folgen einer Prognose für den Baukörper aus Sorelbeton A1 und den langzeitigen gebirgsmechanischen Einwirkungen. Für die Charakterisierung des Baukörpers werden auf gegenwärtige Kennziffern der Baustoffproduktion und Baustoffverarbeitung der Rezeptur A1 und für die Einschätzung der lokalen gebirgsmechanischen Situation auf die Erkenntnisse der Standortüberwachung zurückgegriffen (vgl. u. a. [20]).

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 74

Die Rezeptur „Sorelbeton A1“ besteht aus Magnesiumoxid (MgO) und Steinsalzgrus (NaCl), die als Vorprodukt vermischt und mit MgCl₂-Lösung angemischt werden. Die mittlere Zusammensetzung enthält 11,3 Ma.% MgO, 63,7 Ma.% NaCl und 25,0 Ma.% MgCl₂-Lösung [20]. Die großtechnische Baustoffproduktion bedingt im Vorprodukt und in der Anmischlösung Bandbreiten, die sich u. a. auf Zusammensetzung des Baustoffes und Gefüge des Baukörpers – insbesondere auch auf Anteile der stabilen 3-1-8- und metastabilen 5-1-8 Sorelphasen – auswirken. Außerdem schwankt die Reaktivität des Bindemittels MgO chargenabhängig; eine hohe Reaktivität begünstigt die Bildung von 5-1-8 Sorelphasen. Die Baustoffanlage wird mit geringem Lösungsüberschuss gefahren, um eine störungsarme Förderung und einen geringen Reinigungsaufwand in den Rohrleitungen zu gewährleisten. Das beschleunigt die Umkristallisation von metastabilen 5-1-8- zu stabilen 3-1-8 Sorelphasen beim Abbinden.

In der frühen Phase des Abbindens – vor der Benetzung – werden sowohl metastabile 5-1-8- als auch stabile 3-1-8 Sorelphasen im Kornverband erwartet, wobei letztere dominieren. Deren Anteil nimmt mit dem fortschreitenden Abbinden und der verfügbaren Menge Anmischlösung weiter zu.

Der Sorelbeton A1 zeichnet sich u. a. durch hohes Fließvermögen, Sedimentationsstabilität, keine Entmischung, visko-elastoplastisches Verformungsverhalten und Kriechvermögen aus [86], [69]. Die gegenwärtige Produktion und Förderleistung lässt Betonschichten von 0,5m pro Tag in der MAW-Kammer erwarten, deren große Oberflächen quasi-adiabatische Verhältnisse bedingen. Dadurch wird die maximale Abbindetemperatur unter 80°C begrenzt und bereits am ersten Tag erreicht. Die Anbindung der Betonschichten ist bei Betonage „naß in naß“ oder hoher Betonfeuchte gegeben. Bei kurzzeitiger Unterbrechung während der Betonage werden keine größeren Diskontinuitäten im Betonkörper erwartet.

Die hydraulischen Daten für die Sorelbetonglocke vor der Benetzung basieren auf Untersuchungen in [17]. Es wird davon ausgegangen, dass durch die thermomechanische Beanspruchung des Betons beim Abbinden und Abkühlen (vor der Benetzung) weder vernetzte Rissysteme noch durchgehende Risse im Betonkörper gebildet werden; lokale Risse in der Kontur und auf inneren Schichtflächen sind nicht ausgeschlossen. Es wird erwartet, dass der Porenraum nicht oder nur noch gering mit Lösung gesättigt ist.

Mit der Benetzung von MgCl₂-Lösung erfolgt eine weitergehende Umkristallisation von 5-1-8 Phasen zu 3-1-8 Phasen (gleichartig der Sekundarkristallisation beim Abbinden), wobei das Volumen der Festphasen um ein Drittel zunimmt. Allerdings ist der für Lösung zugängliche Porenraum mit etwa 6% sehr gering. Folglich sind beim Vordringen von Lösung über den Porenraum auch die Veränderungen eher gering – ausgenommen der Lösungssättigung im Porenraum, die nunmehr gegeben ist. Bei einem wenig eingespannten Baukörper – wie anfangs der Sorelbeton SV-511-1 – kann beim Eindringen von Lösung und Umkristallisation eine Aufweitung des Korngefüges (Mikrorisse) und des Porenraums eintreten, da die Volumenausdehnung nicht durch den Form- bzw. Kraftschluss an der Kontur des Bauwerks verhindert wird. Die Mikrorisse können aber durch Umkristallisation von 5-1-8 Phasen zu 3-1-8 Phasen wieder verheilen. Die Aufweitung des Porenraums bzw. Gefüges und die o. g. Umkristallisation sind gegenläufige Prozesse, die quasi simultan im Baukörper stattfinden. In einem eingespannten Baukörper würde das zur „Selbstabdichtung“ führen [17]. In einem wenig eingespannten Baukörper ist der dominierende Prozess nicht klar, da der Anteil der noch verfügbaren 5-1-8 Phasen und damit die Intensität der Umkristallisation im Bereich der Risse nicht prognostiziert werden kann.

Der Ungewissheit der MgO-Reaktivität (bestimmt Anteil von 5-1-8 Phasen) und der Einspannung der Sorelbetonglocke wird dadurch Rechnung getragen, dass hydraulische Basisdaten für den Sorelbeton mit a) hinreichender und b) unzureichender Rissbeschränkung angegeben werden. Eine

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 75

Einspannung des Bauwerks ist dort gering, wo der Formschluss mit dem Gebirge nicht erfolgt ist oder das Gebirge die Spannungsveränderung (bzw. Verformung) nicht abtragen kann. Während ersteres in den Kontaktzonen mit den Abfallgebänden und der Firstkontur (Rauhigkeit, Abschalung) vorliegt, wird letzteres im oberen Bereich der MAW-Kammer erwartet [20] – insbesondere bei andauernder offener Standzeit auf der 490-m-Sohle und weiterer Entfestigung der Schweben. Rissssysteme in der Sorelbetonglocke werden somit nahe des Fasskegels und der Firstkontur erwartet. Dass sich diese Rissssysteme über mehrere Meter³⁴ ausweiten und verbinden, wird nicht für wahrscheinlich erachtet, aber auch nicht ausgeschlossen. Geschätzt wird eine Erhöhung der integralen Permeabilität um etwa eine Größenordnung; eine Prognose zu Rissweite und -öffnung im Bereich einer Vernetzung ist nicht möglich.

Den gesamten Betonkörper durchgehende Risse wären nur möglich, wenn die MAW-Kammer teilgefüllt keine stabilisierende Wirkung auf Pfeiler und Schweben ausüben würde, der Sorelbeton nicht qualitätsgerecht hergestellt bzw. eingebaut würde und/oder die Gebirgsspannungen bzw. gebirgsmechanische Beanspruchungen nicht abgetragen werden könnten. Eine solche Situation ist bei anforderungsgerechter Realisierung der Notfallplanung auszuschließen, wird aber als what if-Fall mit dem Modell betrachtet.

Die hydraulischen Parameter für die Auflockerungszonen in den Schweben und Konturbereichen folgen Einschätzungen zur Spannungsentwicklung und zur lokalen gebirgsmechanischen Situation im Bereich der MAW-Kammer aus der Standortüberwachung (vgl. u. a. [20]). Diese Erkenntnisse geben Tendenzen über die weitere Entfestigung bzw. Auflockerung des Gesteins oder deren gebirgsmechanische Stabilisierung in der zukünftigen Betriebsphase wieder, welche eine Einschätzung der Ausweitung oder Schließung der Auflockerungszonen (ALZ) zulassen. Demnach wird im unteren MAW-Bereich (Teufenbereich der 532-m- bis 511-m-Sohle) von einer gebirgsmechanischen Stabilisierung ausgegangen. Somit kann hier von einer gewissen Einspannung des Sorelbetons sowie von einer Abtragung der Verformungen und der Spannungsumlagerungen durch Pfeiler und Schweben ausgegangen werden. Der Grad der Konsolidierung (und damit der Einspannung) lässt sich jedoch nicht prognostizieren, da der Zeitraum der Konsolidierung bis zum Eintreten des Notfalls ungewiss bleibt. Im oberen MAW-Bereich (Teufenbereich der 490-m-Sohle) werden Pfeiler und Schweben nicht stabilisiert. Es ist daher hier von einer Ausweitung der Entfestigung des Gesteins auszugehen, da der Sorelbeton im Firstbereich der MAW-Kammer weder hinreichend eingespannt wird, noch eine Abtragung der Verformung und der Spannungen durch die hangende Schweben zu erwarten ist. Die zeitliche Entwicklung lässt sich jedoch auch nicht prognostizieren, da die weitere offene Standzeit der MAW-Kammer, welche den Grad der Entfestigung bestimmt, ungewiss bleibt.

Hinsichtlich der Konturzonen in der MAW-Kammer ist noch hinzuzufügen, dass diese seit der Einlagerung weder beraubt und nachgeschnitten noch anderweitig stabilisiert wurden, so dass hier starke Auflockerungen und Abschaltungen vorliegen. Die Auflockerungszonen werden vor einer Verfüllung mit Sorelbeton nicht entfernt, so dass hoch durchlässige Konturzonen verbleiben. Nach dem Einbau des Sorelbetons (beim Eintreten des Notfalls) wird das Gebirge infolge der Feuchtekonvergenz schnell auf diesen auflaufen und die ALZ in der Kontur schließen – vor allem im Bereich der Pfeiler und der Sohle³⁵. Erkenntnisse über Intensität und zeitlichen Verlauf des Schließens der ALZ liegen jedoch nicht vor.

³⁴ Betrachtet man den Abstand zwischen Fasskegel und Firste und unterstellt man die Bildung von Rissen mit etwa einem Meter in den Betonkörper, bräuchte eine vertikale Vernetzung eine Ausweitung um mindestens weitere fünf Meter.

³⁵ Im Firstbereich wird das Schließen der ALZ länger andauern – aufgrund des Firstspalts, der stärkeren Entfestigung der Schweben und der geringeren Konsolidierung dieses Gebirgsbereiches.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
									Blatt: 76

Das Modellkonzept zum 2-Phasenfluss ist im Kapitel 3.6.1 beschrieben.

Eine Besonderheit des 2-Phasen-Modells der MAW stellt die Sorelbetonglocke dar. Diese kann nicht als granulares Material verstanden oder abstrahiert werden. Eine alternative Formulierung der Kapillardruck-Beziehung für zementierte Materialien wird von Narisham in [84] zitiert:

$$p_c = p_d + \beta \left(\frac{1 - S_w}{S_w} \right)^{1/\nu}$$

bei denen die Parameter β und ν als Formfaktoren die Kurvengestalt der Beziehung bestimmen. p_d ist der Gaseindringdruck und wird als Konstante betrachtet. Sie kann in Abhängigkeit der Permeabilität z. B. nach Davies [35]³⁶ parametrisiert werden:

$$p_d = 5.6 \cdot 10^{-7} k^{-0.346}$$

(p_d in MPa).

Angewendet auf die Sorelbetonglocke, liegen die Gaseindringdrücke – je nach Permeabilitätsansatz gem. 4.5.1 - zwischen 5 MPa (bei $k=10^{-20} \text{ m}^2$) und 90 kPa (bei $k=10^{-15} \text{ m}^2$)³⁷. Die hangende Schwebelocke hat nach dieser Relation einen (gegenüber der Sorelbetonglocke vernachlässigbaren) Gaseindringdruck von 39 kPa³⁸, die liegende – je nach Permeabilität und Rissen – zwischen 110 kPa und 50 kPa (bei $k=10^{-14} \text{ m}^2$).

Wardeh & Perrin [98] publizierten relative Permeabilitäten und Kapillardruck-Sättigungs-Beziehungen für zementierte Materialien und fitteten Kurven anhand der van-Genuchten-Relation an Messdaten. Wir schlagen vor, diese Datenbasis zur Untersuchung der Parametrisierung der 2-Phasen-Beziehungen der Sorelbetonglocke zu nutzen.

³⁶ Auswertung von Daten für geschichtete Salzformationen der WIPP

³⁷ Dieser Ansatz setzt voraus, dass keine durchgehenden Risse den Baukörper durchziehen (s. Kap. 4.5.1).

³⁸ Der sich bei fortschreitender Entfestigung (s. 4.5.1) noch verringern dürfte

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	Blatt: 77

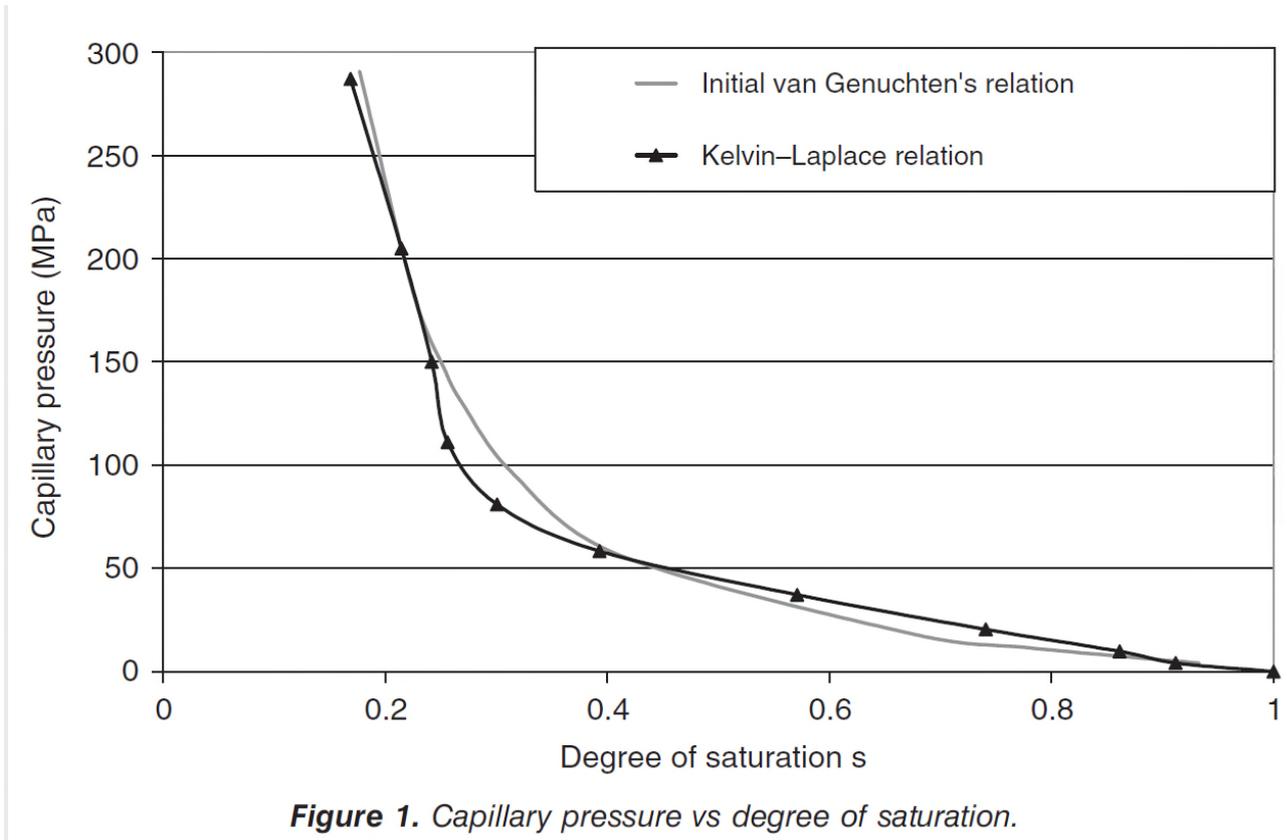


Abbildung 18: Kapillardruck-Sättigungs-Beziehung nach [98].

Vgl. Kapitel 3.6.1:

$$p_c = p_c^0 \left(s_{el}^{\frac{1}{m}} - 1 \right)^{1/n}$$

mit van Genuchten Parametern:

$$p_c^0 = 11.087 \text{ MPa}; m=0.56; n=1/(1-m)$$

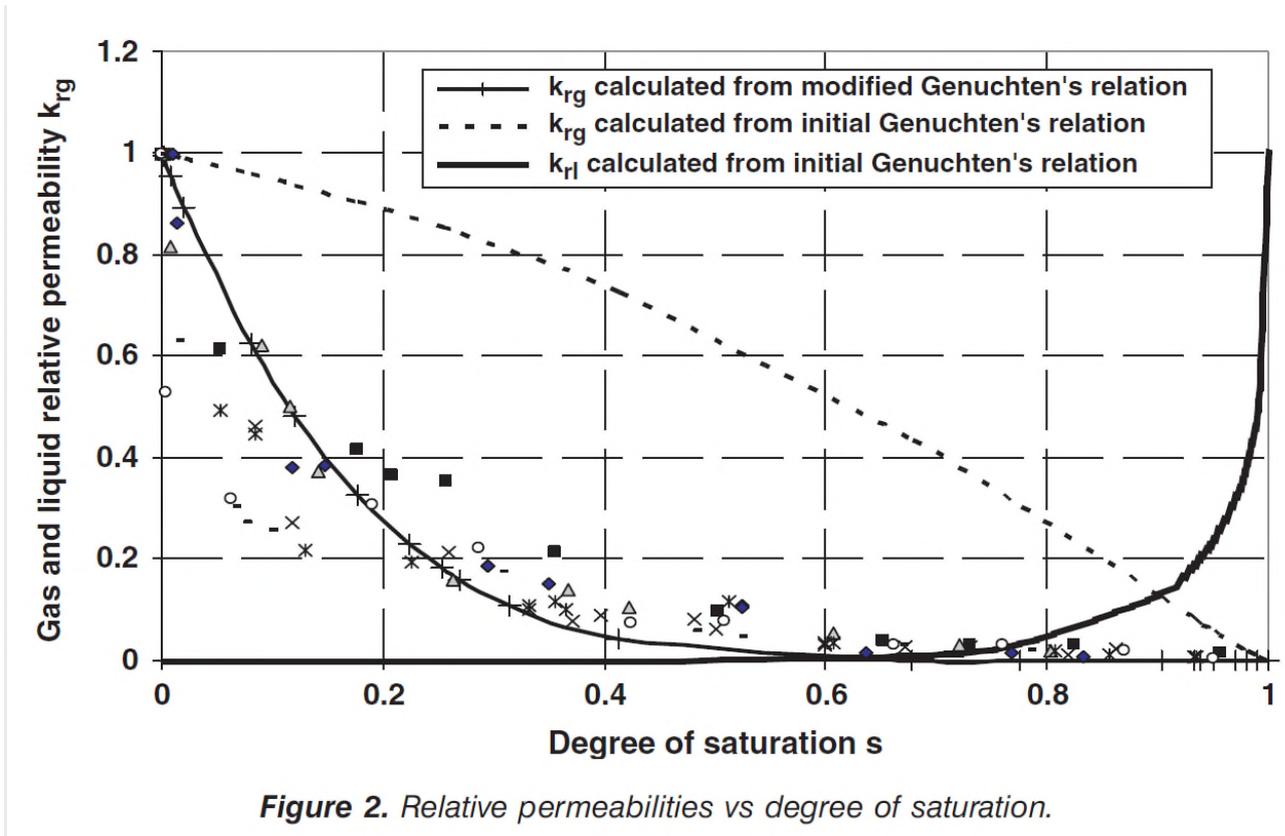


Abbildung 19: Relative Permeabilitäten nach [98].

Vgl. Abschnitt 3.6.1:

$$k_l^r = s_{el}^l \left[1 - \left(1 - s_{el}^{\frac{1}{m}} \right)^m \right]^2$$

$$k_g^r = (1 - s_{el})^p \left(1 - s_{eg}^{\frac{1}{m}} \right)^{2m}$$

mit van Genuchten Parametern:

$p=5.5$; $m=0.56$

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	


**BUNDESGESELLSCHAFT
FÜR ENDLAGERUNG**

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme	Blatt: 79
--	-----------

Anhang C Abschätzung der hydrodynamischen Druckdifferenz für die Randbedingungen des hydraulischen MAW-Modells

Die untere RB-Kammer beschreibt die Verhältnisse in 514 m Teufe, d. h. in der Mitte der Sohle der MAW-Kammer. Die untere RB-Kammer ist immer lösungsgesättigt. Zur Zeit $t = 0$ beträgt der Lösungsdruck in der Kammer 1 MPa. Ab $t = 0$ steigt der Druck entsprechend dem Anstieg des Lösungspegel in den Abbaureihen an.

Die obere RB-Kammer beschreibt die Verhältnisse im Sohlenbereich der 490-m-Sohle, Ansatz: Teufe 489 m. In den Abbaureihen erreiche der Lösungspegel die Teufe 489 m zur Zeit t_1 . Bis zum Zeitpunkt t_1 enthält die obere RB-Kammer ausschließlich Gas mit einem Druck von 1 MPa. Zum Zeitpunkt t_1 wechselt die Sättigung der oberen RB-Kammer sprunghaft von $s_g = 1$ nach $s_g = 0$ entsprechend der Lösungssättigung $s_w = 1$, mit unverändertem Druck von 1 MPa. Anschließend steigen die Lösungsdrücke in den beiden RB-Kammern parallel und mit einer plausiblen Rate an (z. B. zu übernehmen aus einer KAFKA-Rechnung).

Die RB-Kammern sind groß und weisen eine sehr hohe Permeabilität, einen verschwindenden Kapillardruck für alle Sättigungsverhältnisse, irreduzible Sättigungen von 0 und relative Permeabilitäten von 1 für beide Phasen auf.

Es ist darauf zu achten, dass der Druckunterschied zwischen den beiden RB-Kammern genau konstant bleibt. Für jeden Rechenfall wird der Betrag Δp_{dyn} festgelegt, um den die Druckdifferenz zwischen der oberen und der unteren RB-Kammer vom hydrostatischen Wert abweicht und der damit eine Lösungsbewegung verursacht. Der Druckunterschied zwischen den beiden RB-Kammern beträgt damit

$$\Delta p = \rho \cdot g \cdot \Delta z + \Delta p_{dyn} = \rho \cdot g \cdot (514 \text{ m} - 489 \text{ m}) + \Delta p_{dyn}$$

Die Größe Δp_{dyn} ist eine Variable, deren Einfluss auf den Radionuklidaustrag aus der MAW-Kammer untersucht werden soll. Wünschenswert wäre zu zeigen, dass für plausible Werte von Δp_{dyn} der Austrag höchstens untergeordnet vom genauen Wert von Δp_{dyn} abhängt. Die Größenordnung der plausiblen Werte von Δp_{dyn} wird wie folgt geschätzt:

Die Rate der Lösungsauspressung aus der Grube ins Deckgebirge beträgt in den ersten 1000 Jahren einige $100 \text{ m}^3/\text{a}$. Für die Abschätzung wird von $200 \text{ m}^3/\text{a}$ ausgegangen. Dieser Lösungsfluss erfolgt durch das Obere Baufeld in der Südflanke. Wenn unter Berücksichtigung der Kanalisierung ein strömungswirksamer Querschnitt von $10'000 \text{ m}^2$ und eine Permeabilität von 10^{-12} m^2 angesetzt werden, kann der erforderliche dynamische Druckgradient Δp_{dyn} mit folgender Gleichung abgeschätzt werden (dynamische Viskosität der Lösung $\mu = 0.005 \text{ Pa} \cdot \text{s}$):

$$200 \frac{\text{m}^3}{\text{a}} \cdot \frac{1 \text{ a}}{3 \cdot 10^7 \text{ s}} = \frac{10^{-12} \text{ m}^2 \cdot 10^4 \text{ m}^2}{0.005 \text{ Pa} \cdot \text{s}} \cdot \text{grad } p_{dyn}$$

Das Ergebnis lautet $\text{grad } p_{dyn} \approx 3 \text{ Pa/m}$. Bei einer Lösungsdichte von 1300 kg/m^3 entspricht dies einem hydraulischen Gradienten von rund 0.0002 m/m . Wenn die obere und die untere RB-Kammer seitlich nicht versetzt sind, beträgt ihr Abstand 25 m und Δp_{dyn} ist im Bereich von 75 Pa anzusetzen, mit einer Bandbreite bis etwa das 10-Fache.

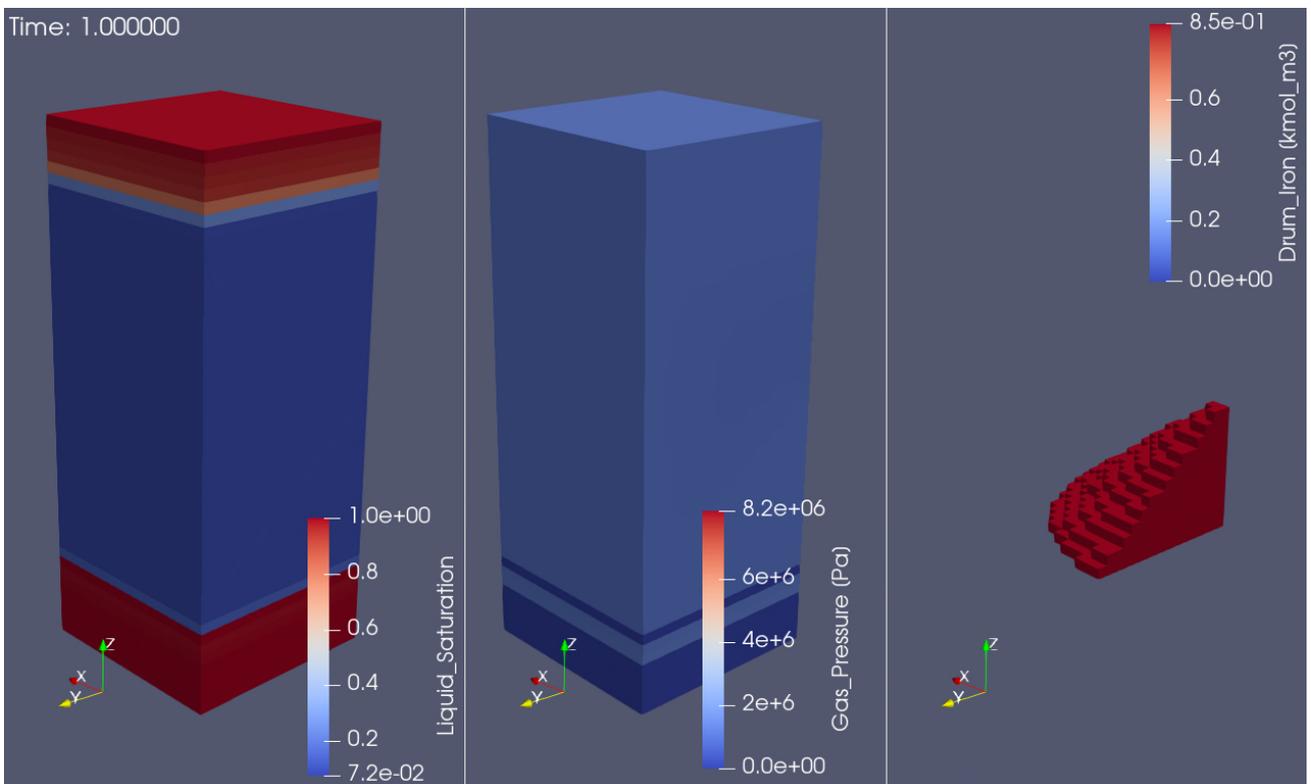
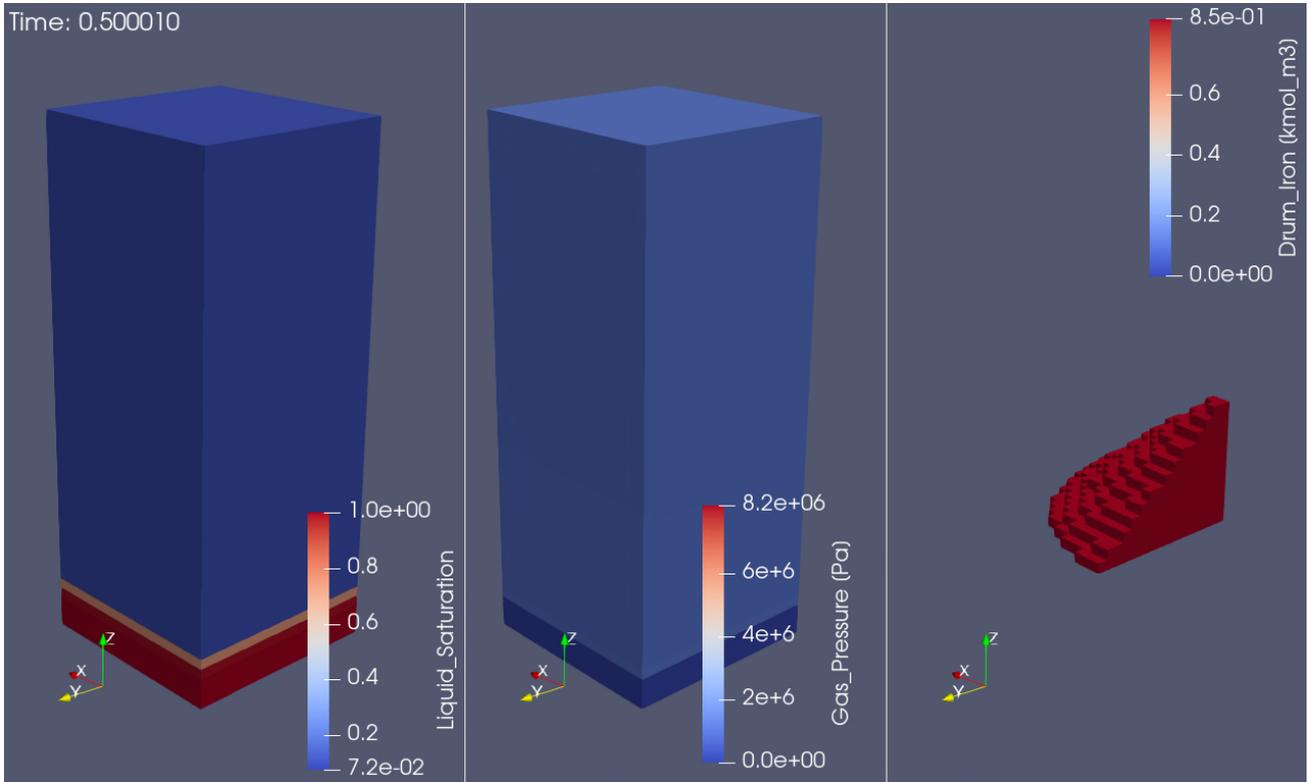
Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	


**BUNDEGESELLSCHAFT
FÜR ENDLAGERUNG**

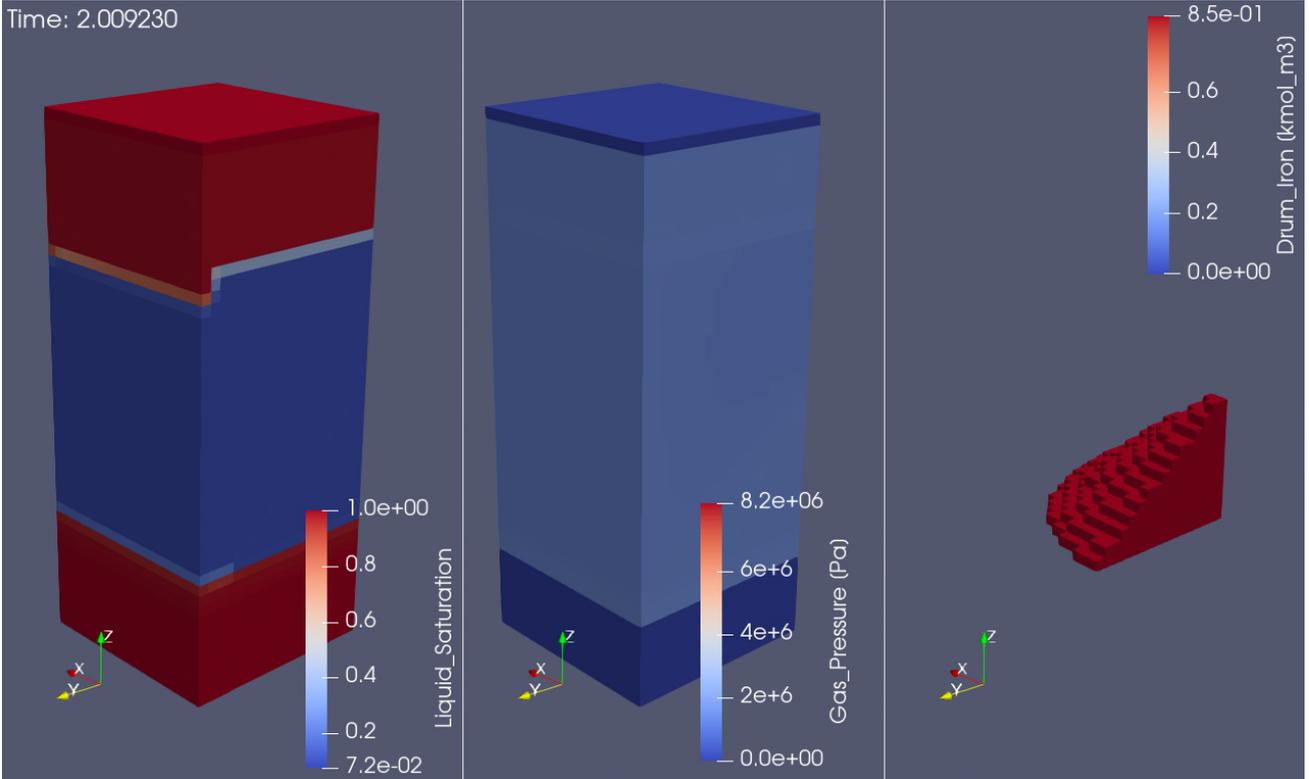
**Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme**

Blatt: 80

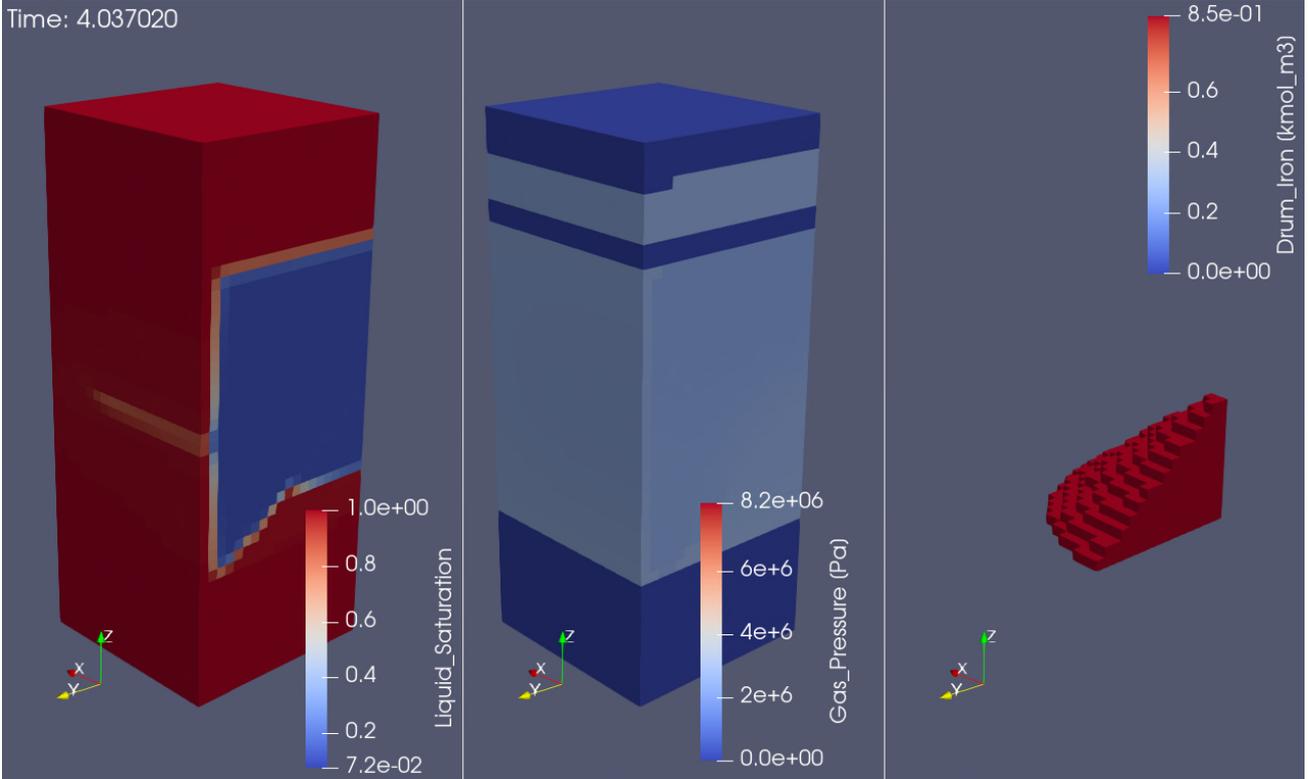
Anhang D Abbildungssequenzen Basisfall

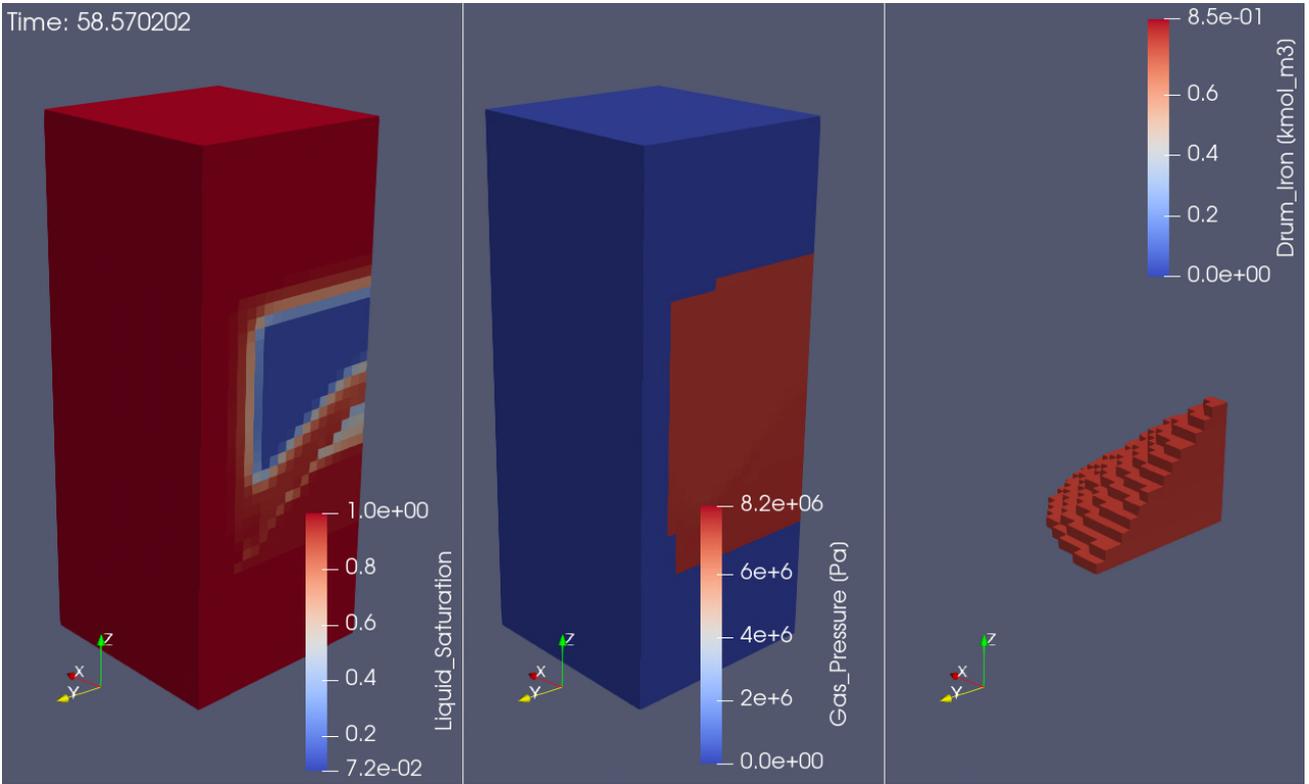
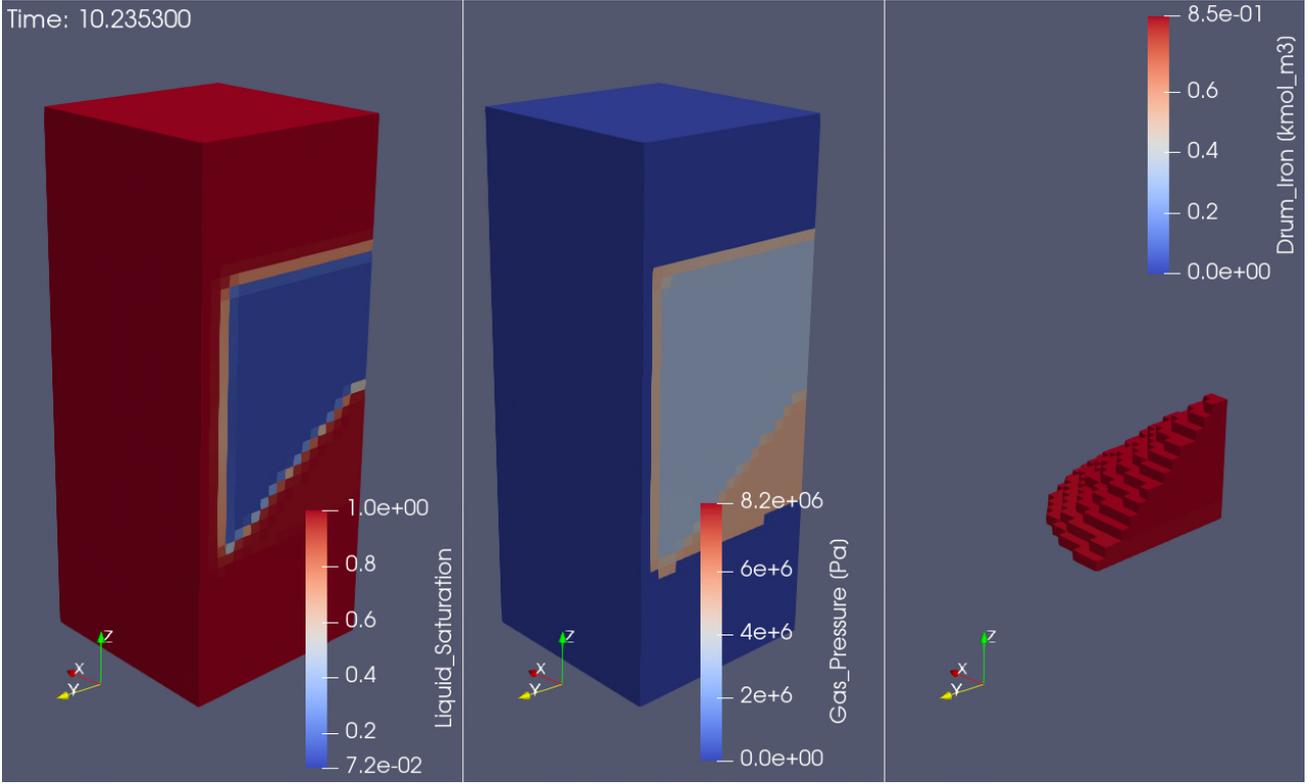


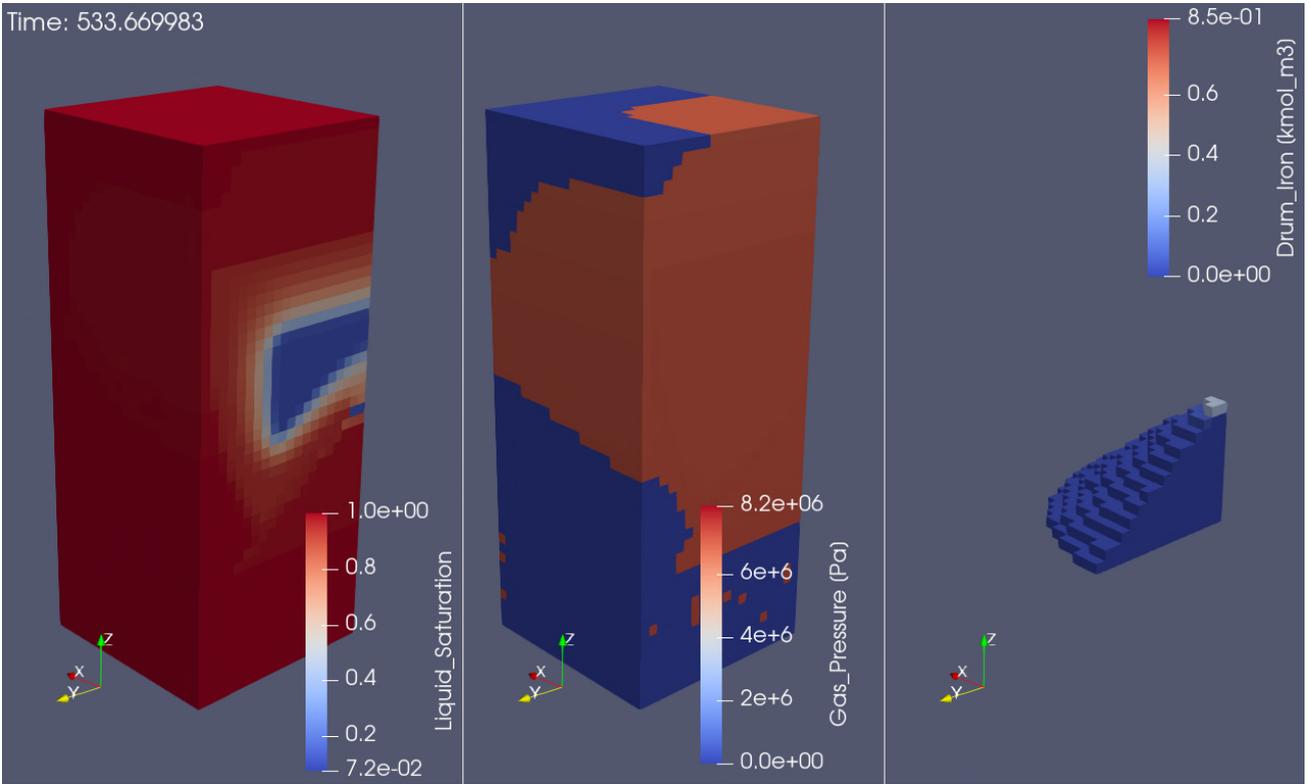
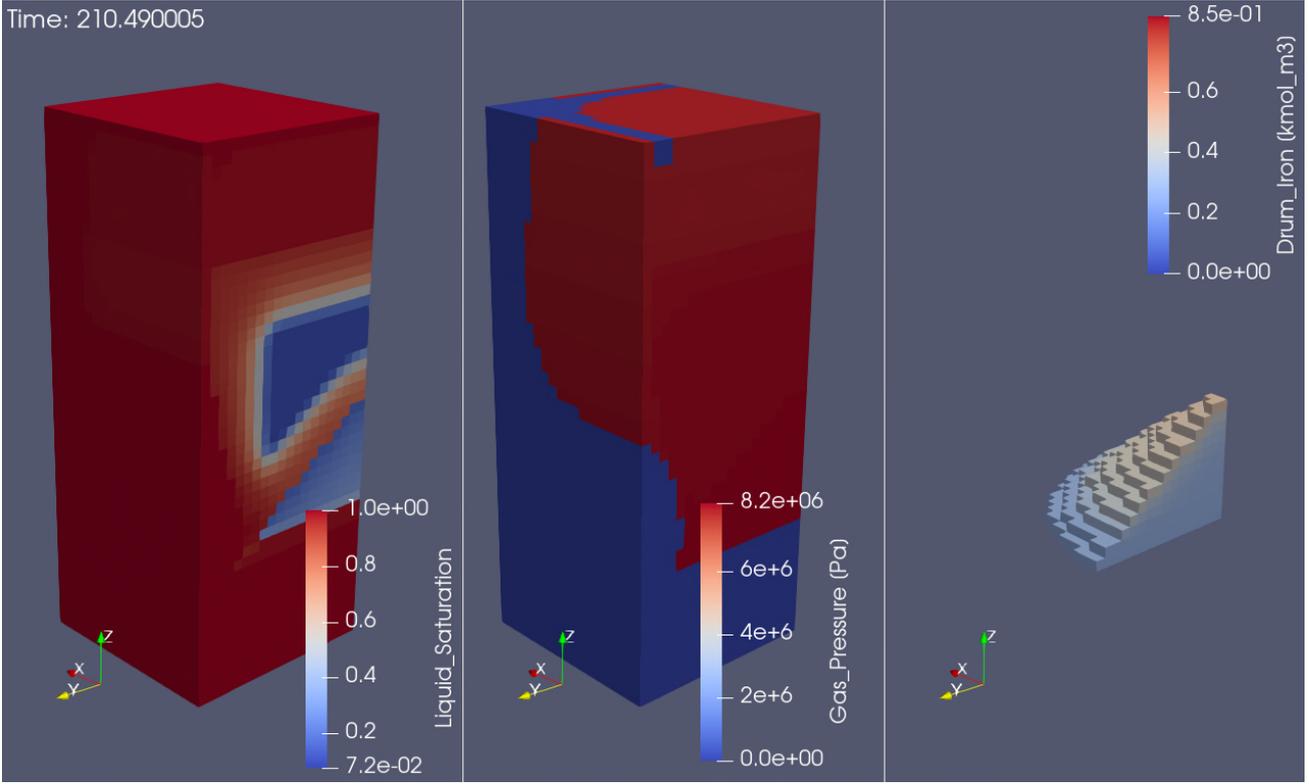
Time: 2.009230

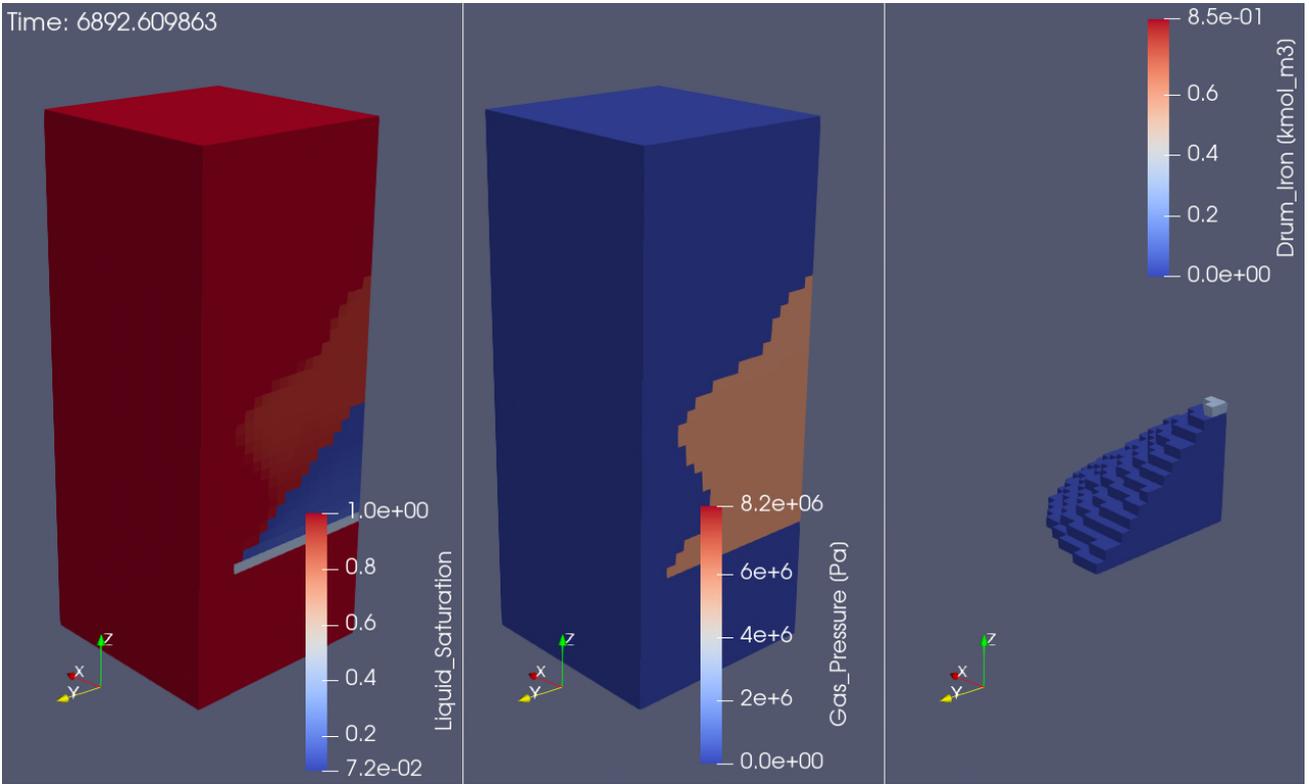
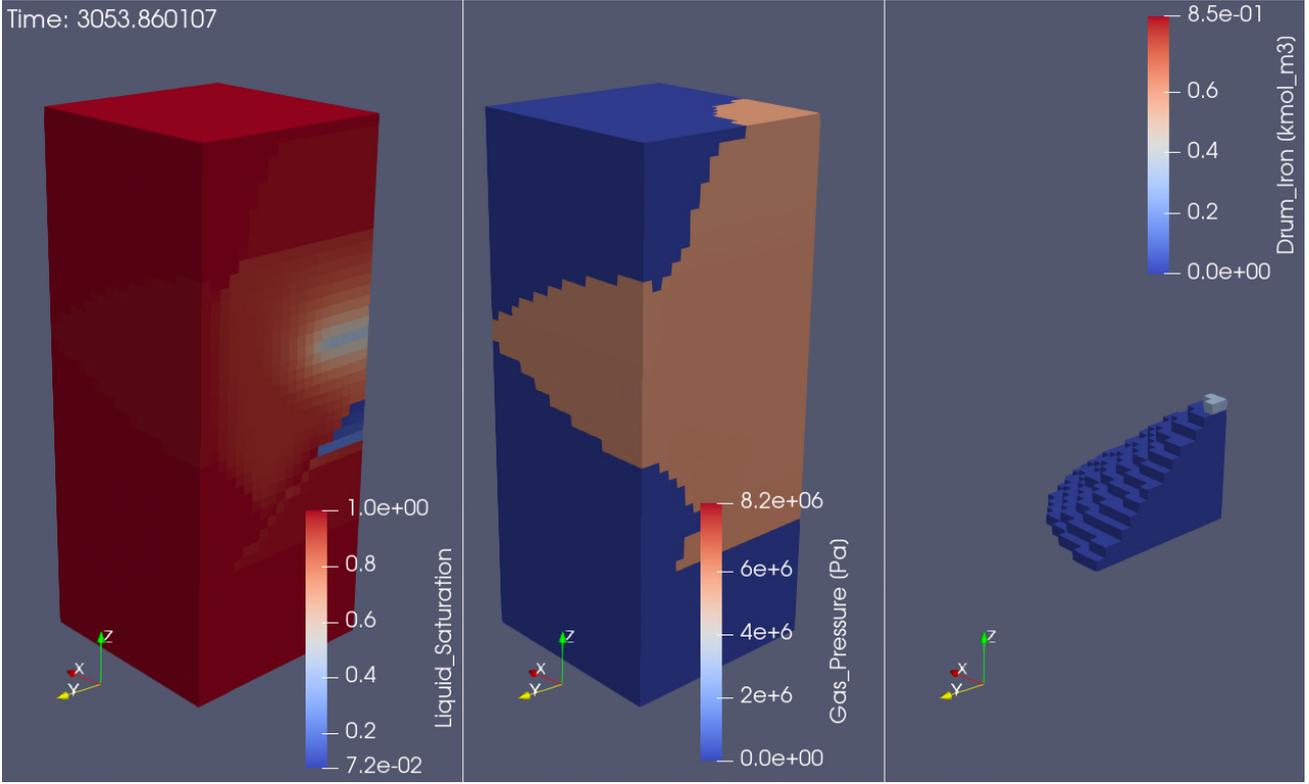


Time: 4.037020





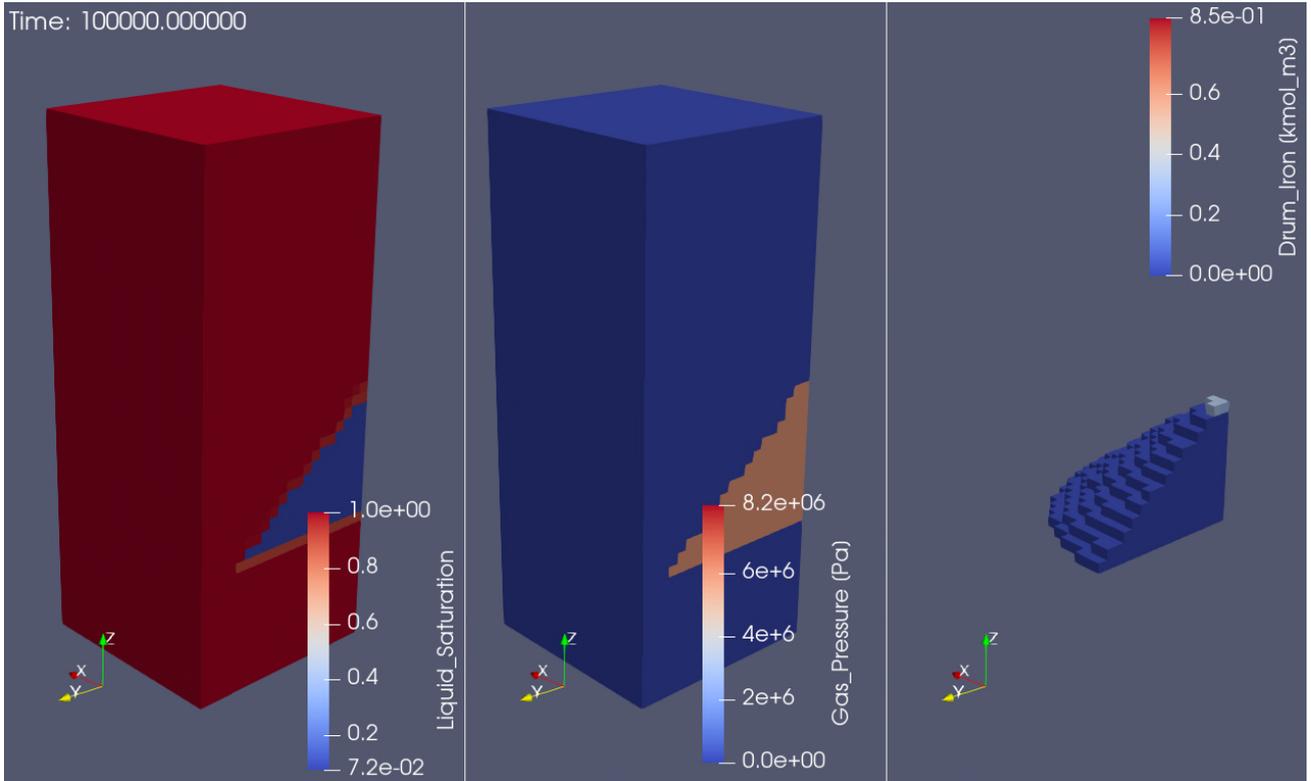




Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BUNDEGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

Blatt: 85

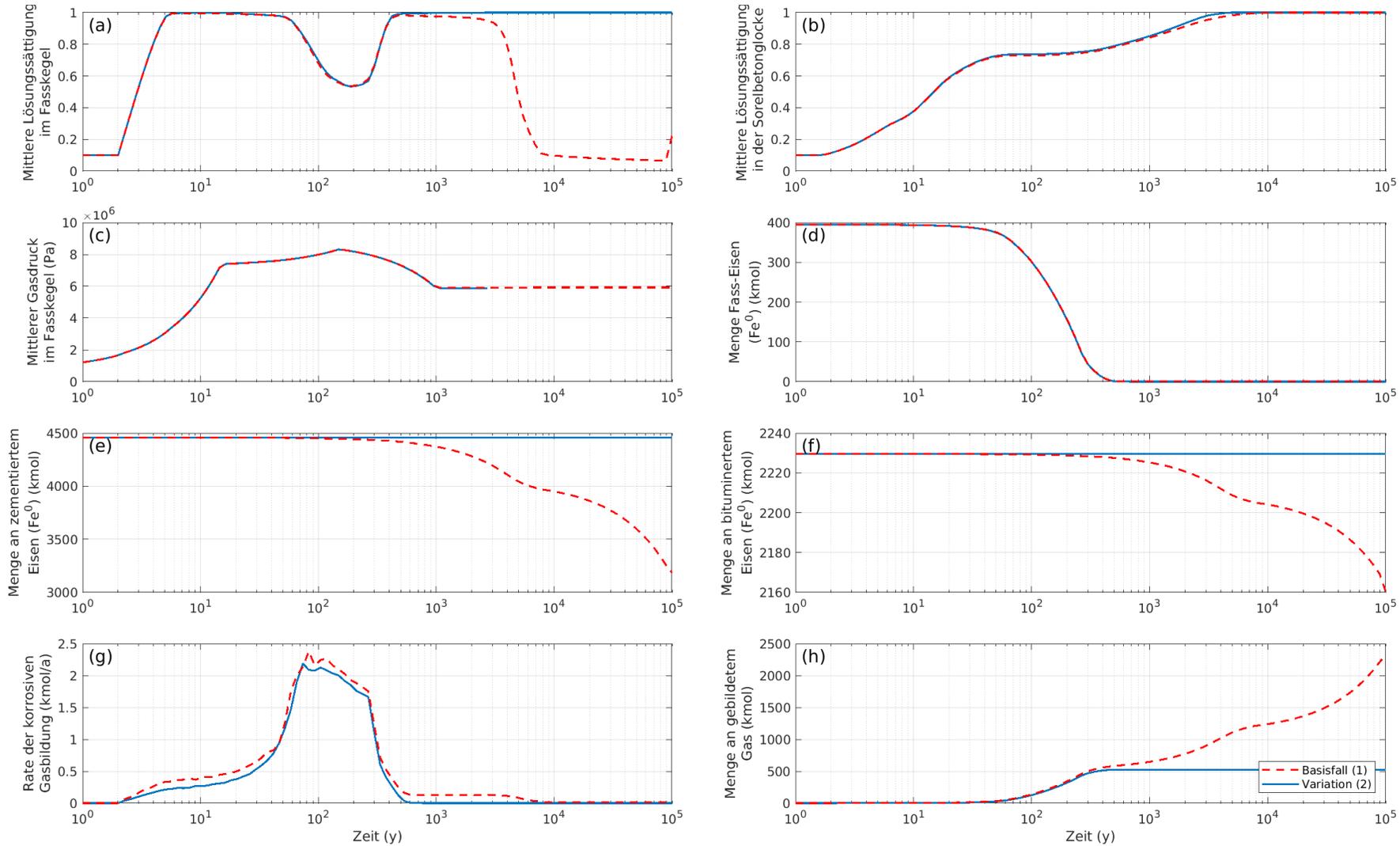


Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

Blatt: 86

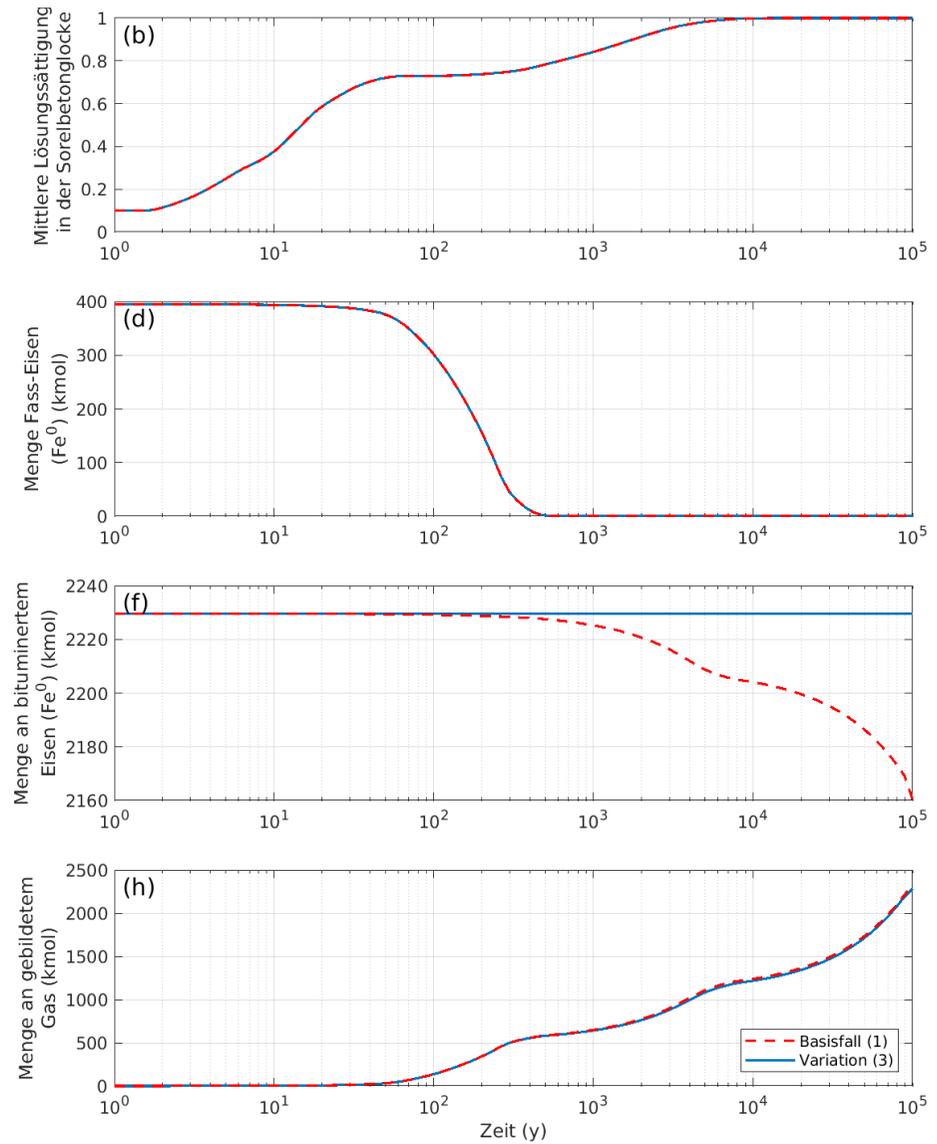
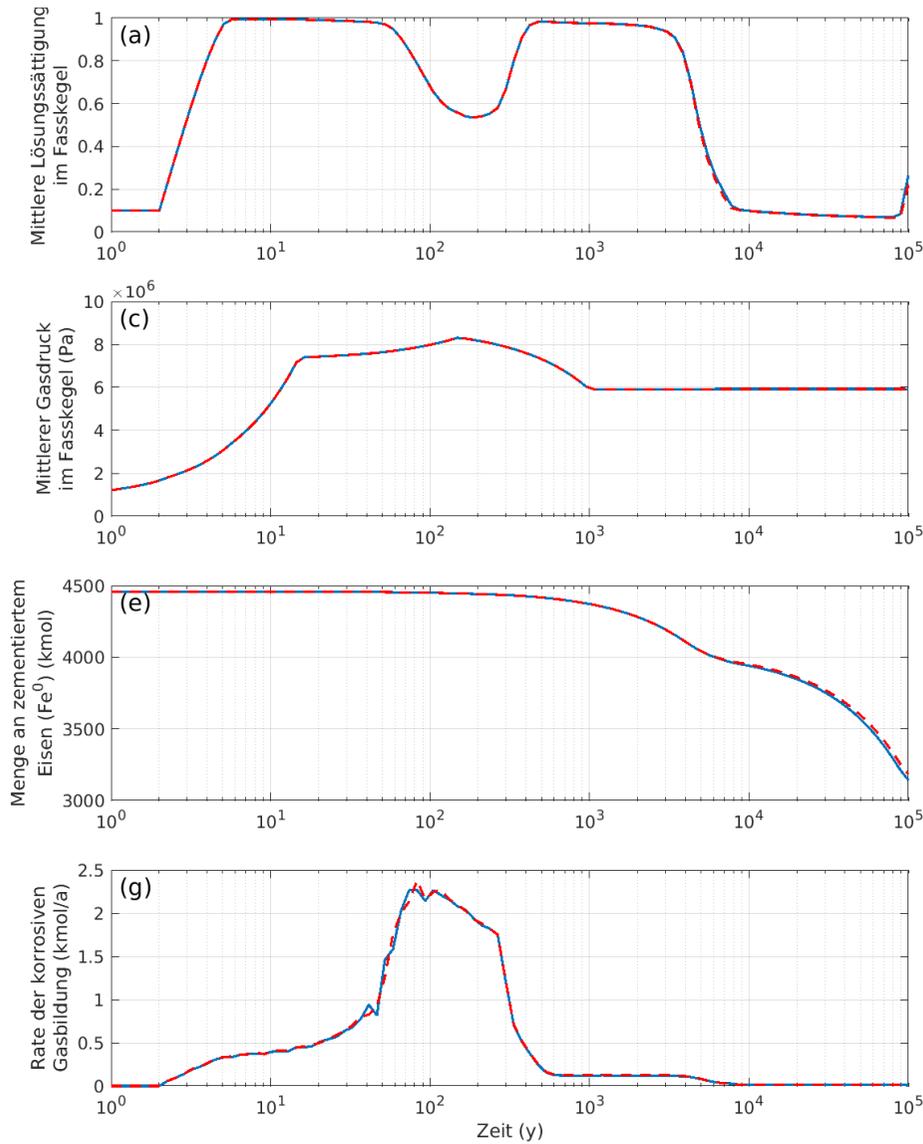
Anhang E Ergebnisse der Variationsrechnungen



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

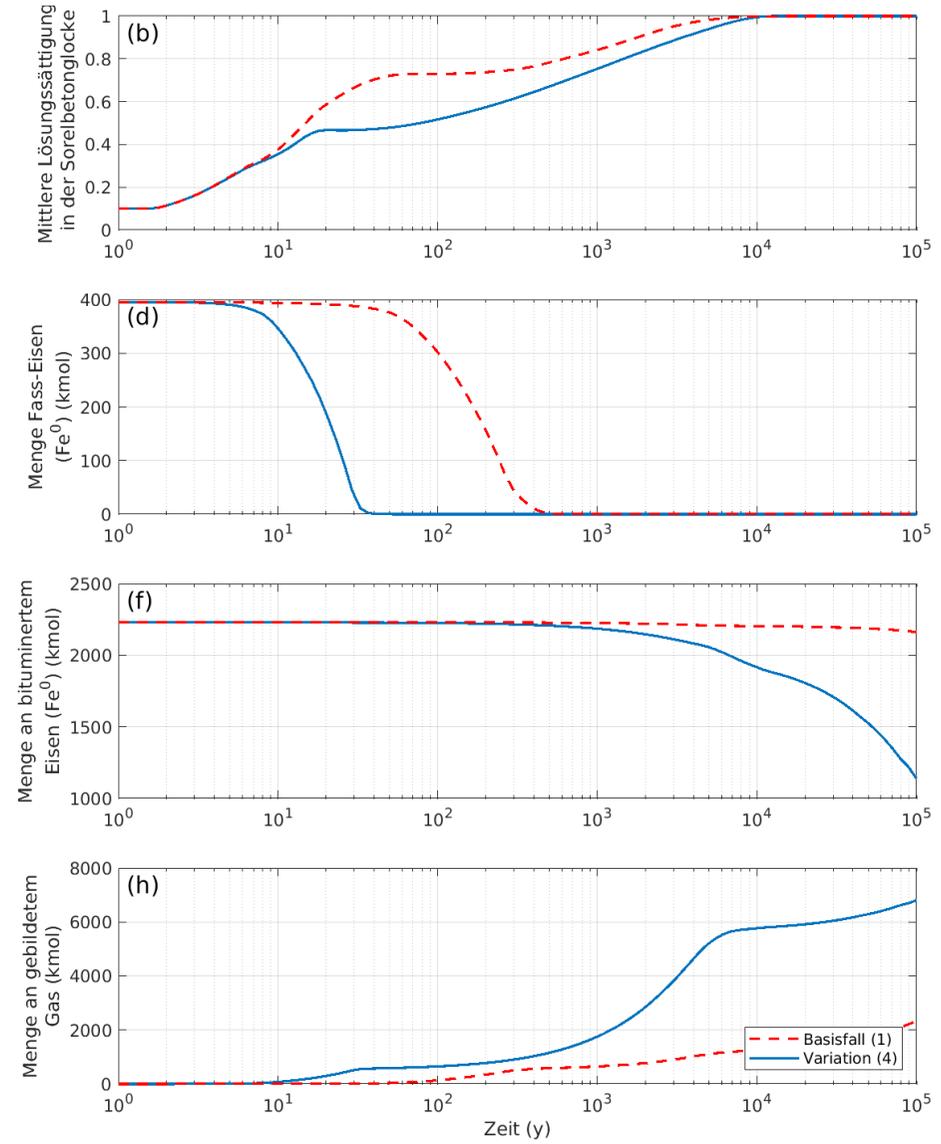
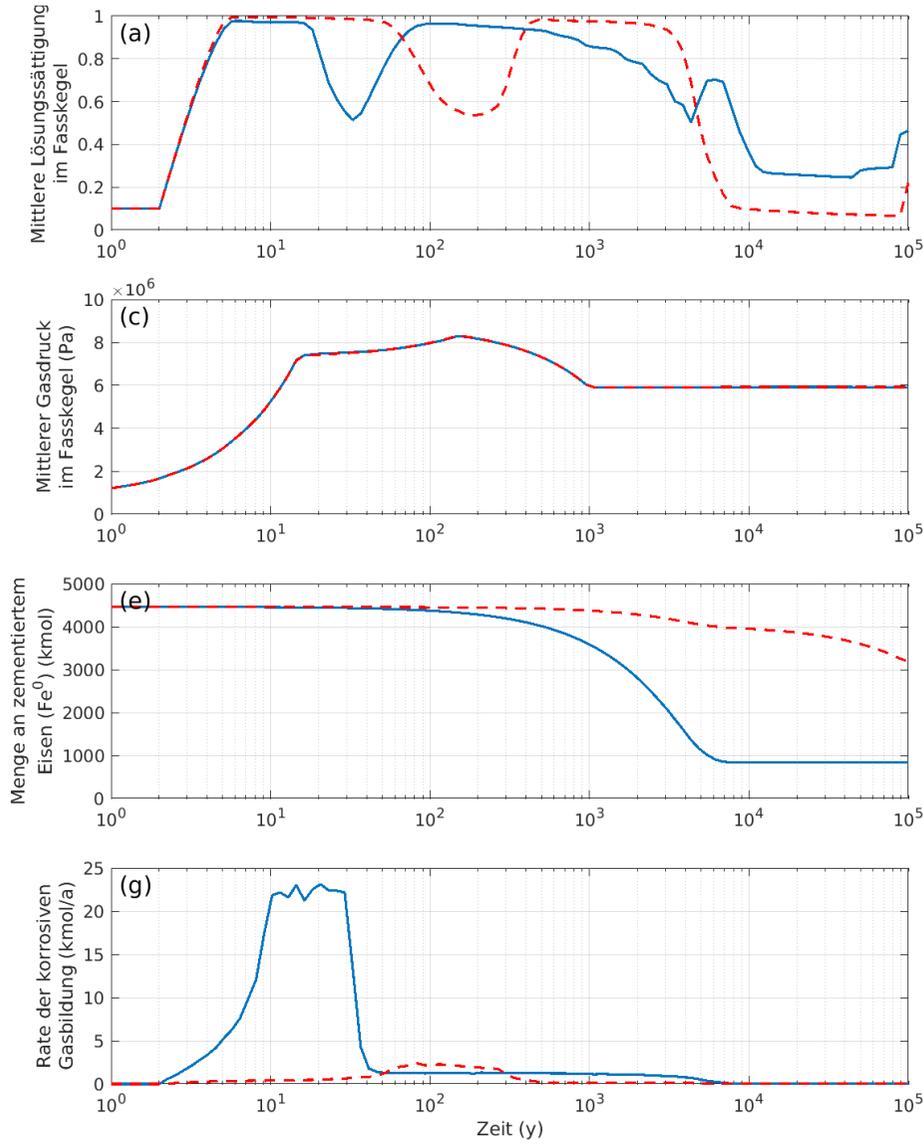
Blatt: 87



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00

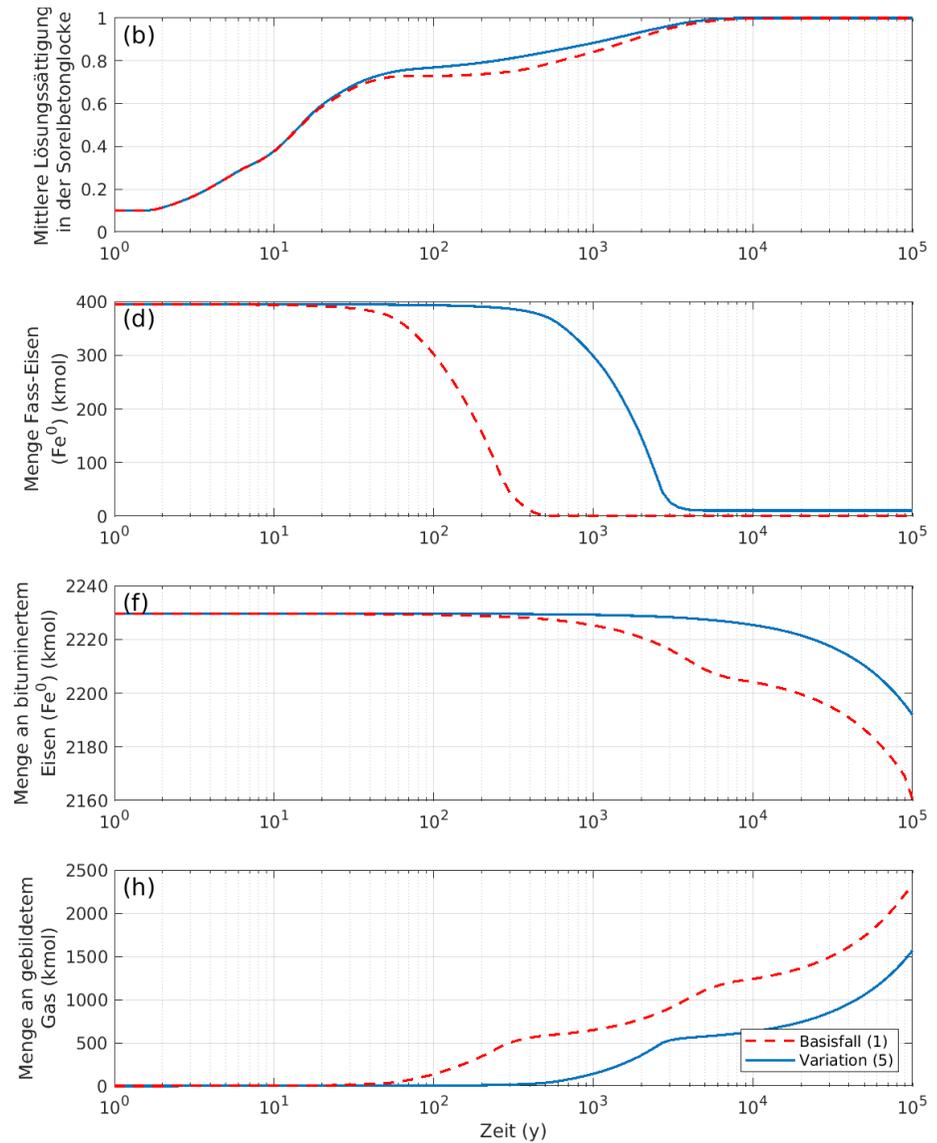
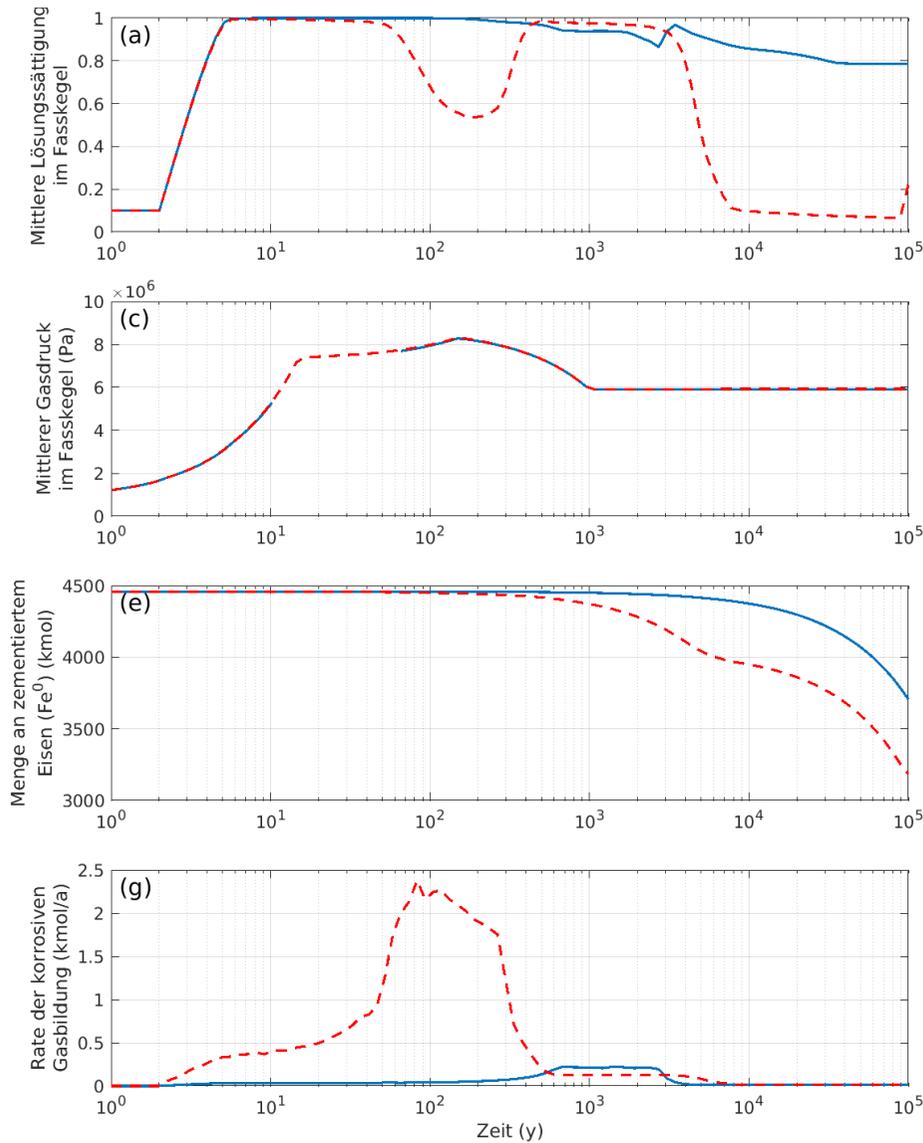
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

Blatt: 88



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00

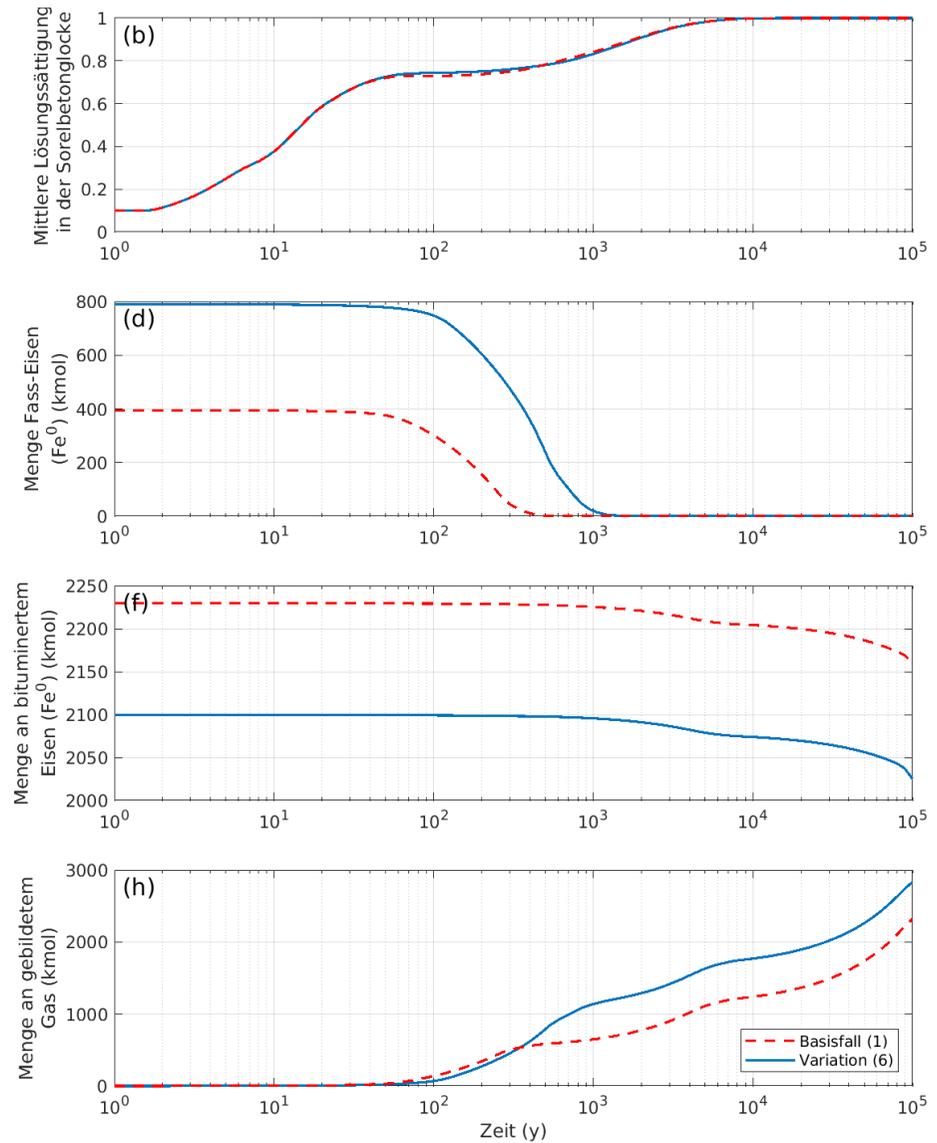
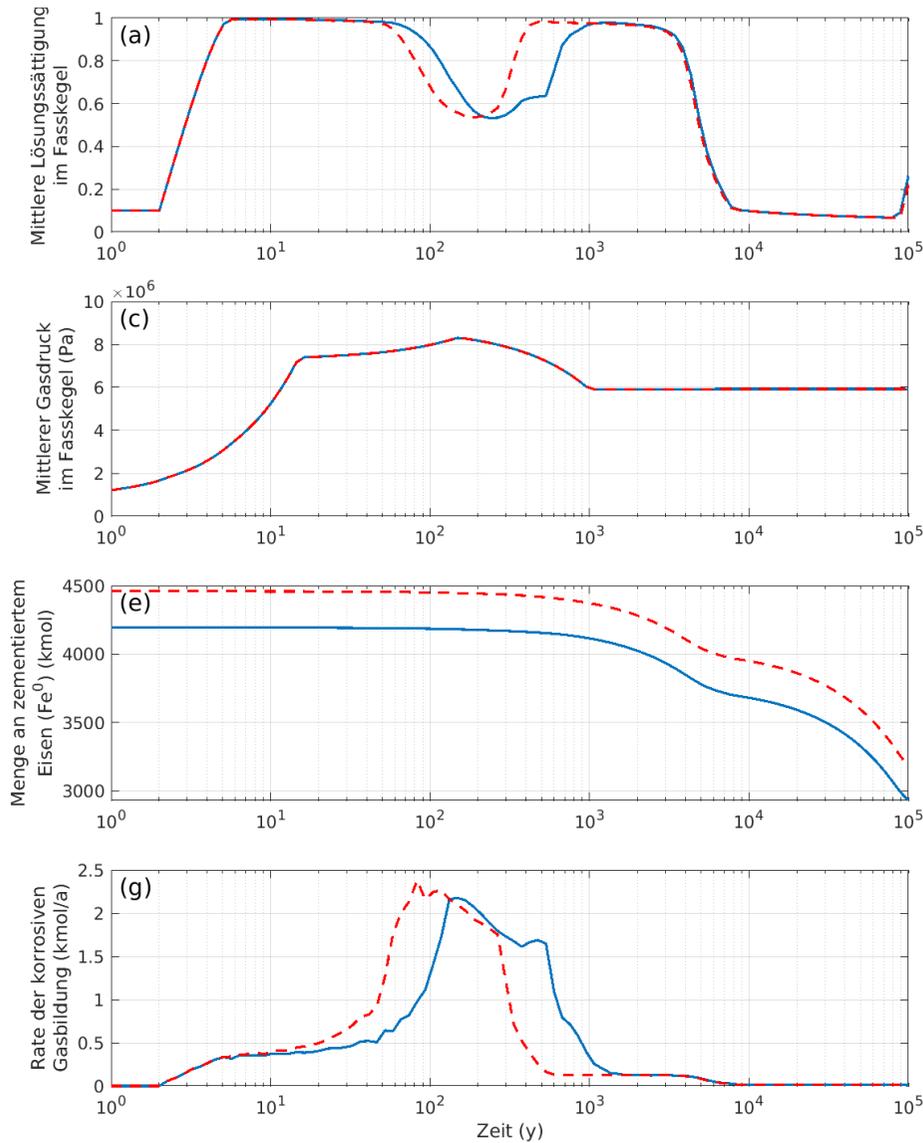
Blatt: 89



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	 BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

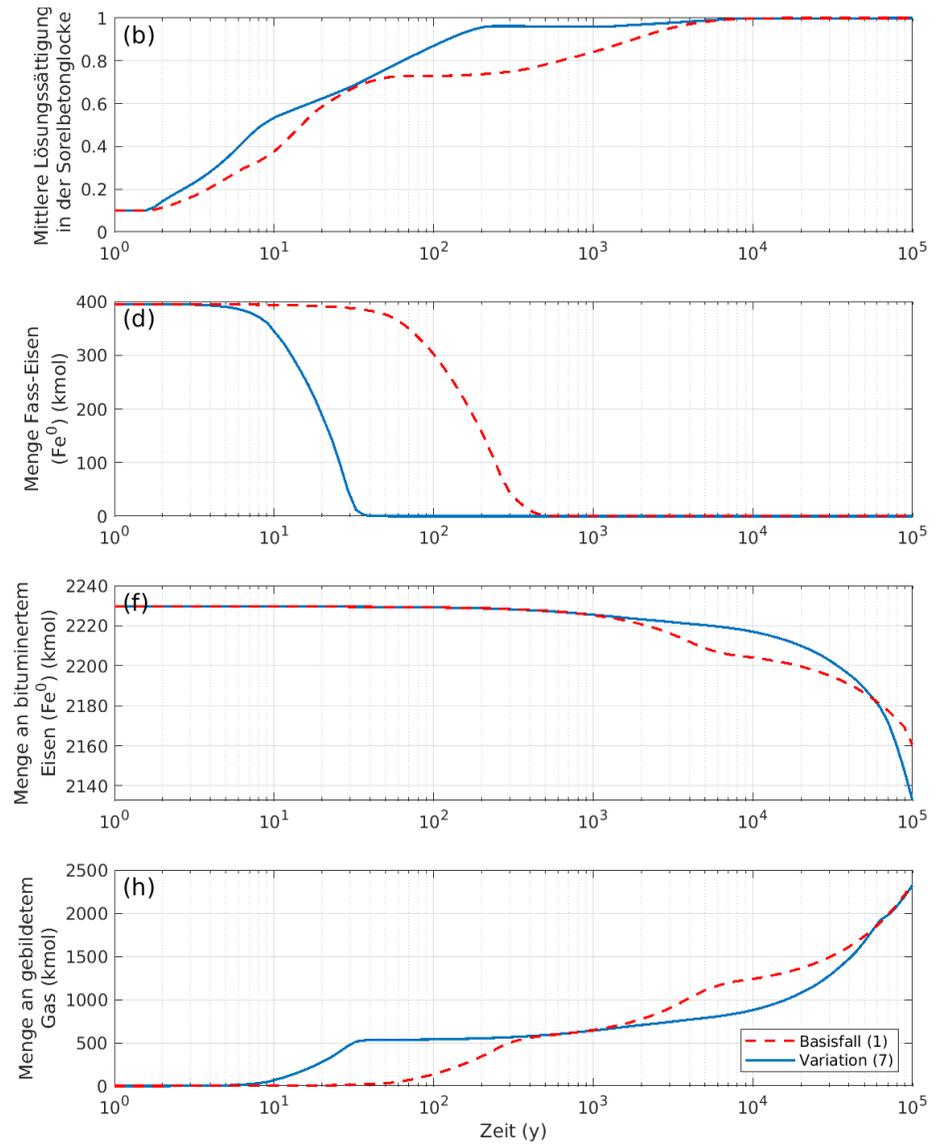
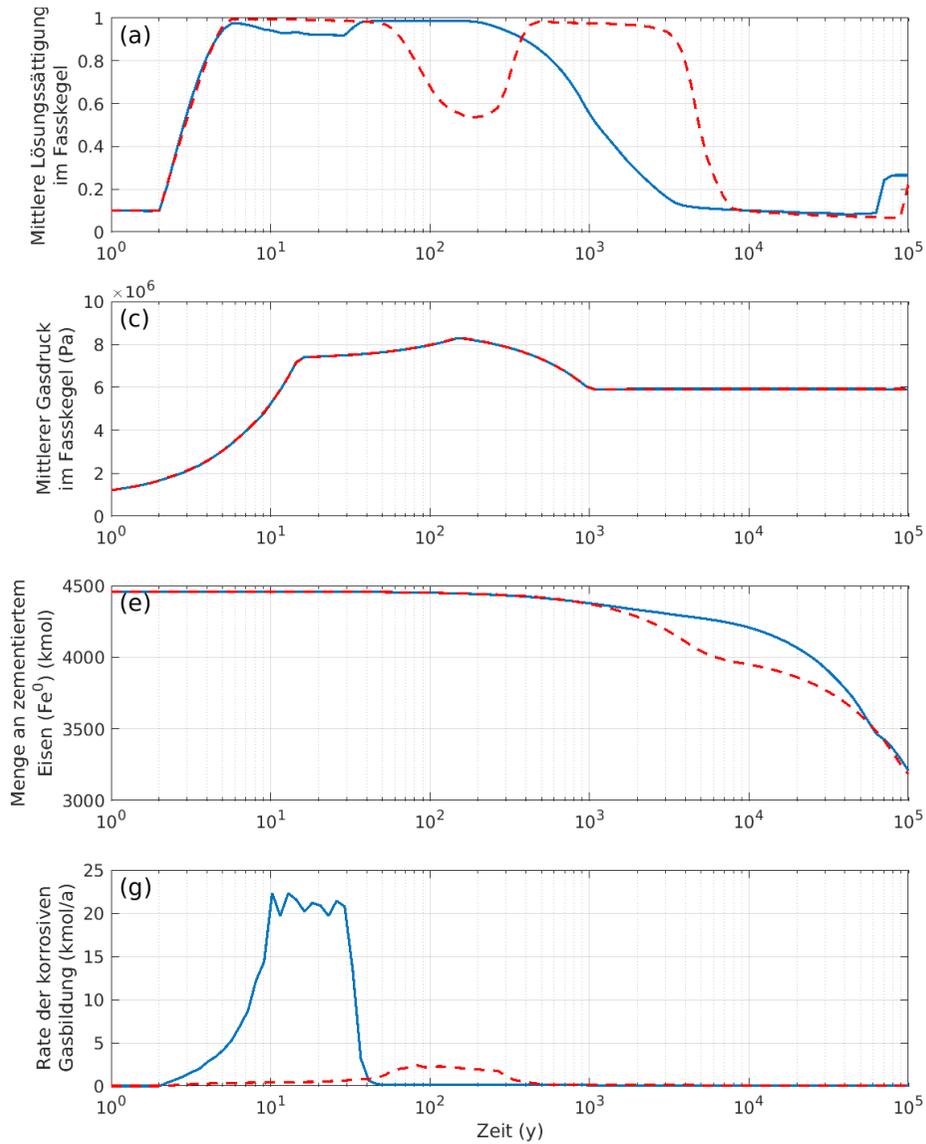
Blatt: 90



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

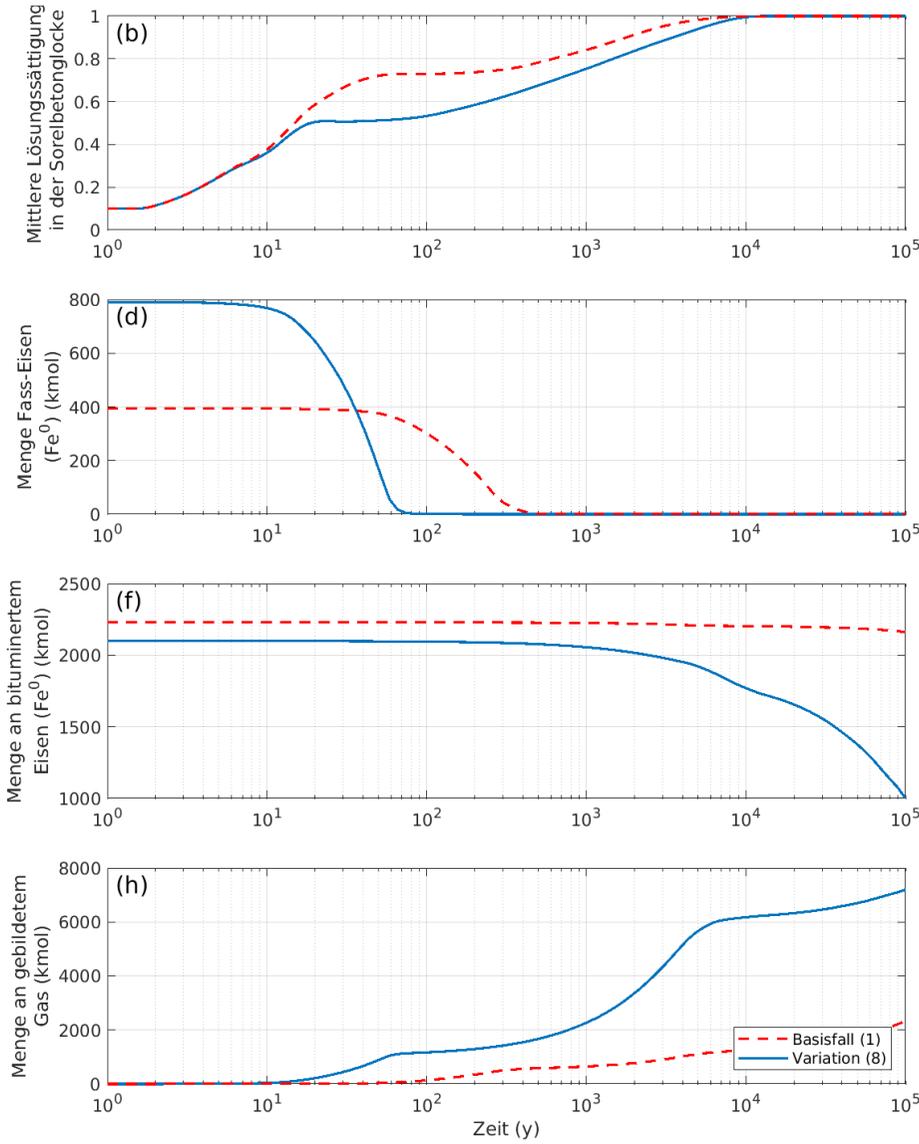
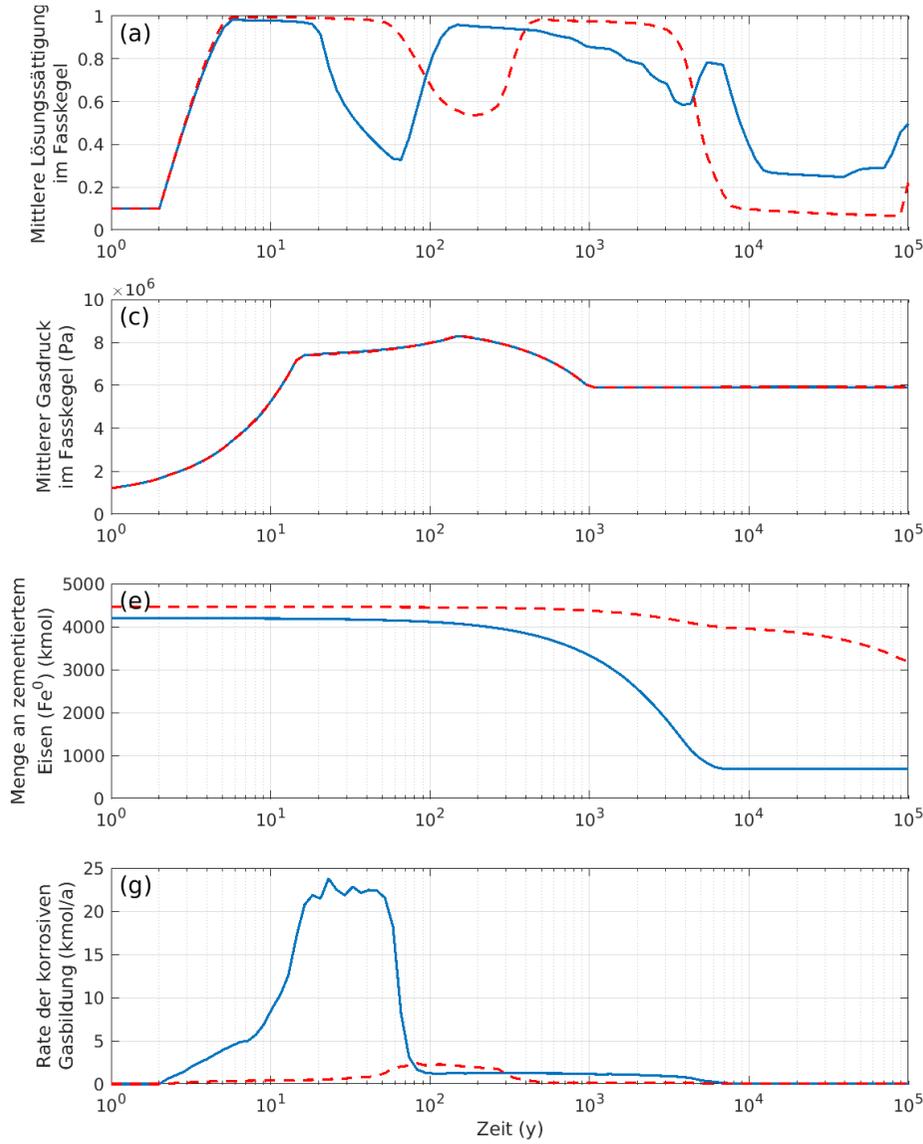
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

Blatt: 91



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00

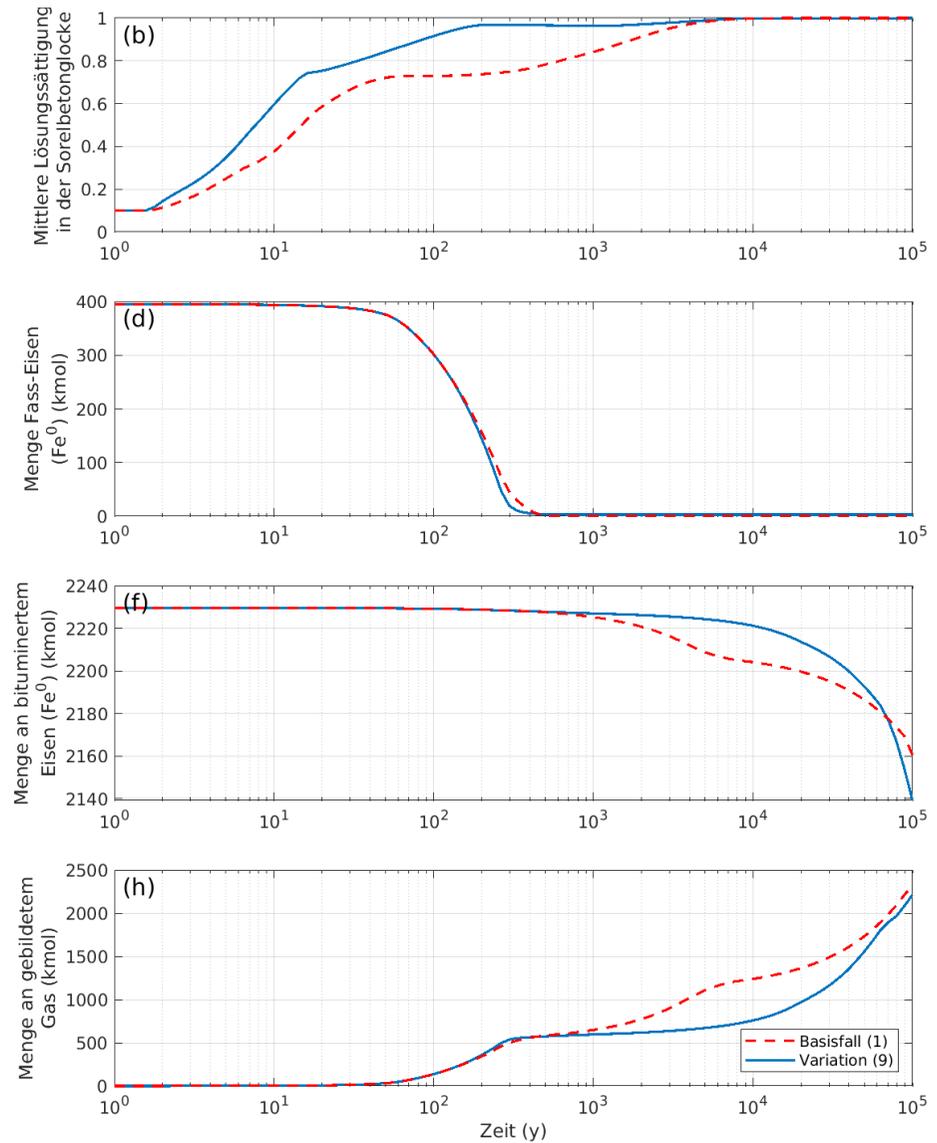
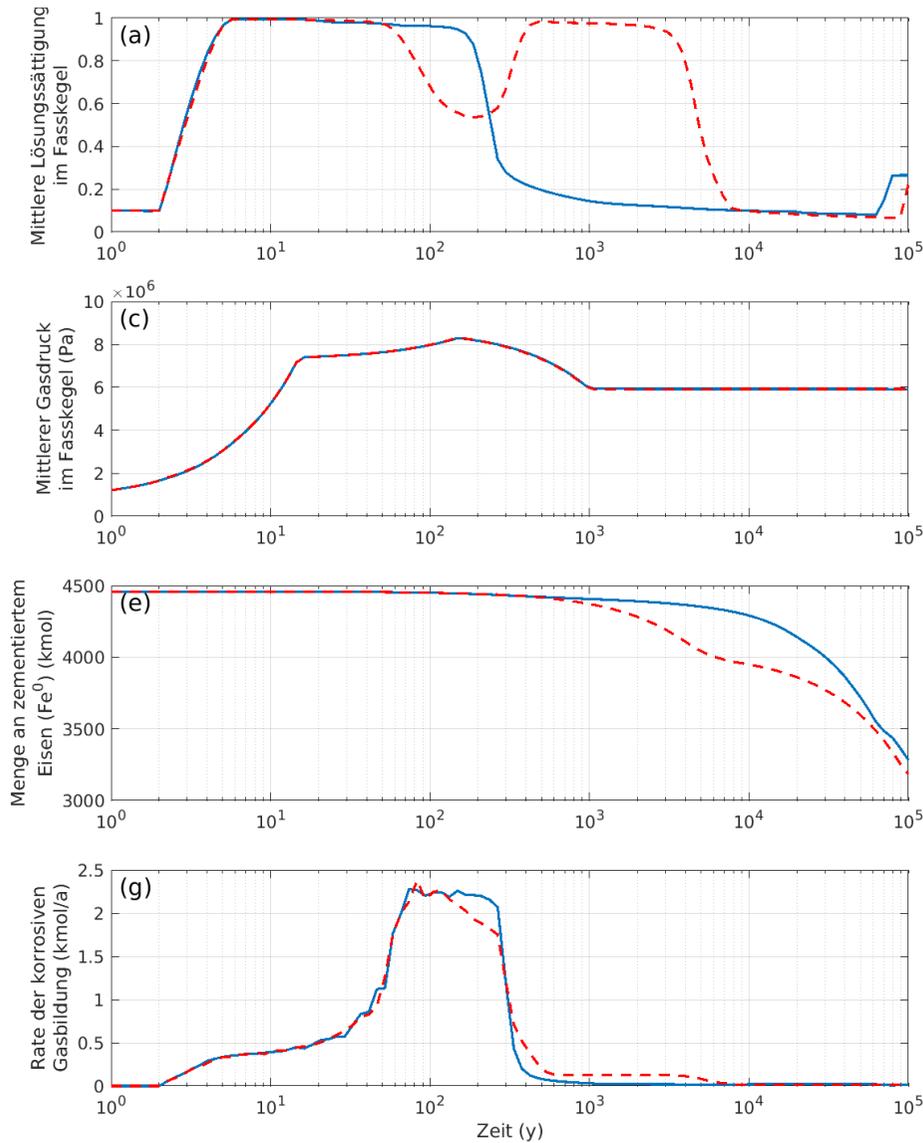
Blatt: 92



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

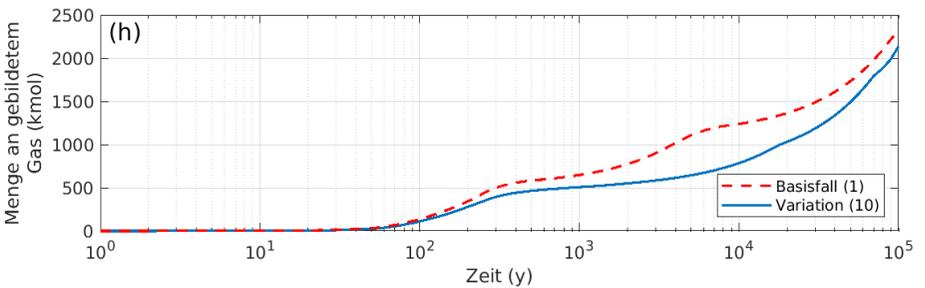
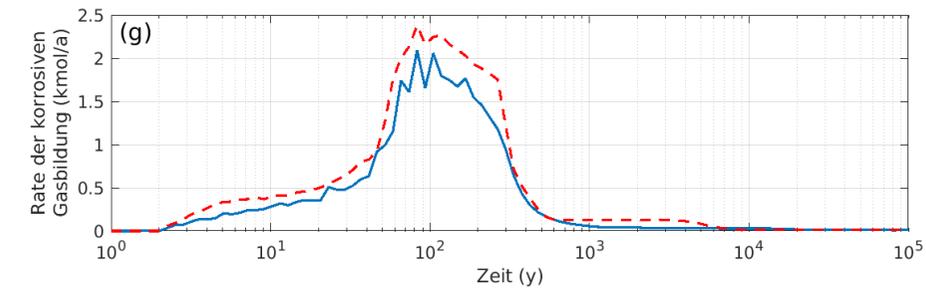
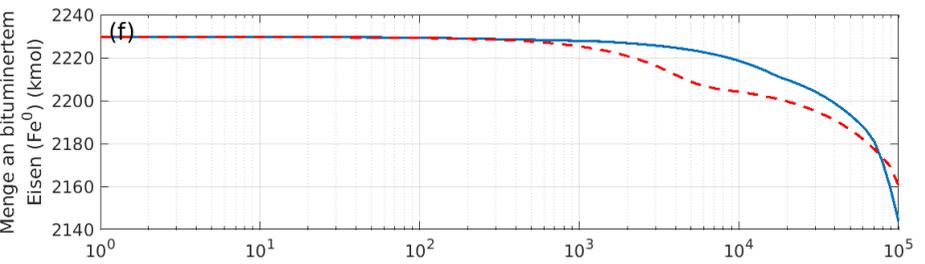
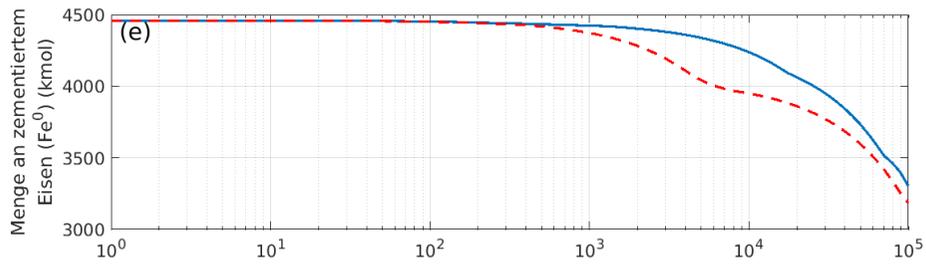
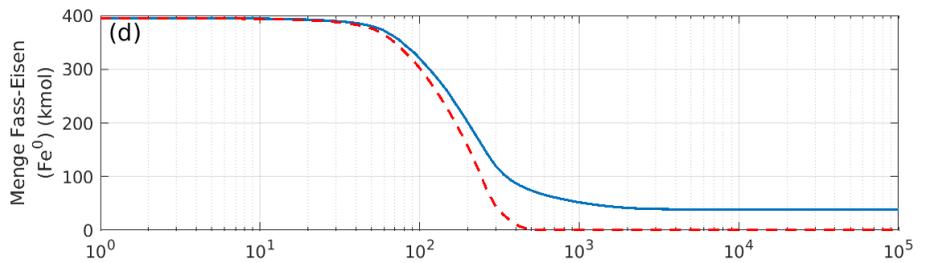
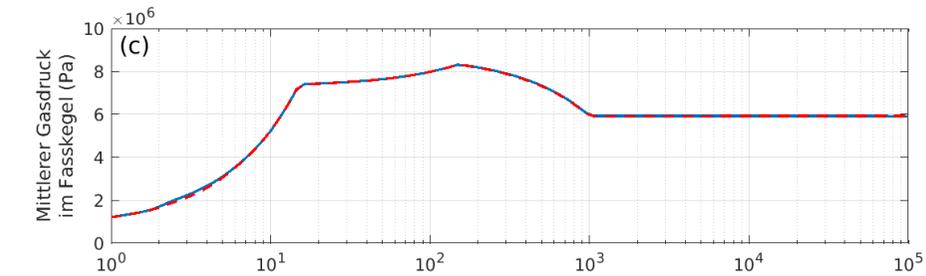
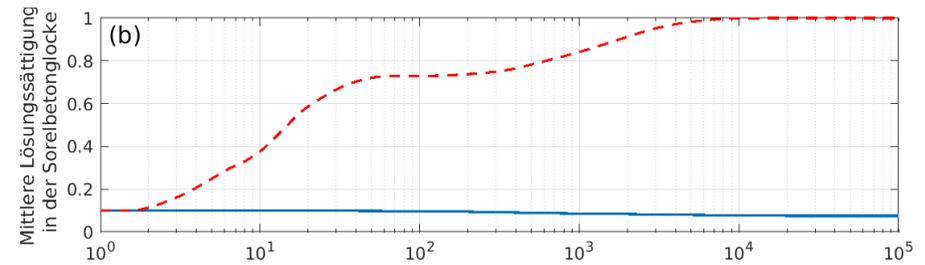
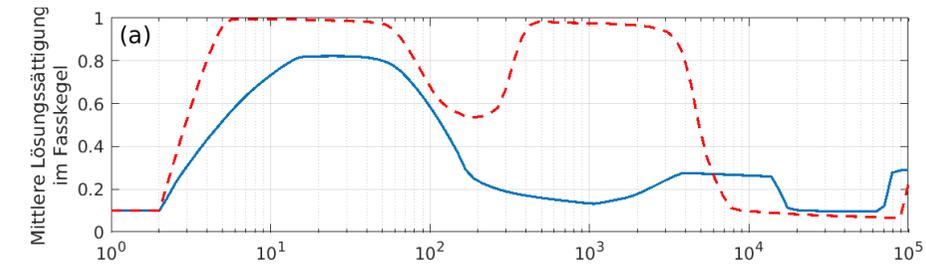
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

Blatt: 93



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00

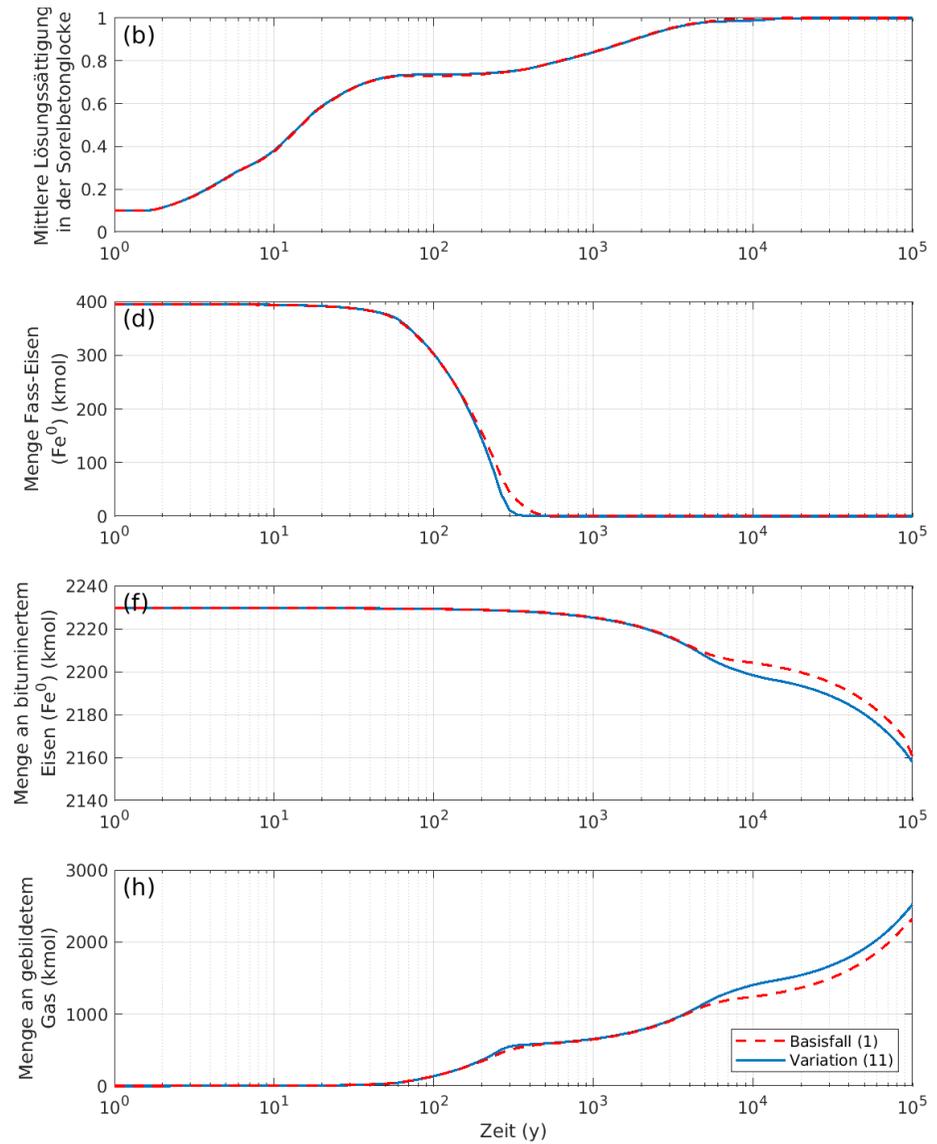
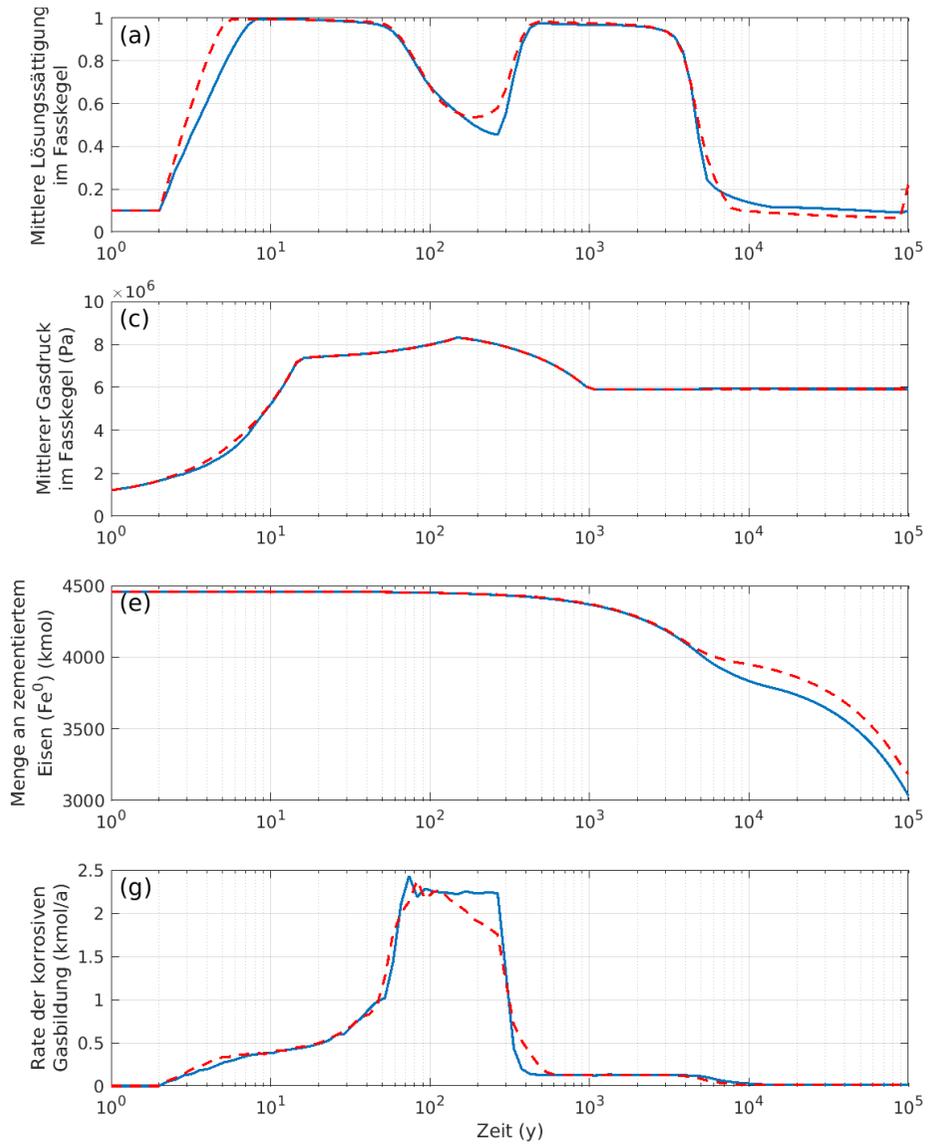
Blatt: 94



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

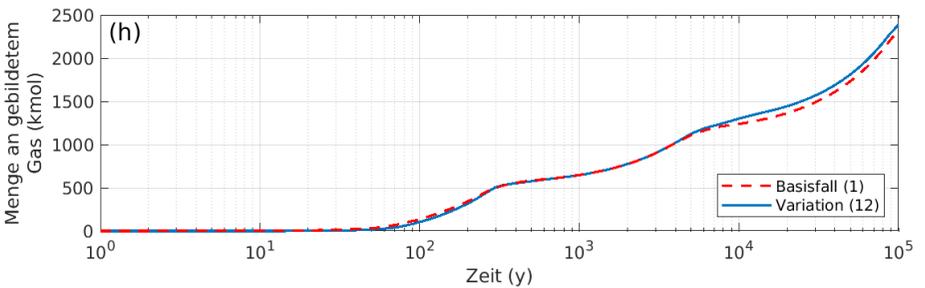
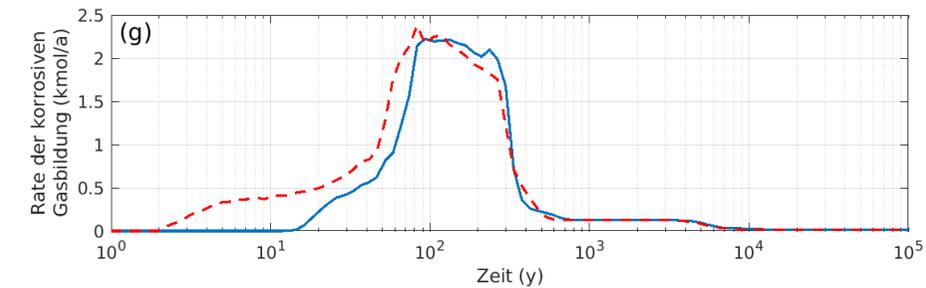
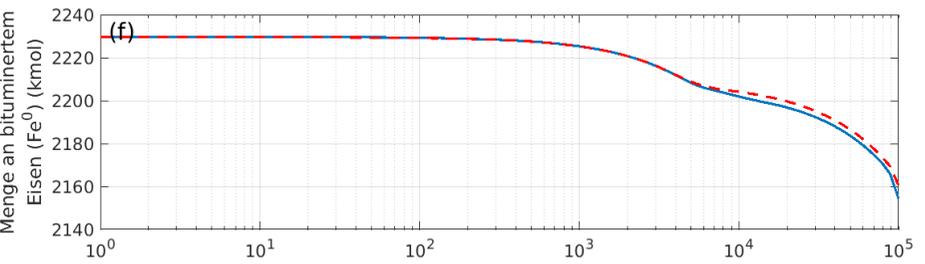
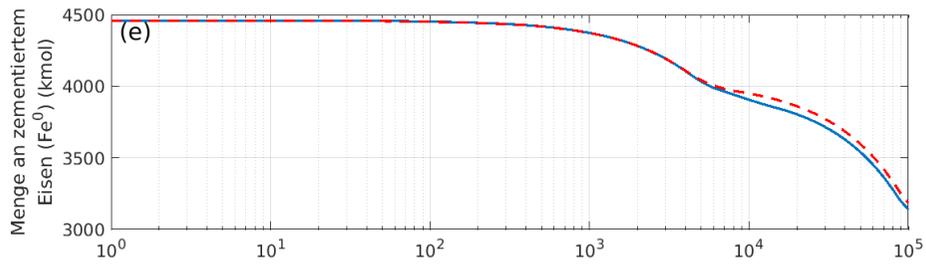
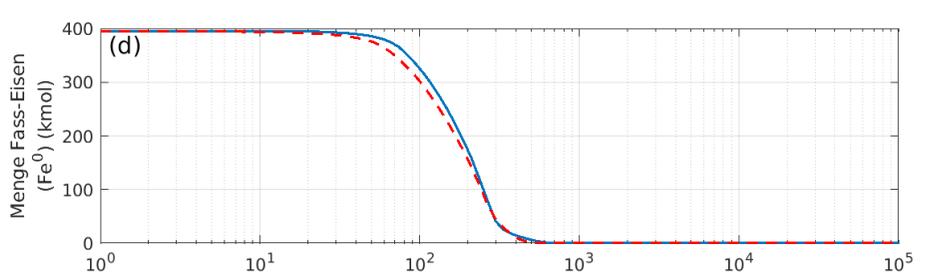
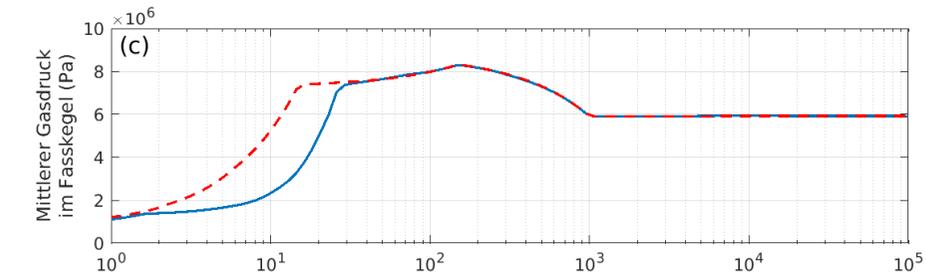
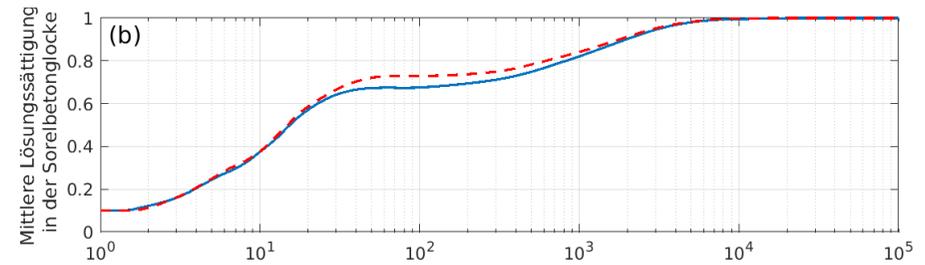
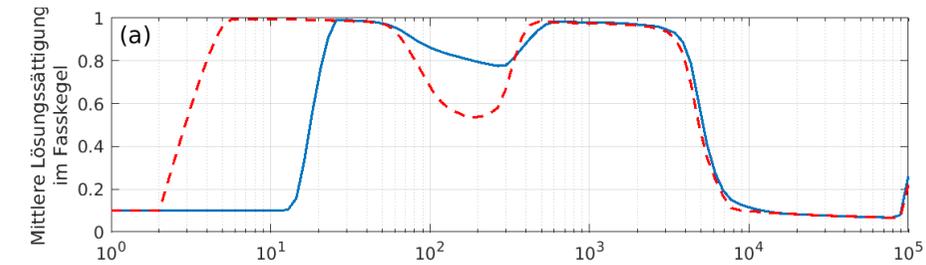
Blatt: 95



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

**Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
 und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme**

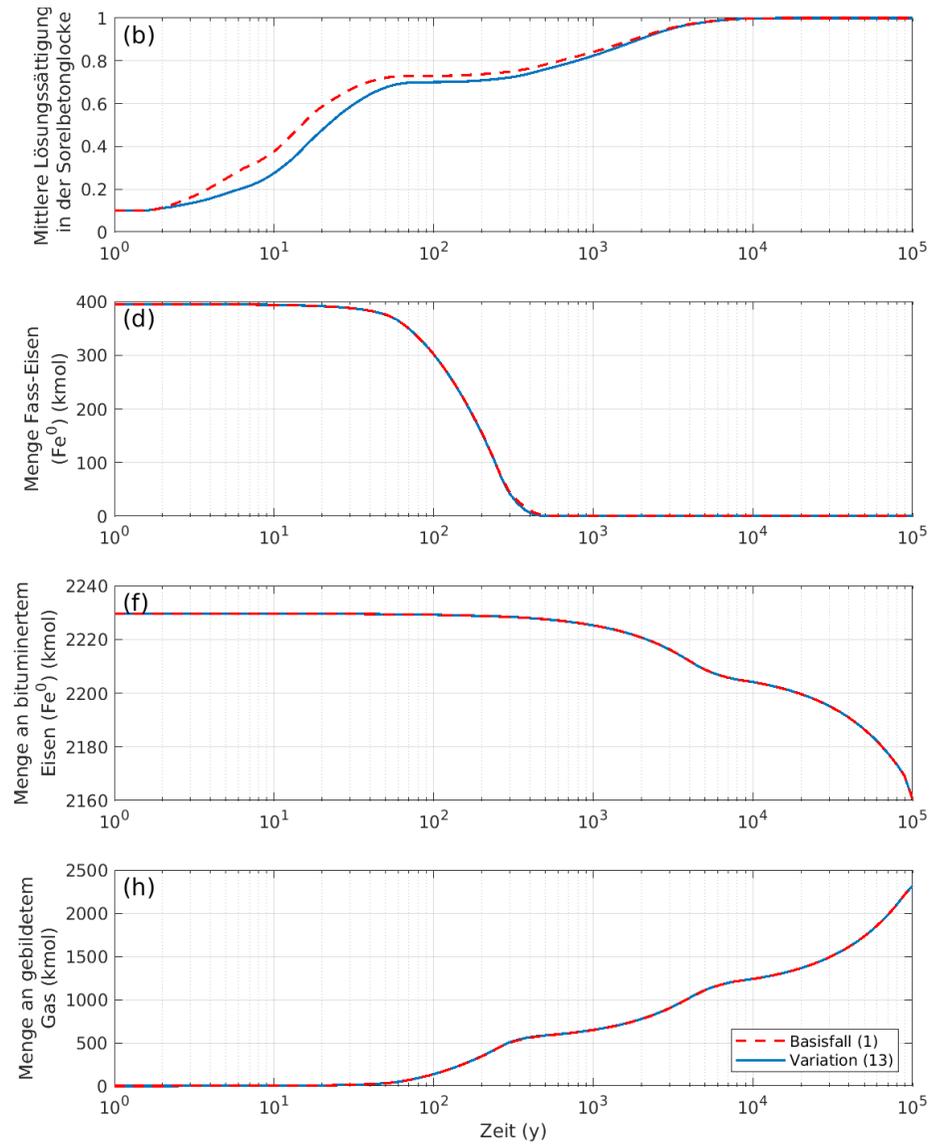
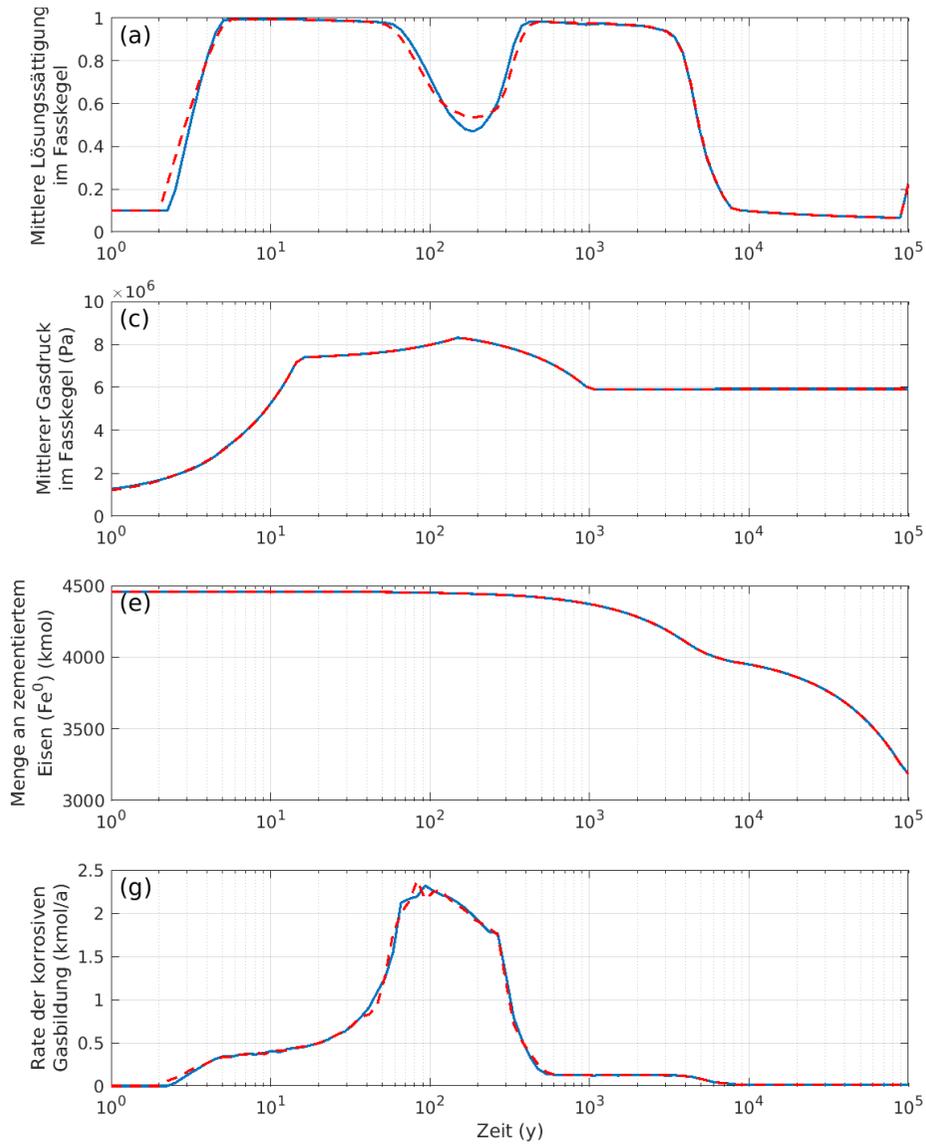
Blatt: 96



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

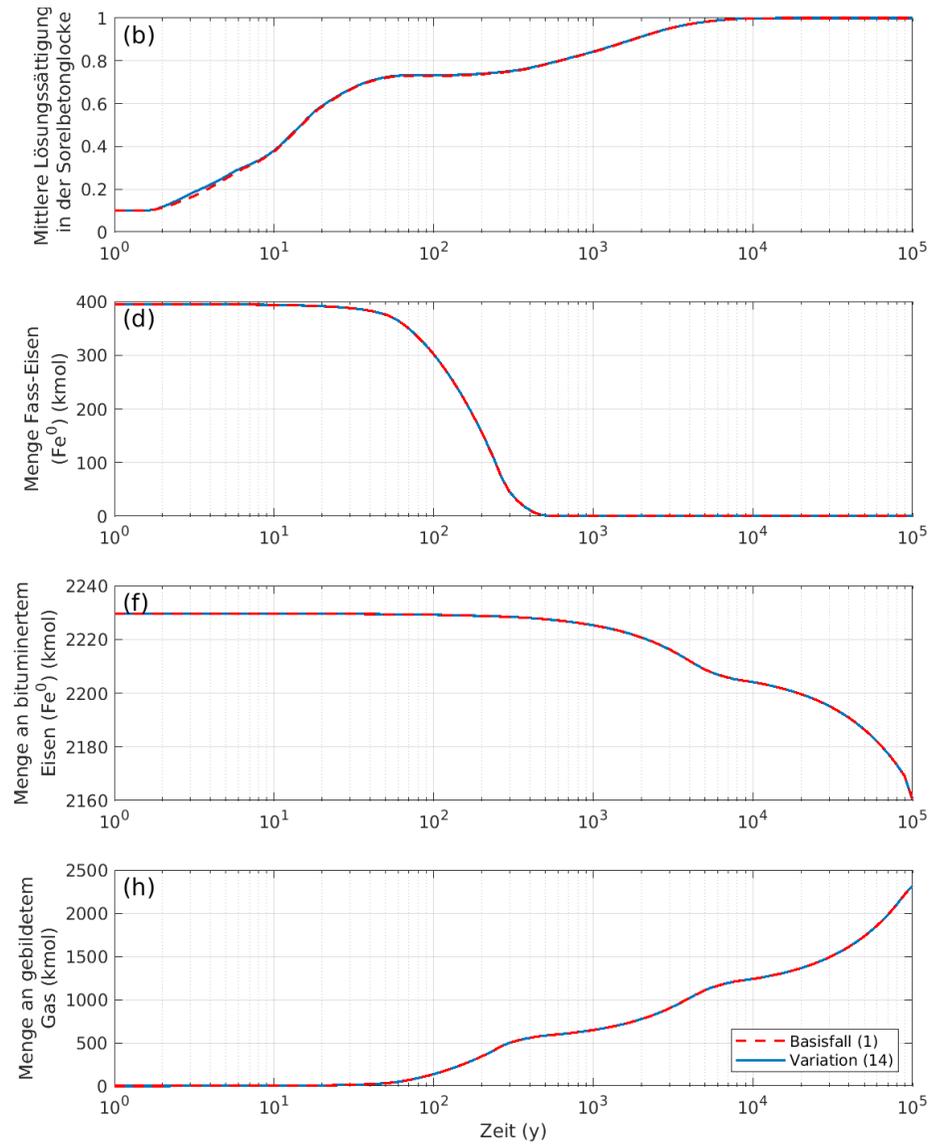
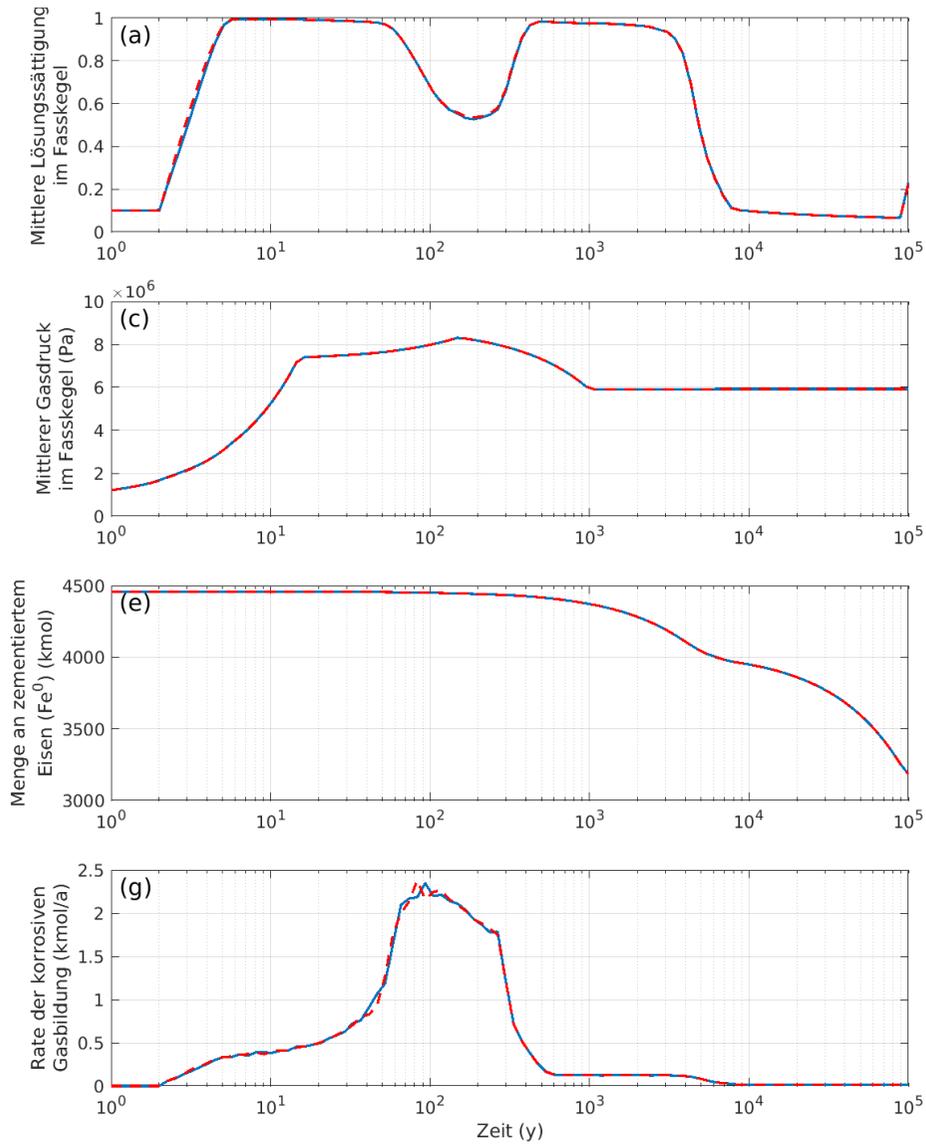
Blatt: 97



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

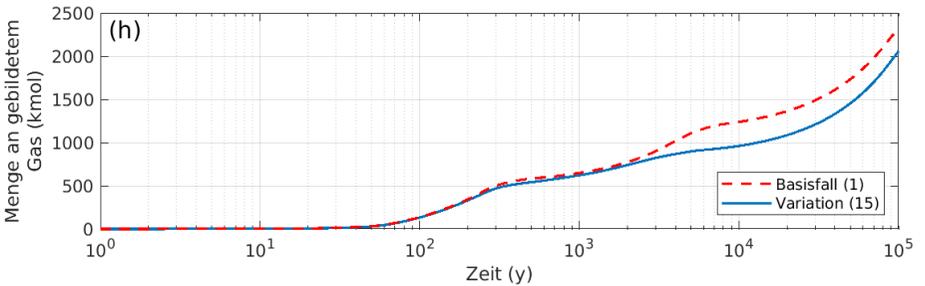
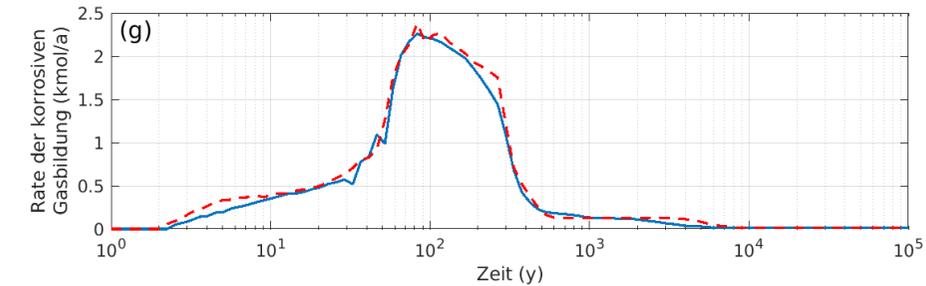
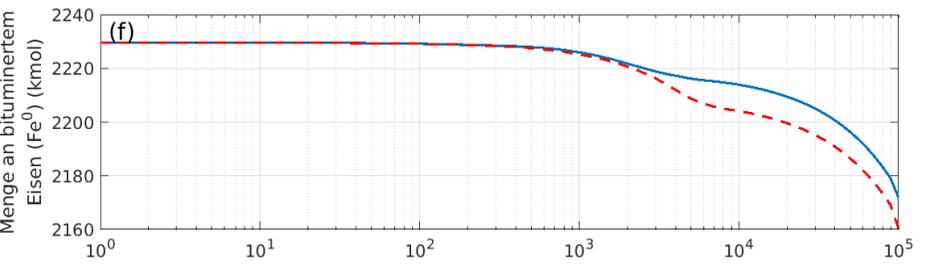
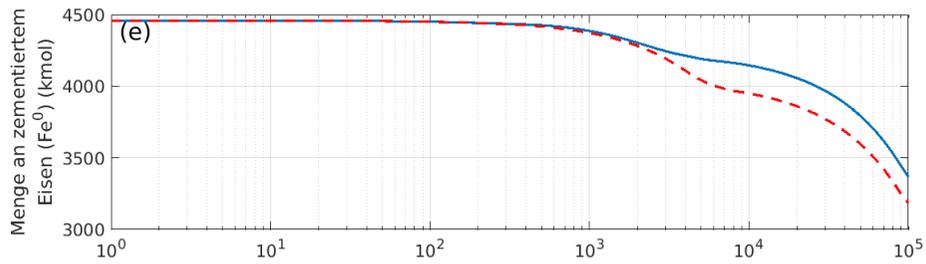
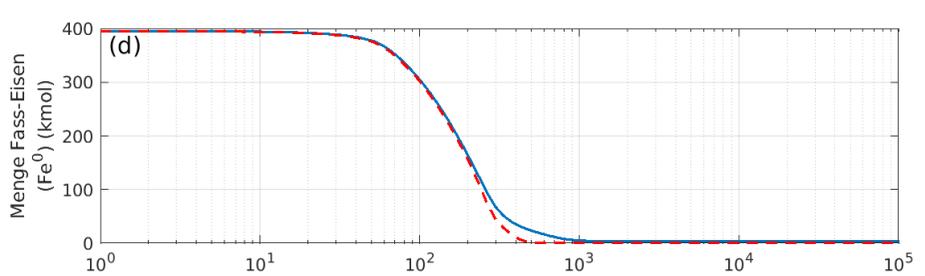
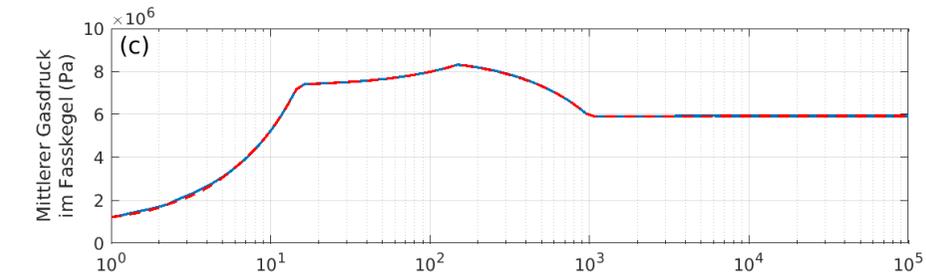
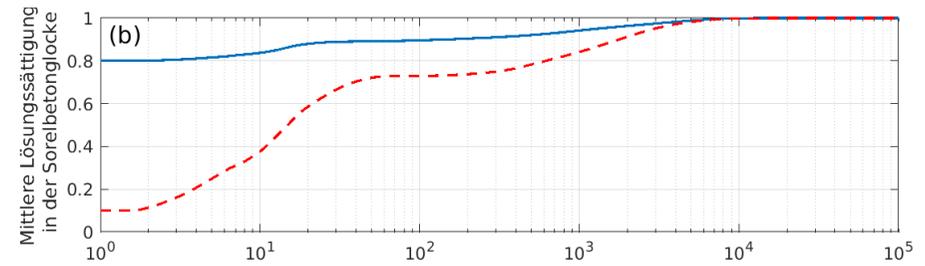
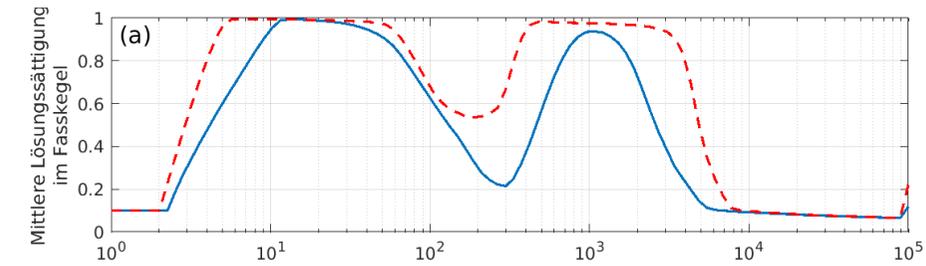
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

Blatt: 98



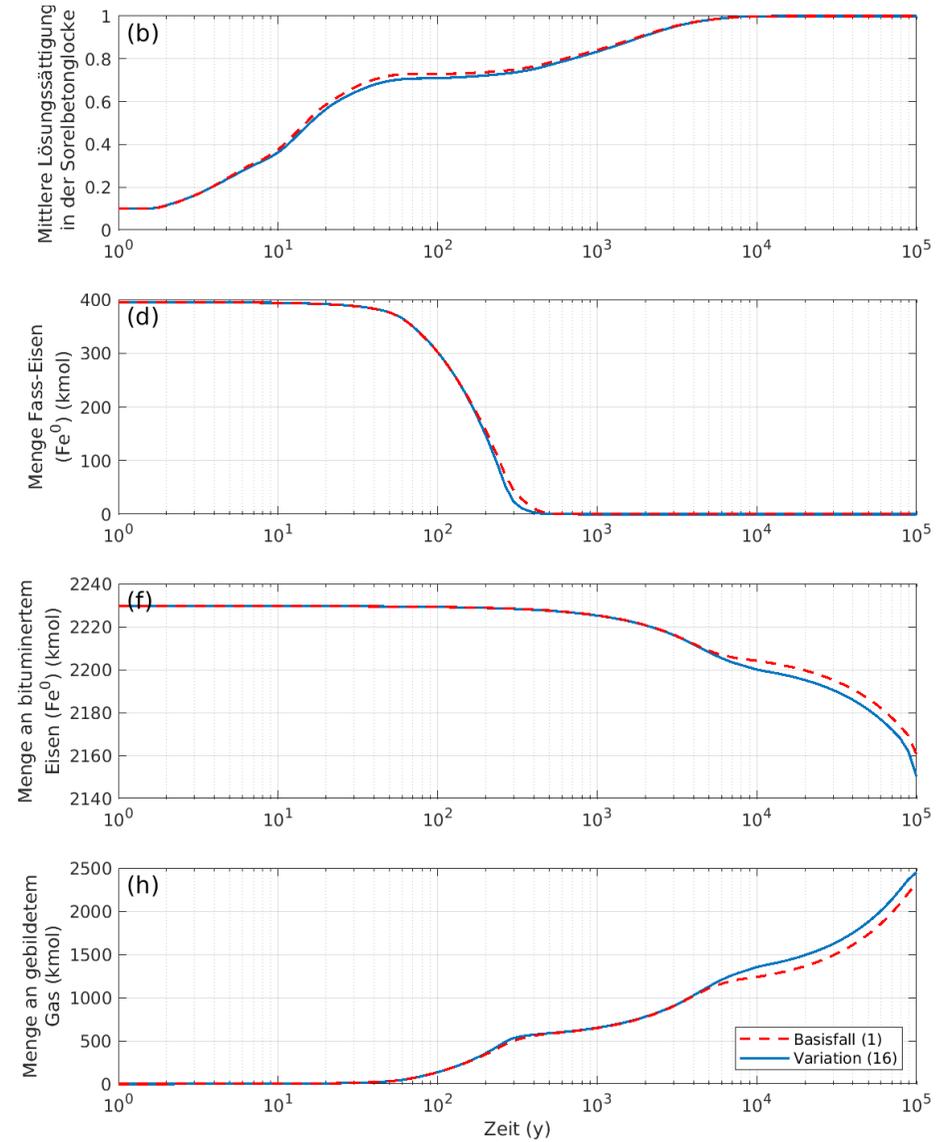
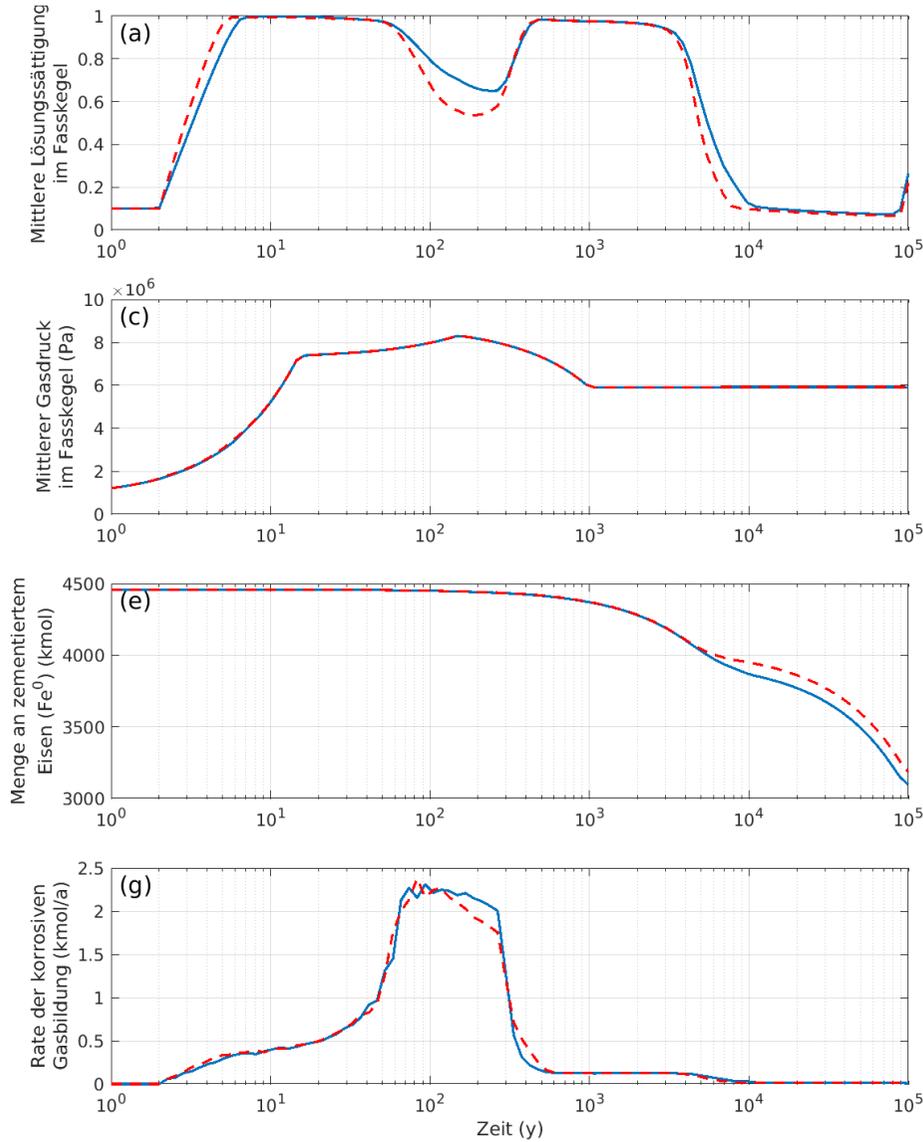
Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00

Blatt: 99



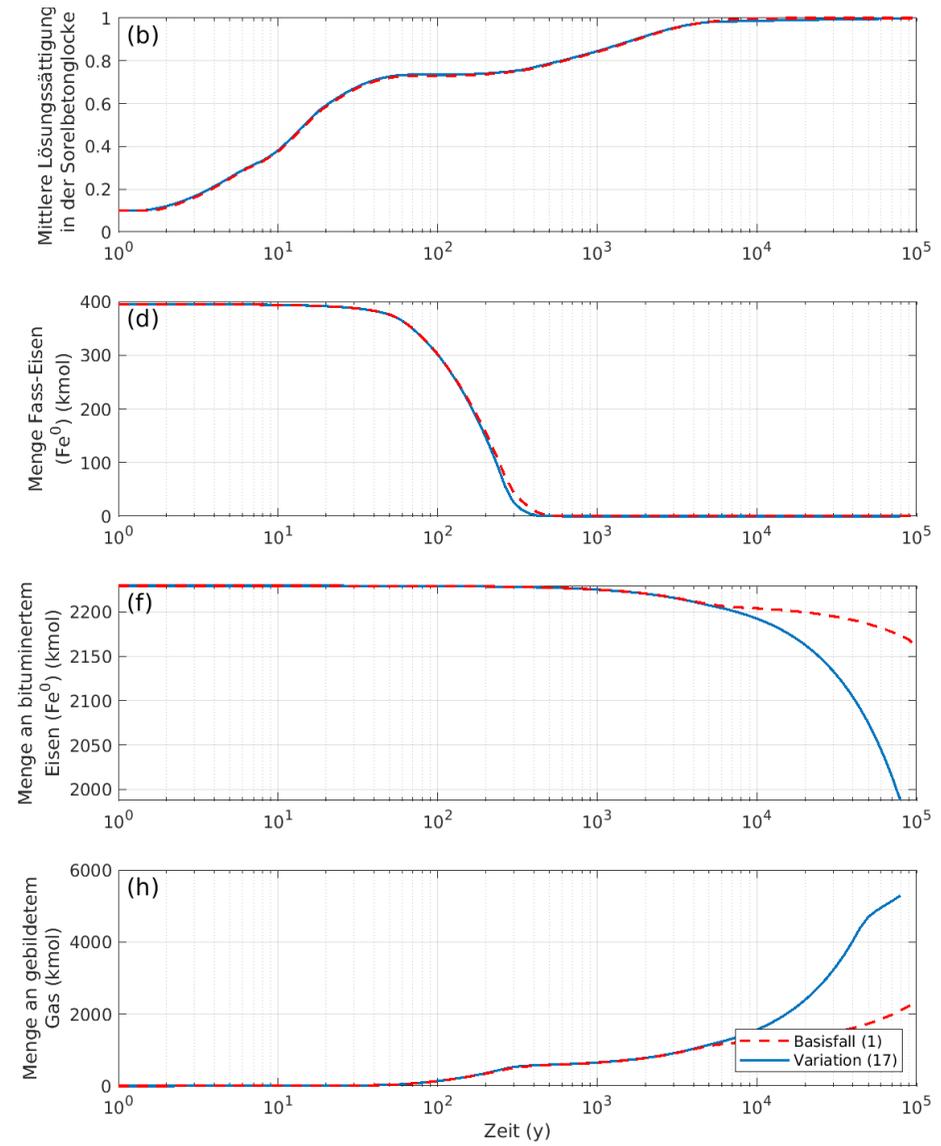
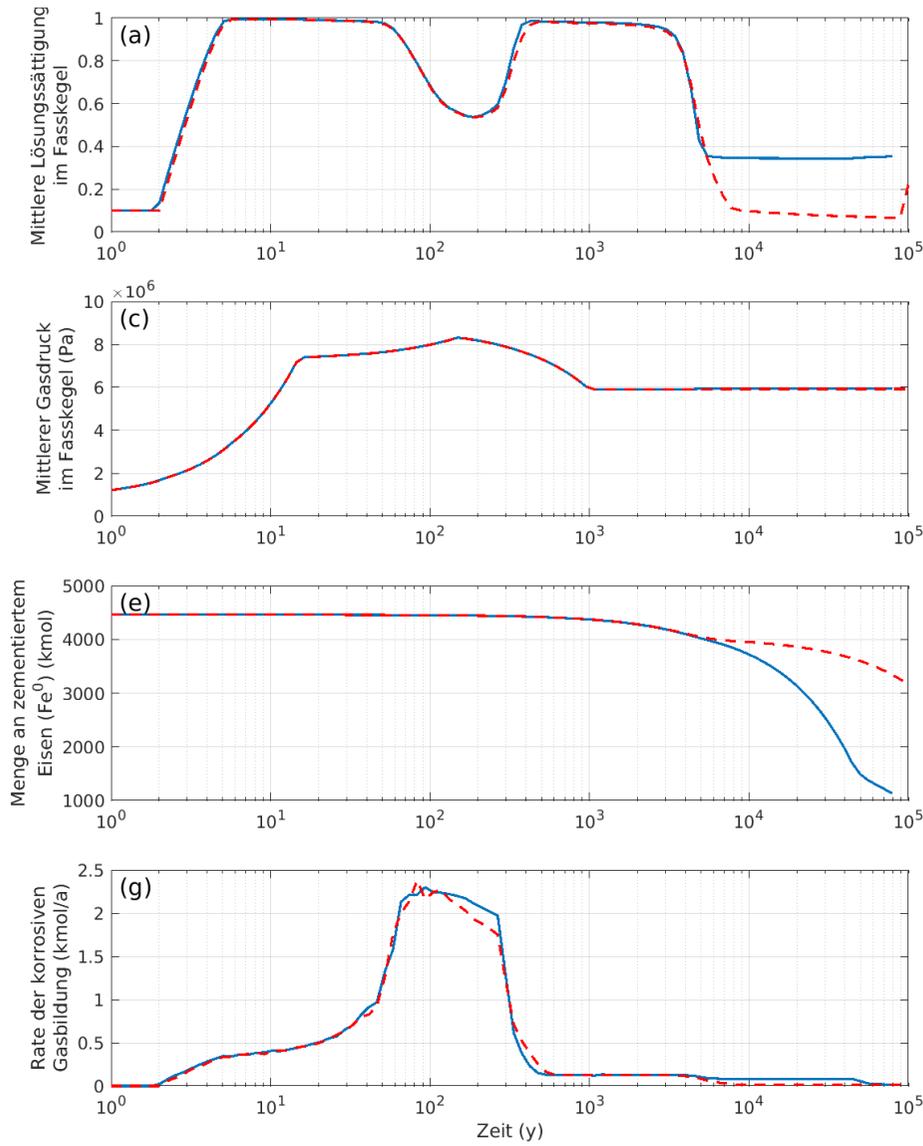
Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme



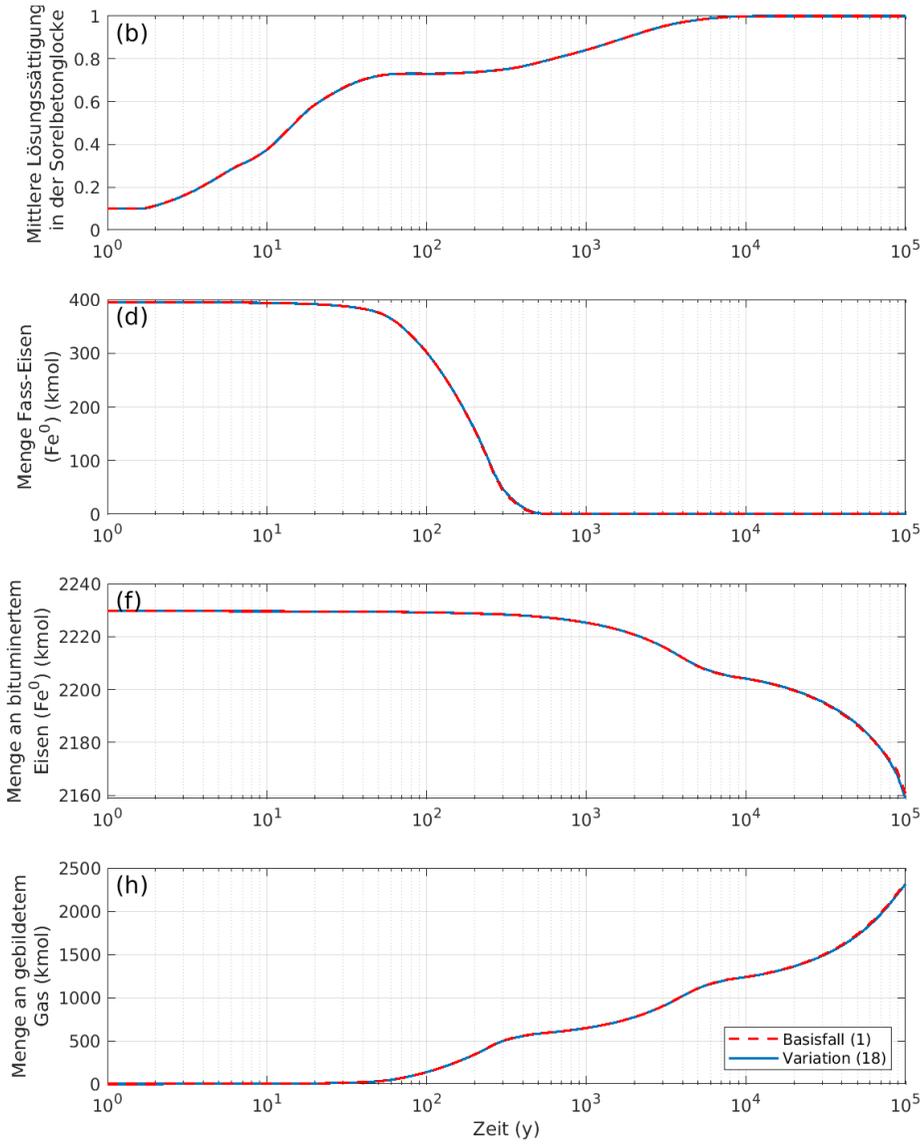
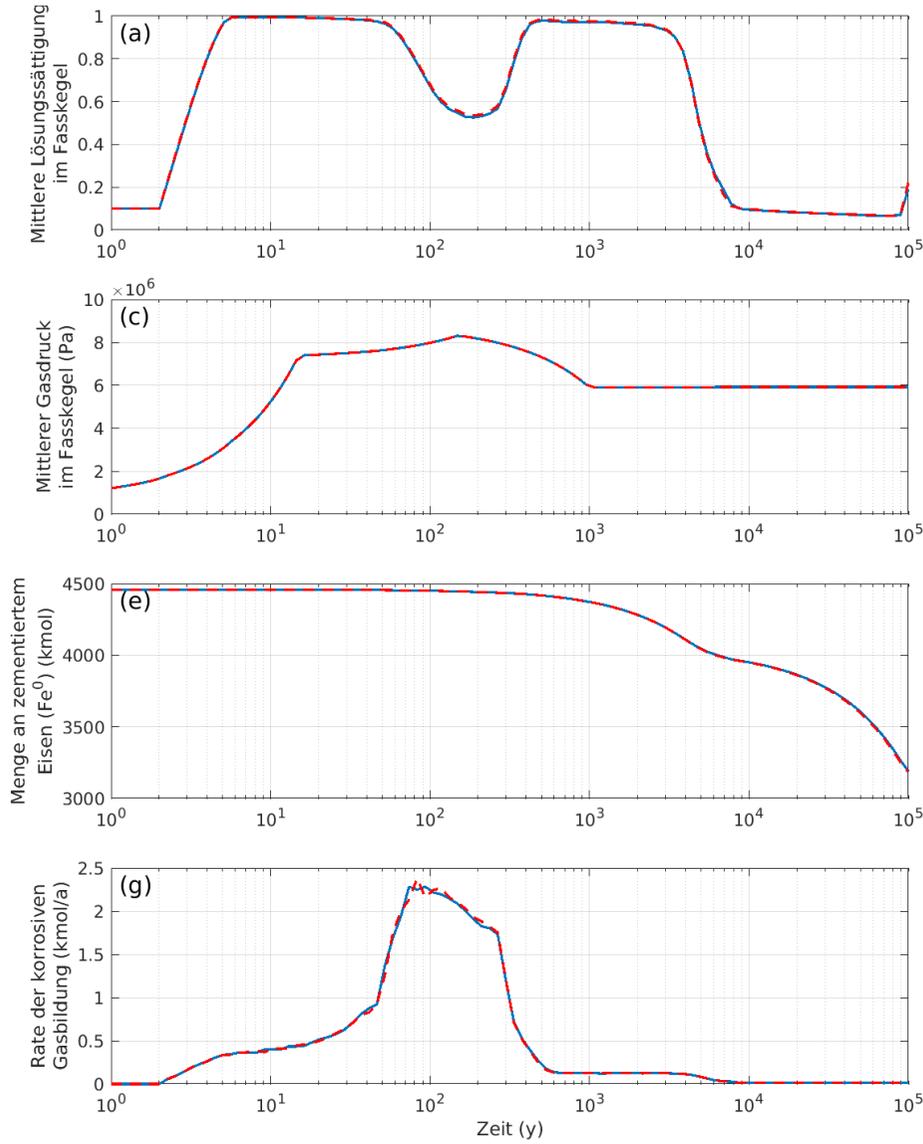
Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

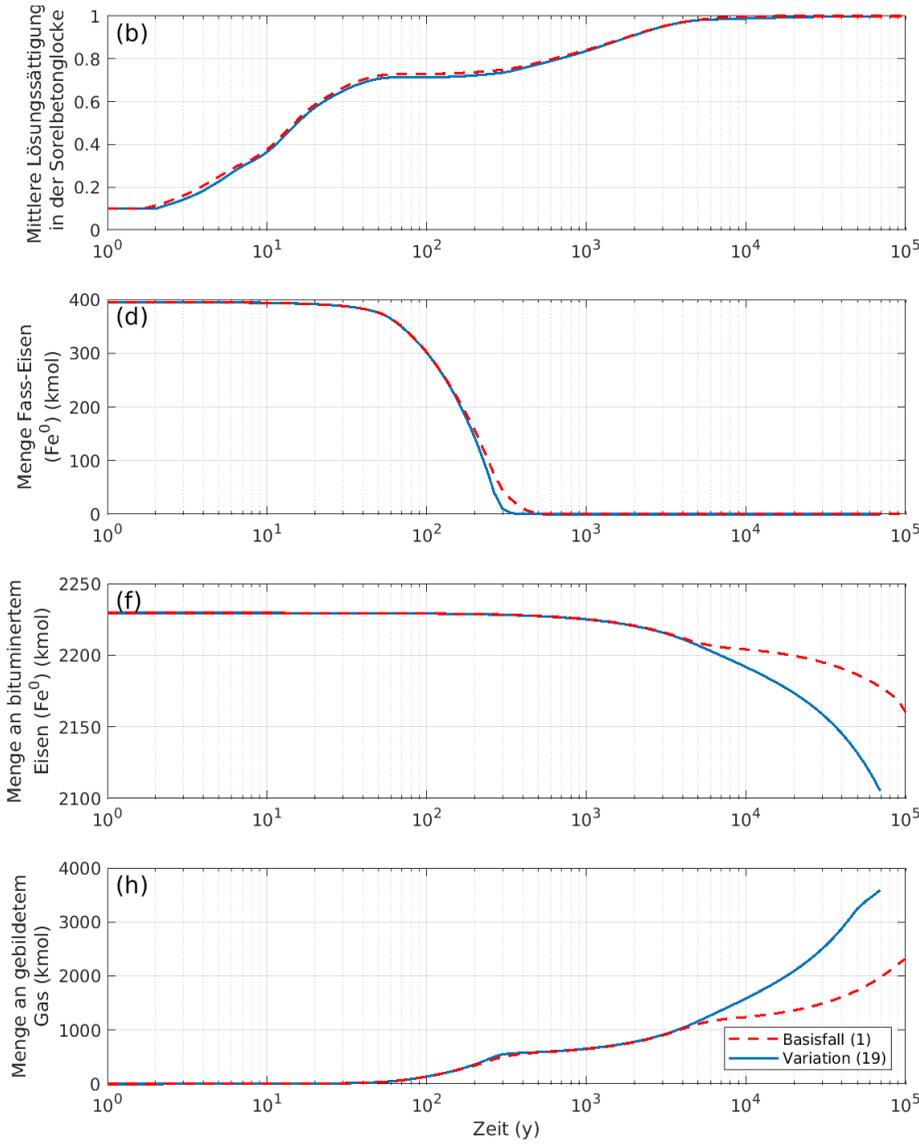
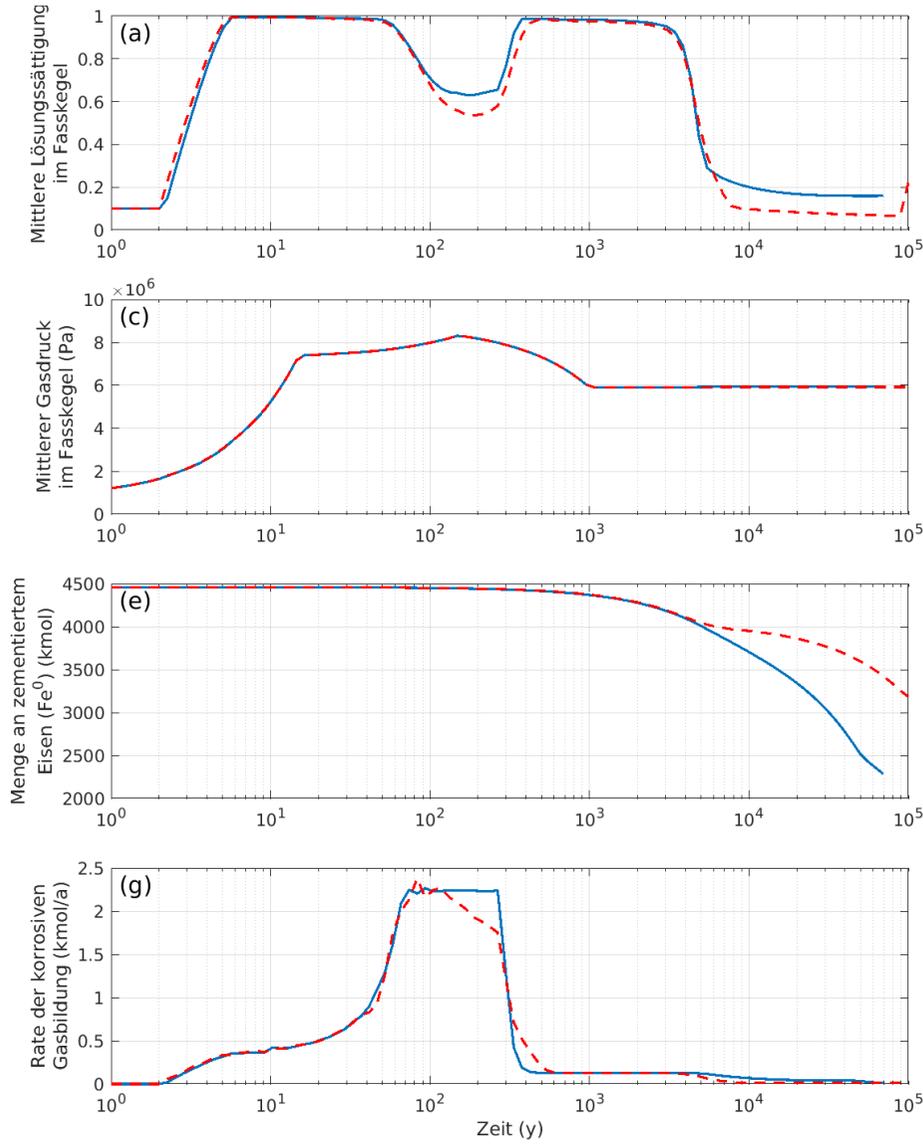
Blatt: 102



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

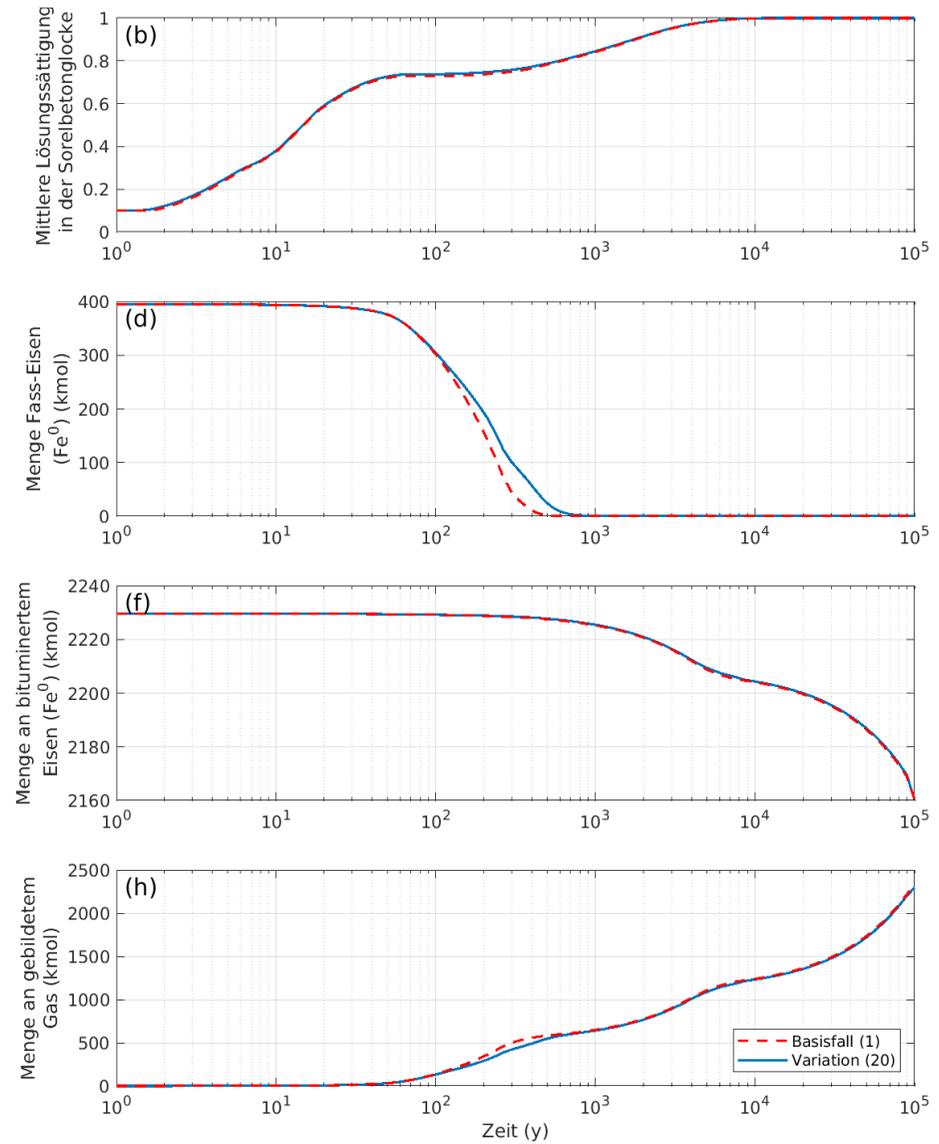
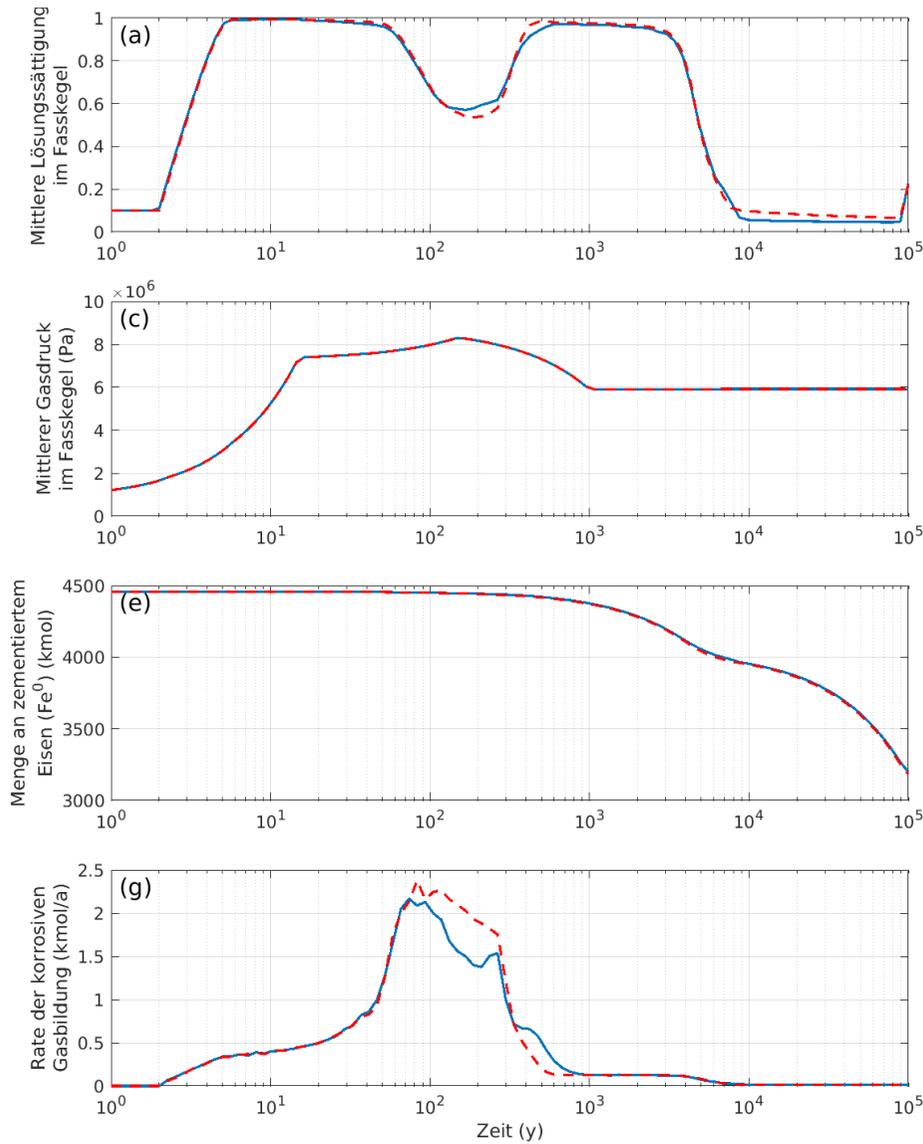
Blatt: 103



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
 und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

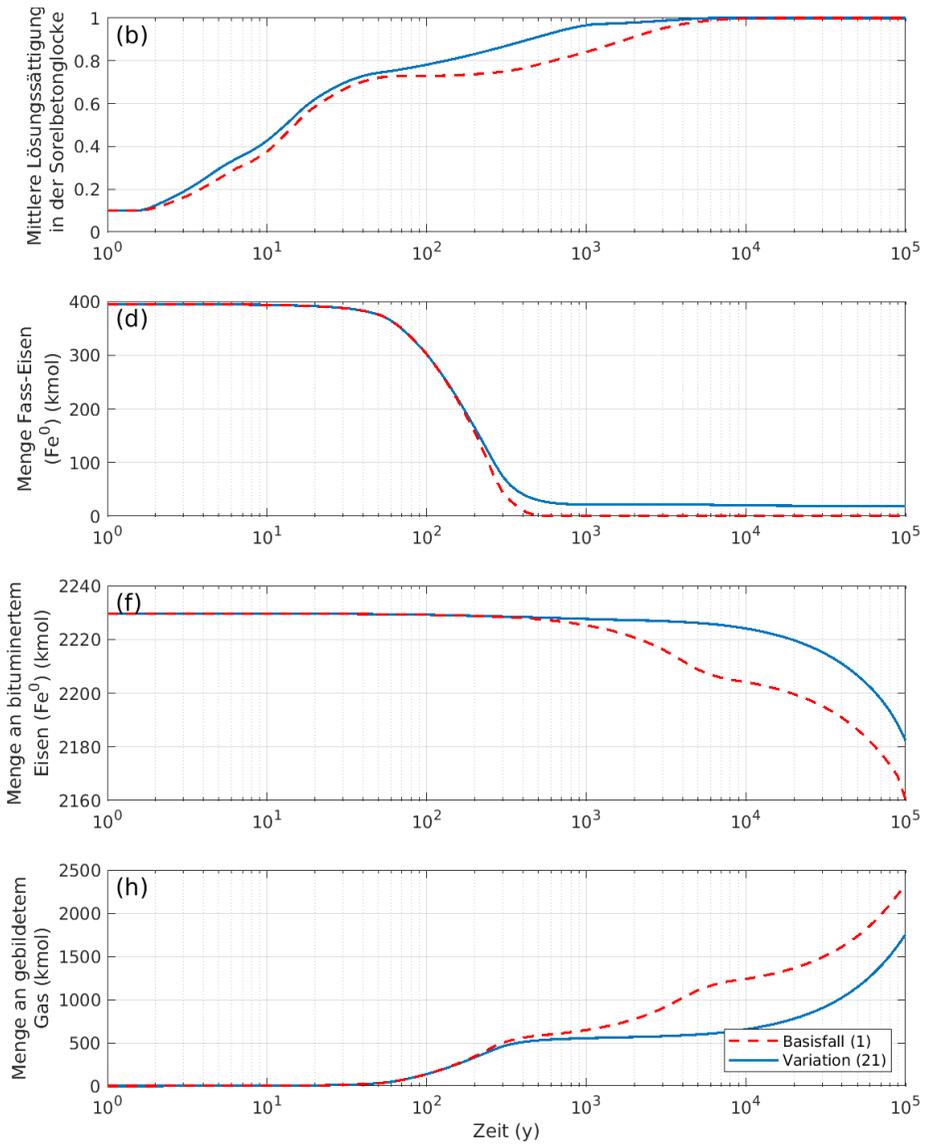
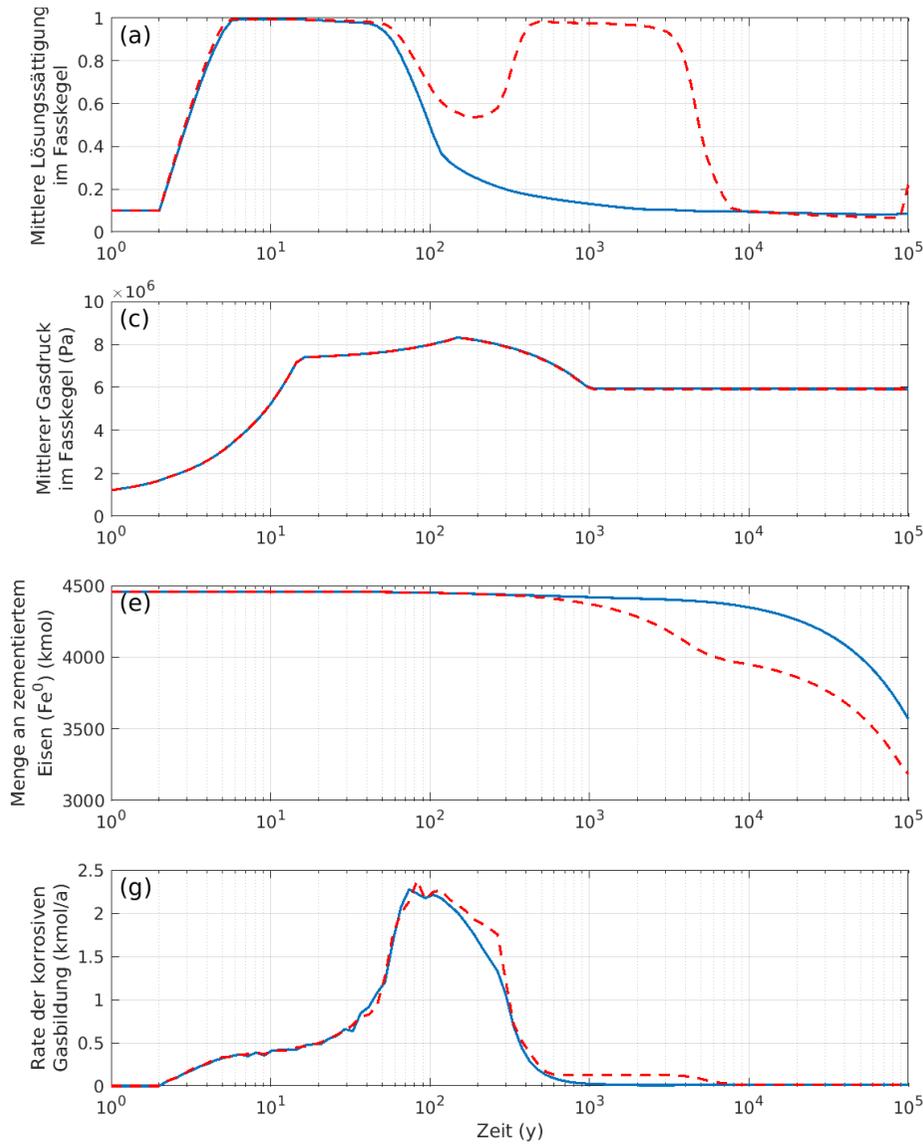
Blatt: 104



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00

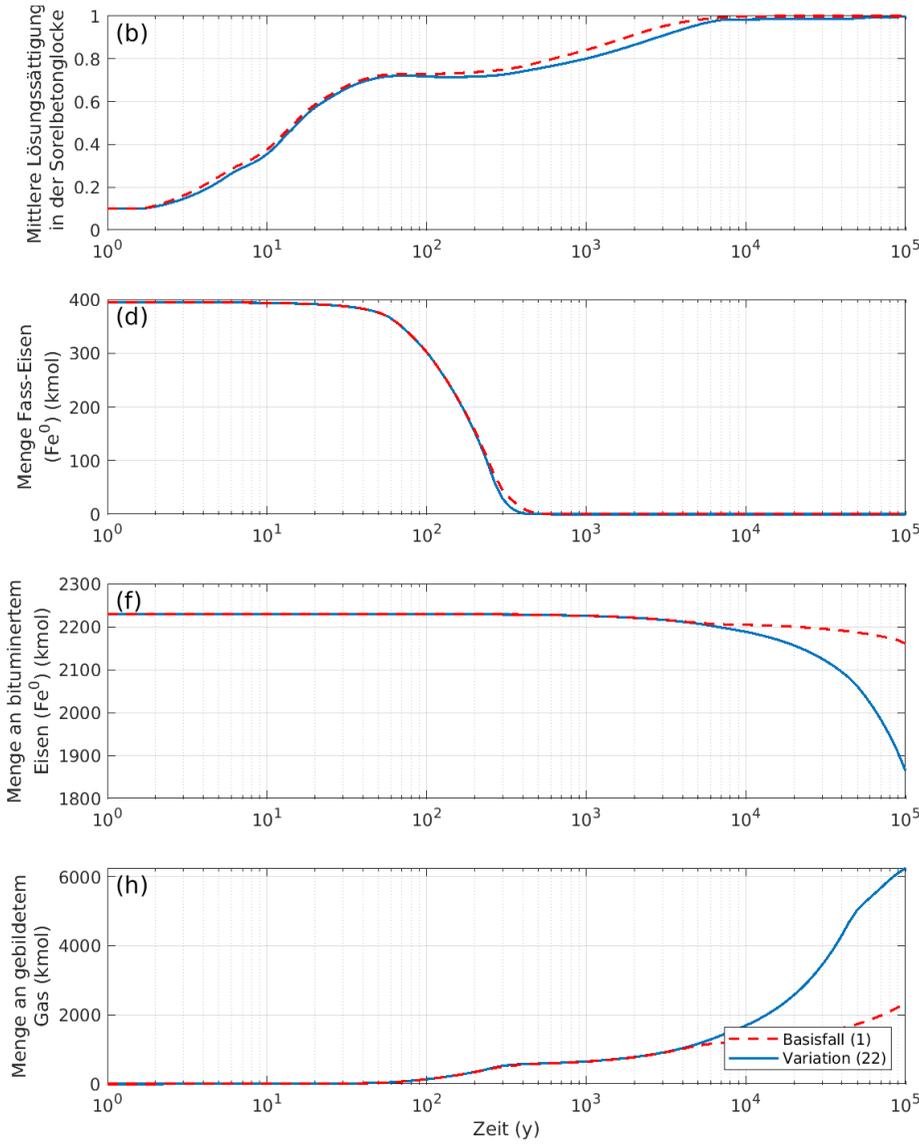
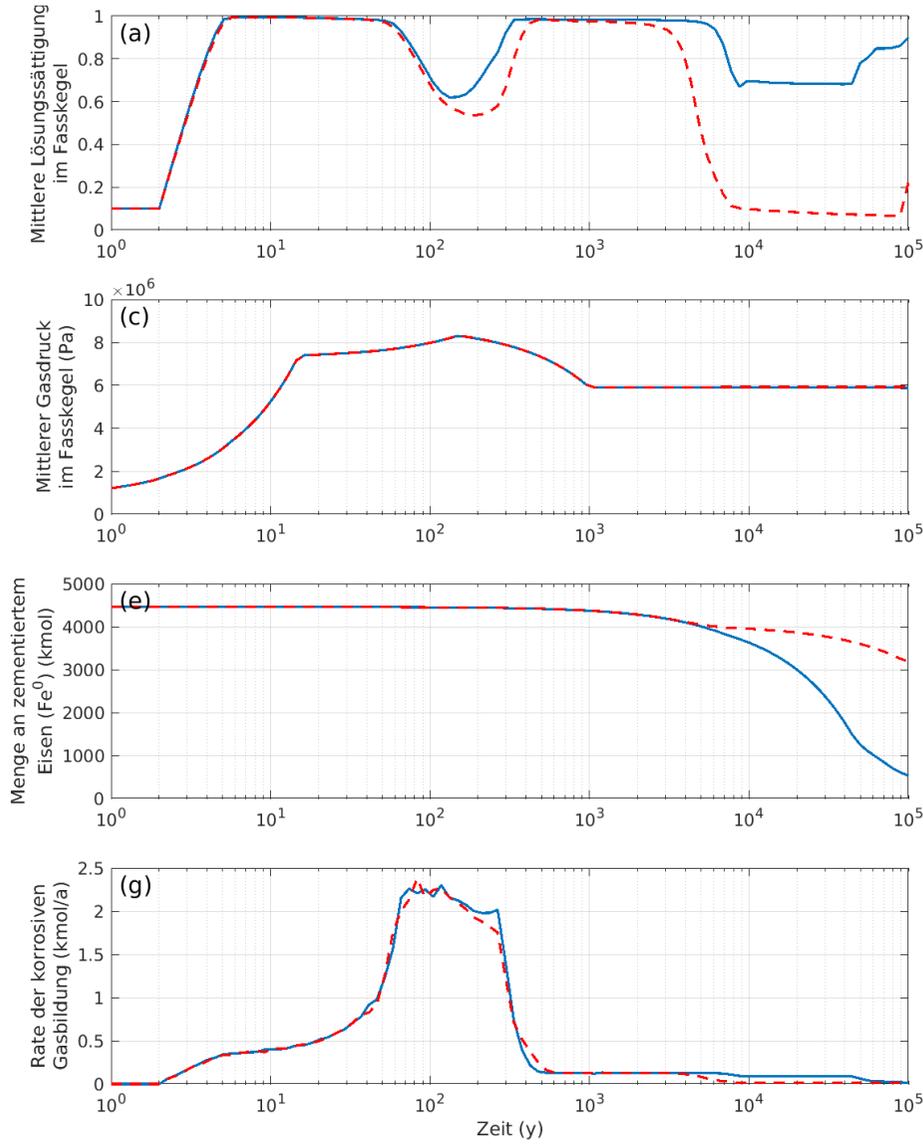


Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme



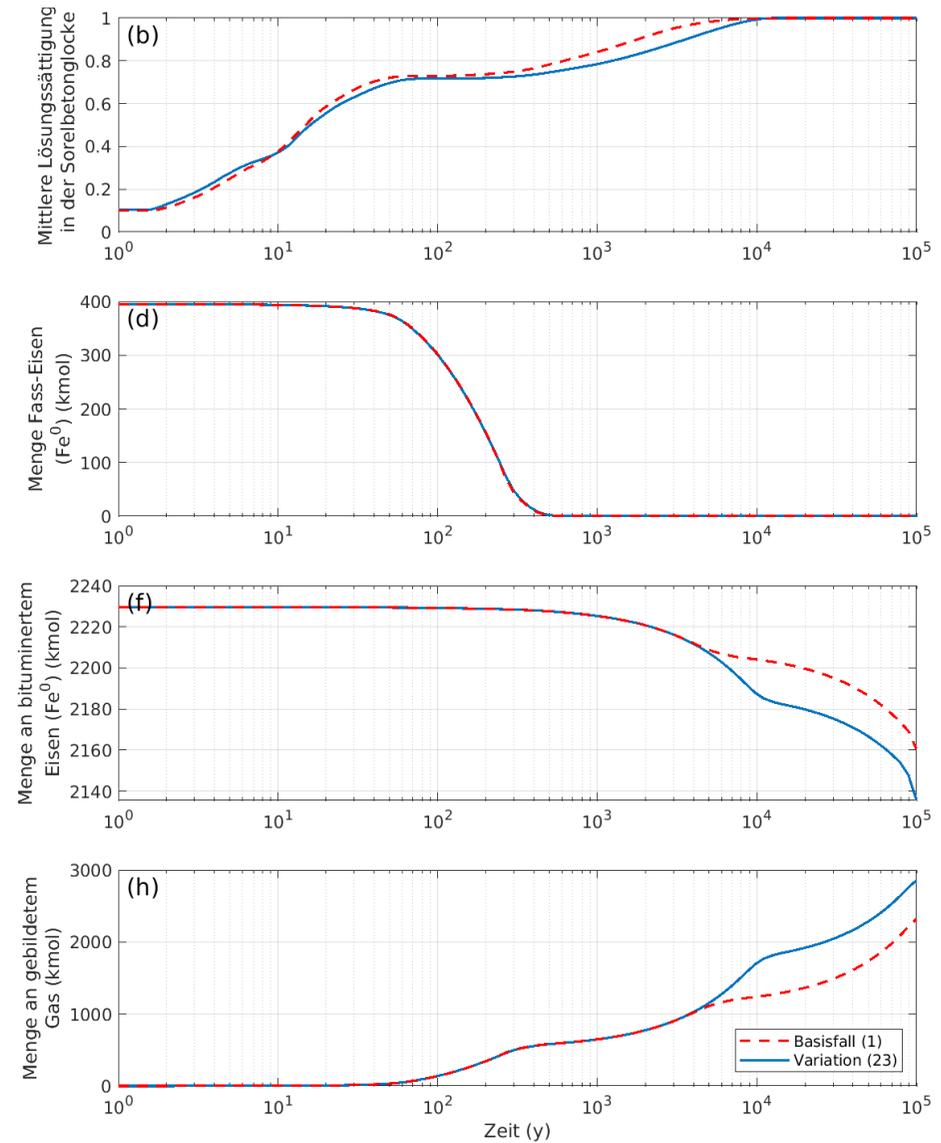
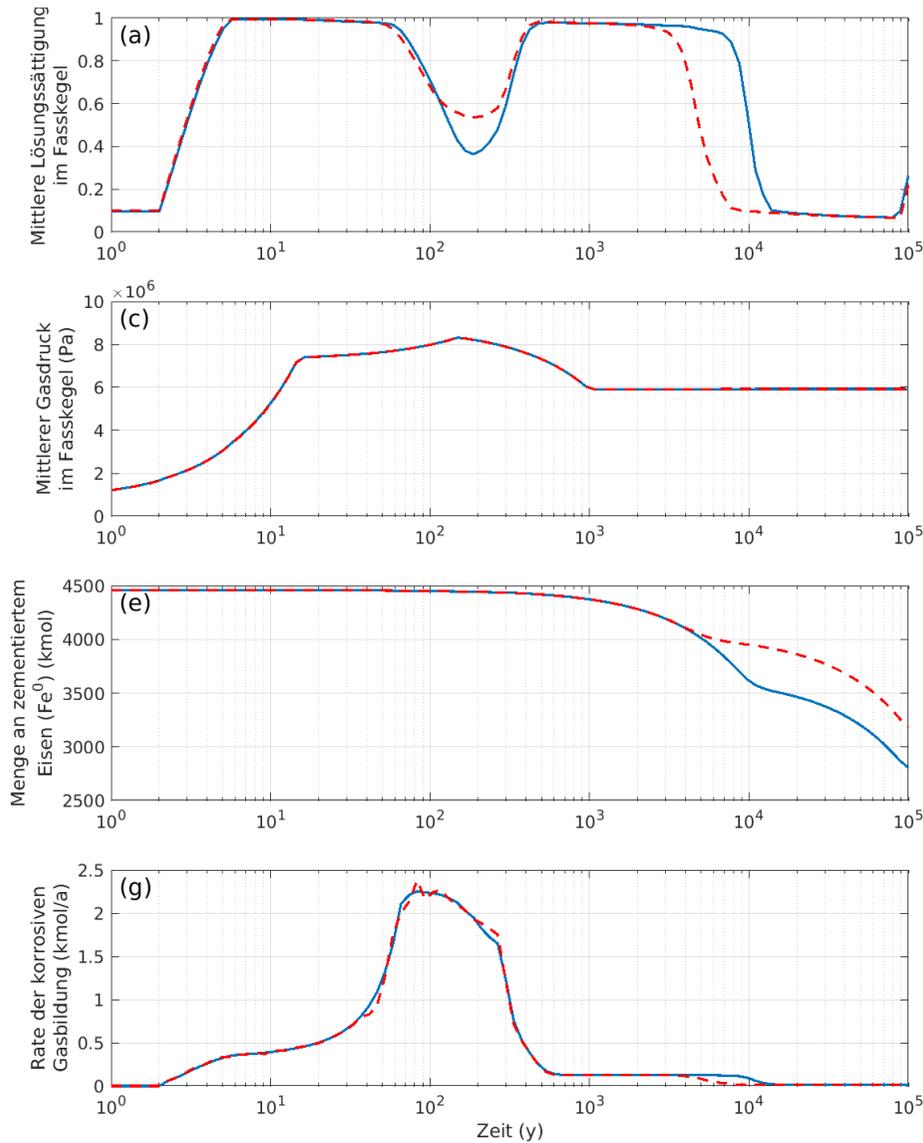
Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00

Blatt: 106



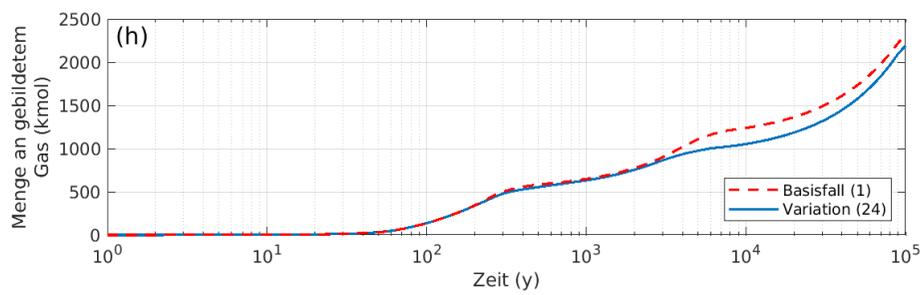
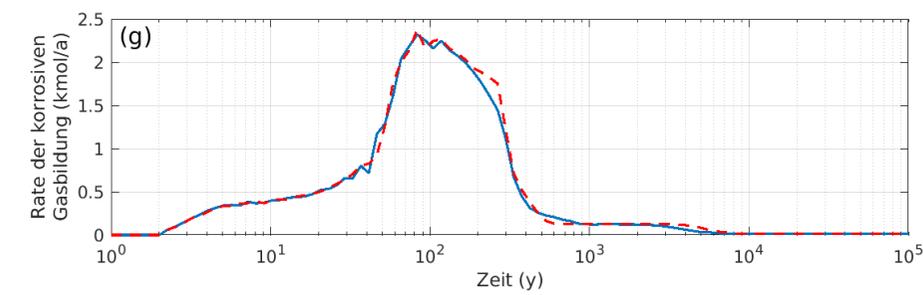
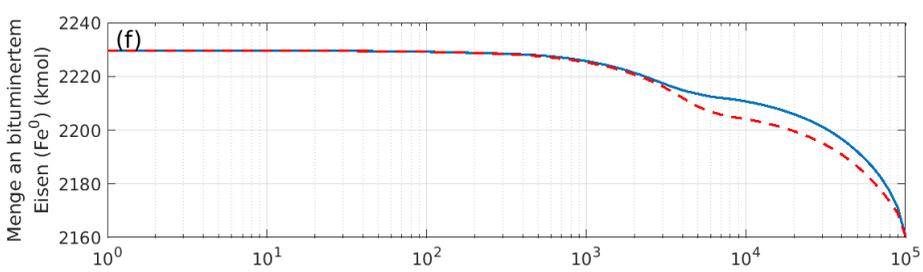
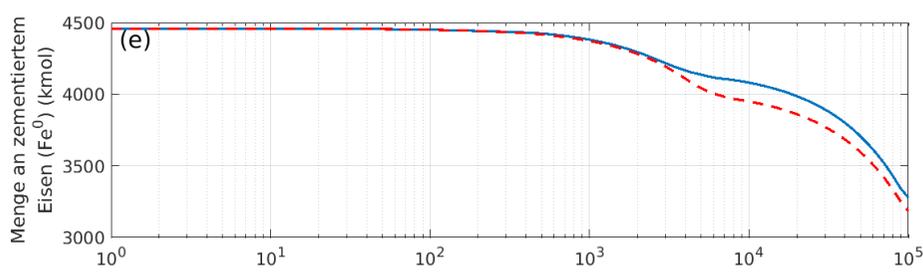
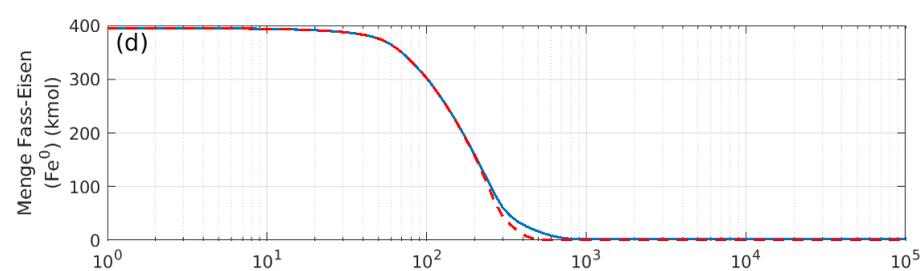
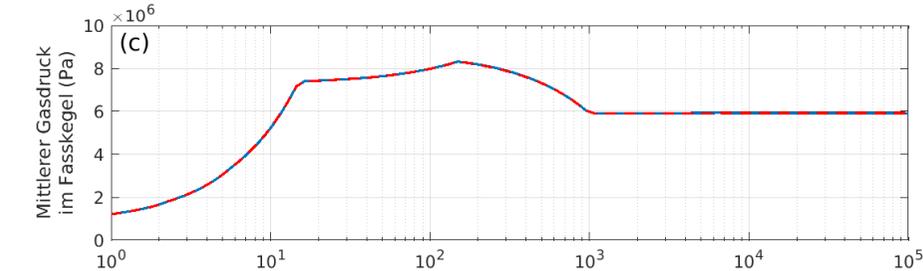
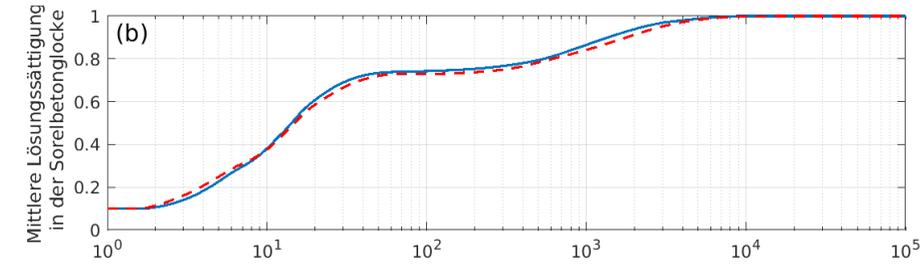
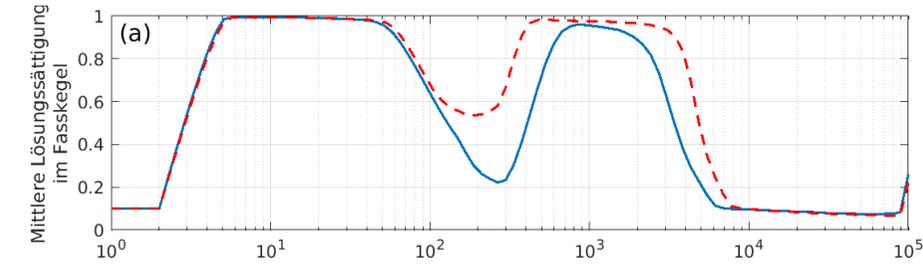
Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme



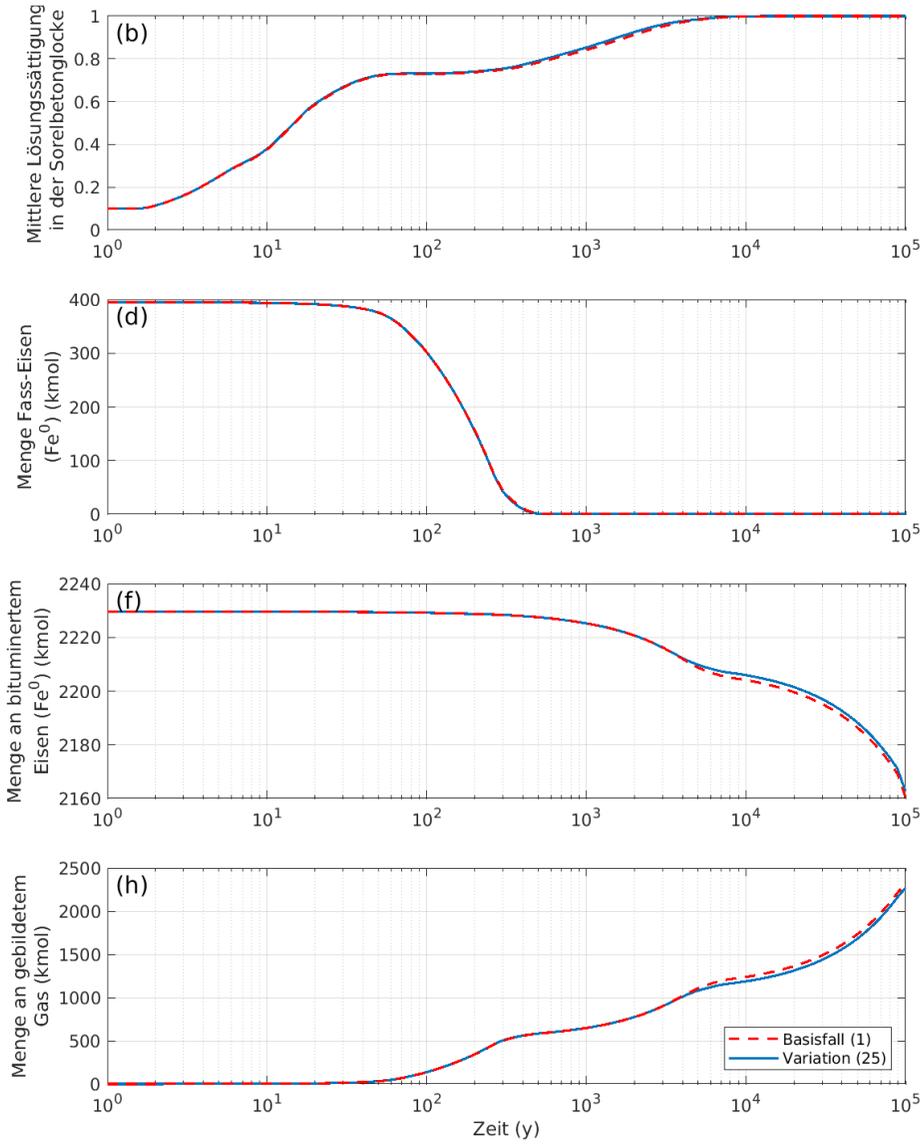
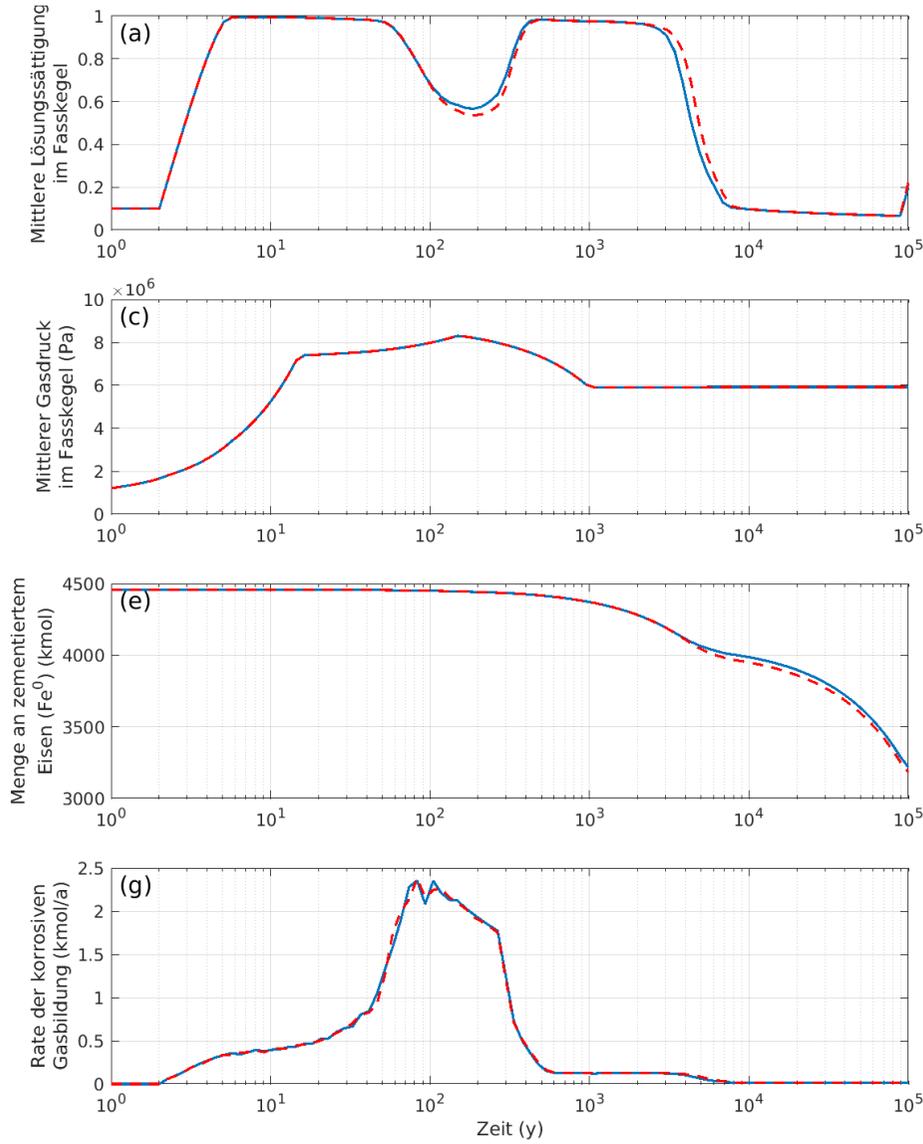
Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00

Blatt: 108



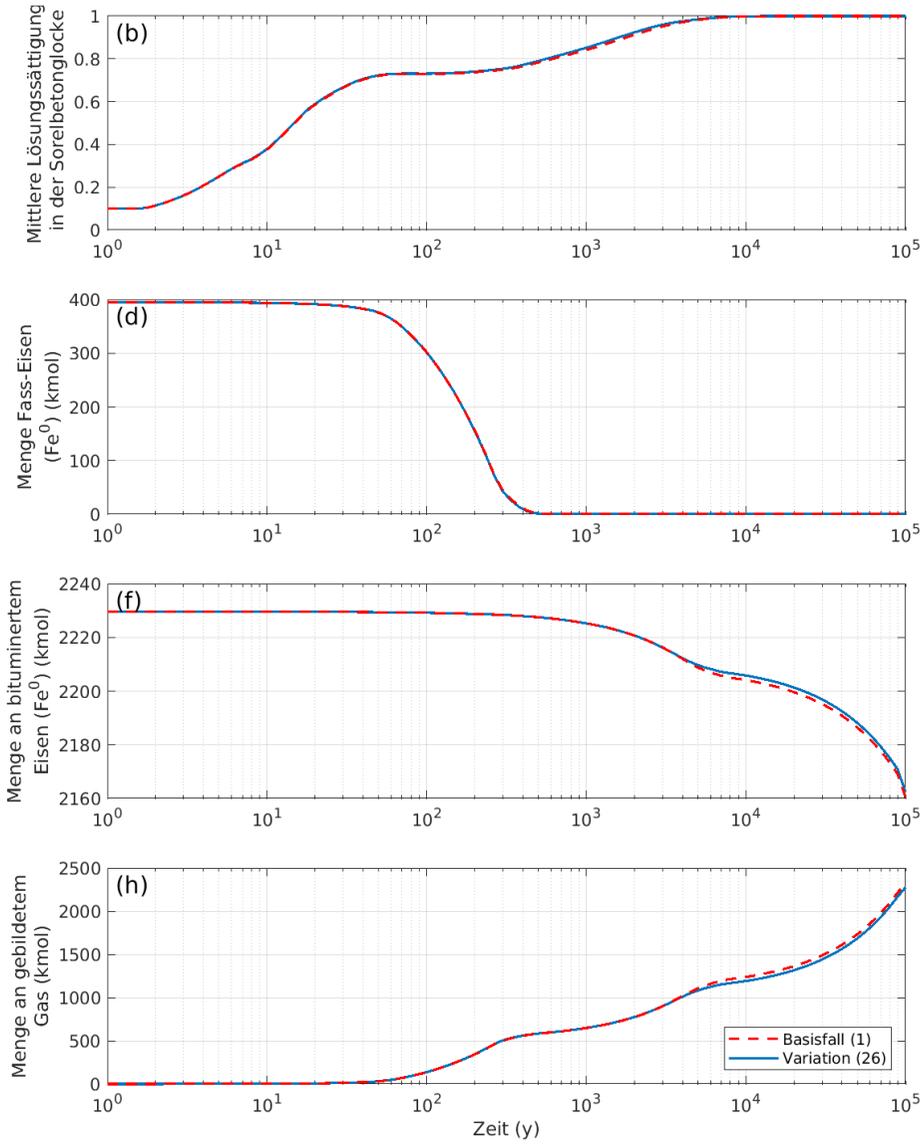
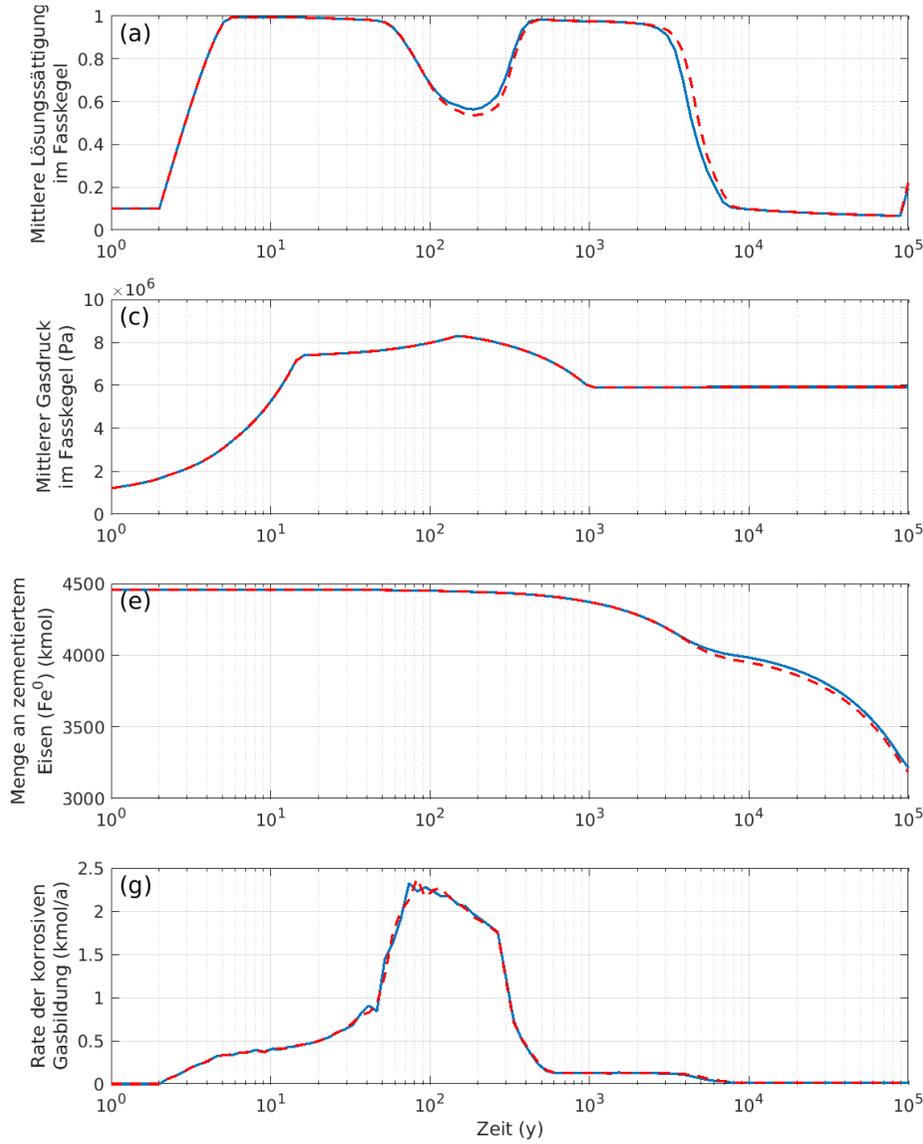
Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00

Blatt: 109



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00

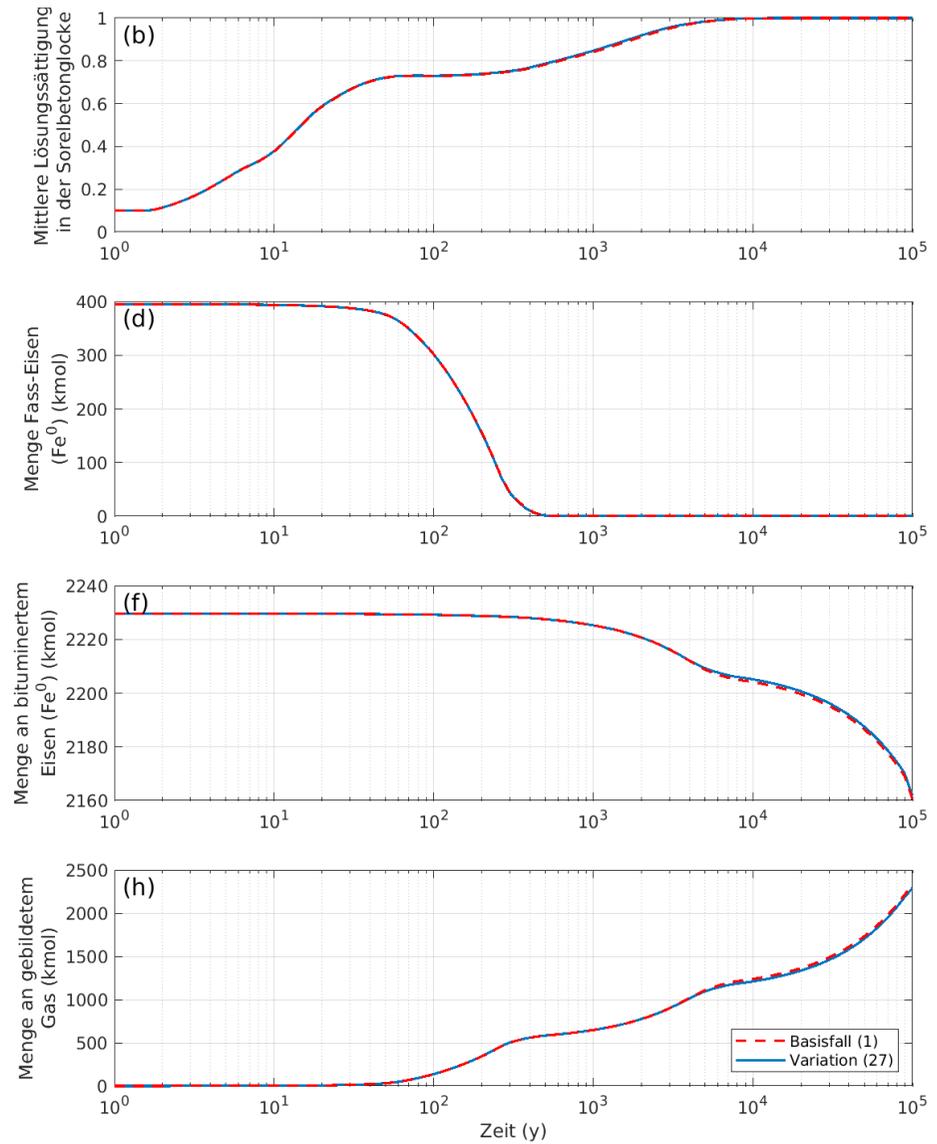
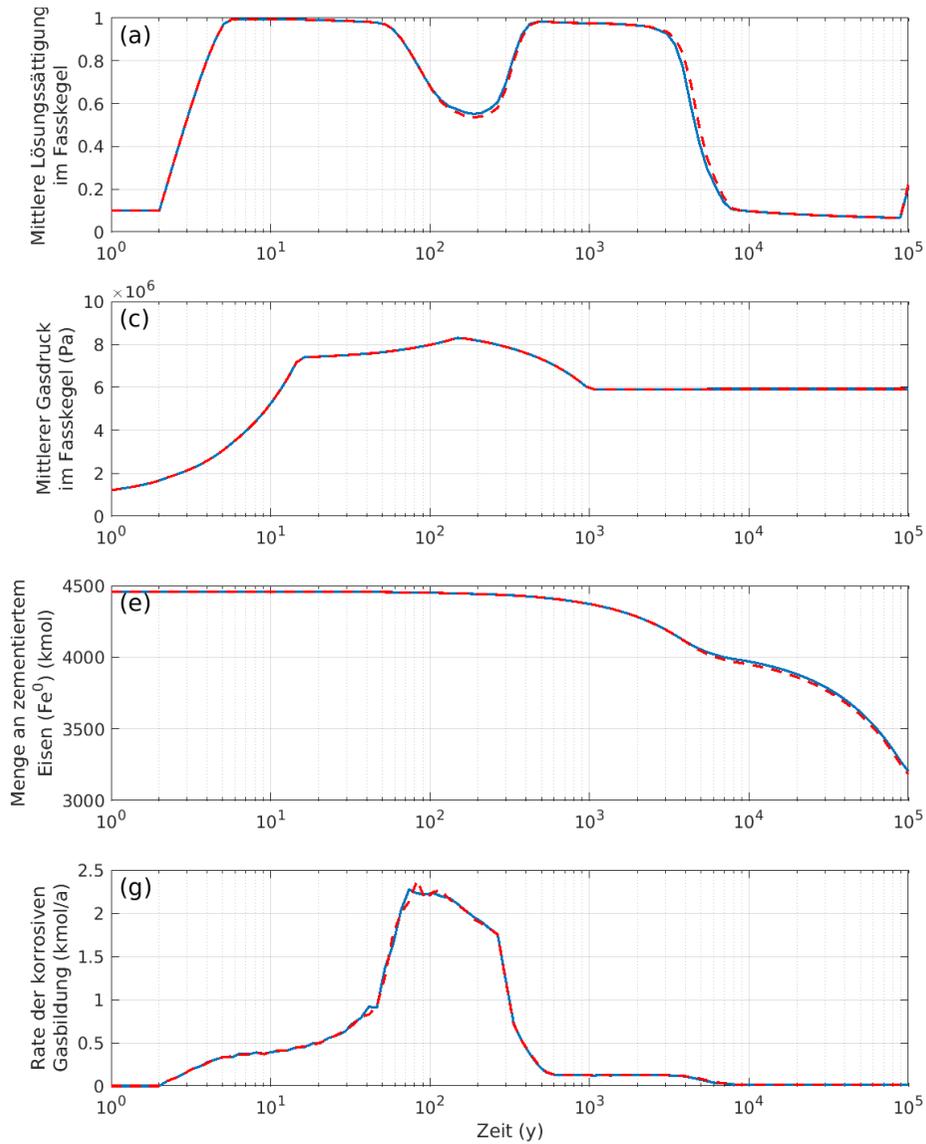
Blatt: 110



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

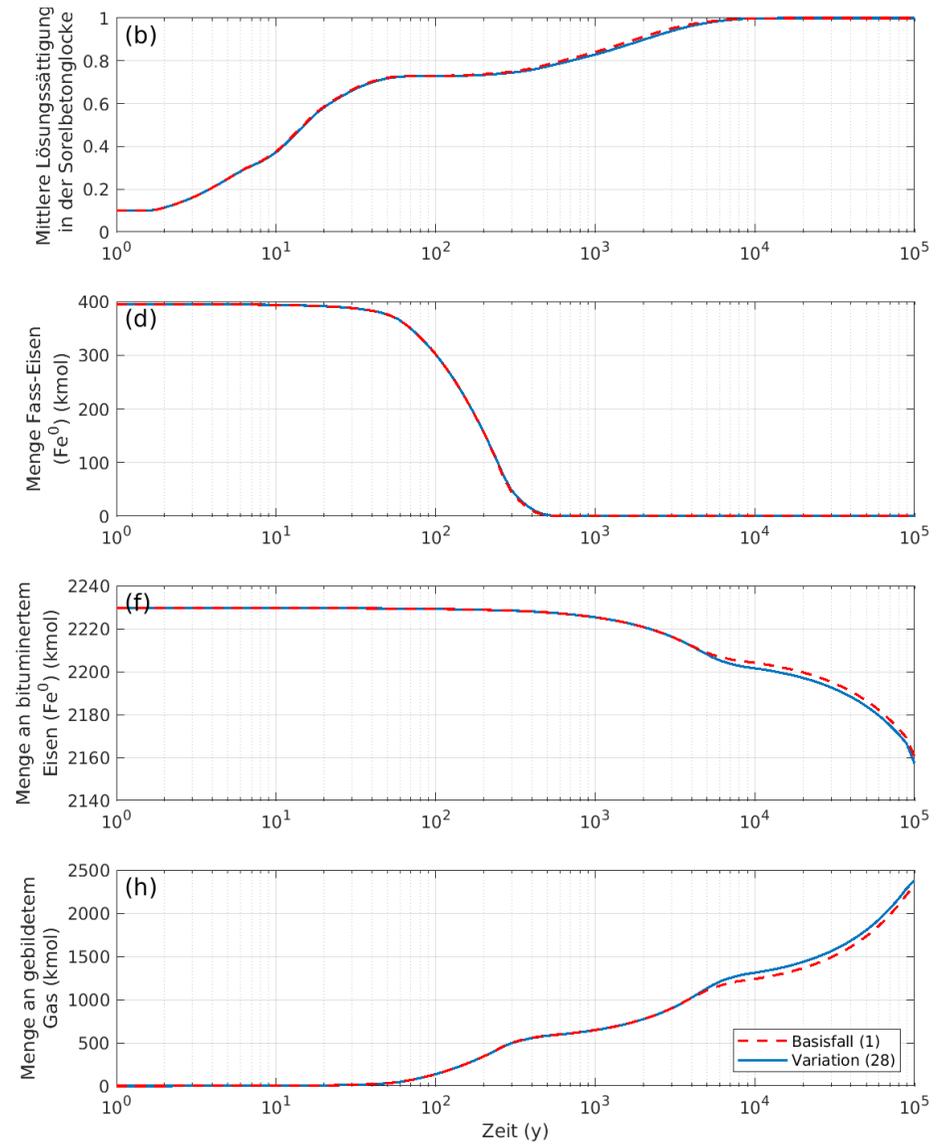
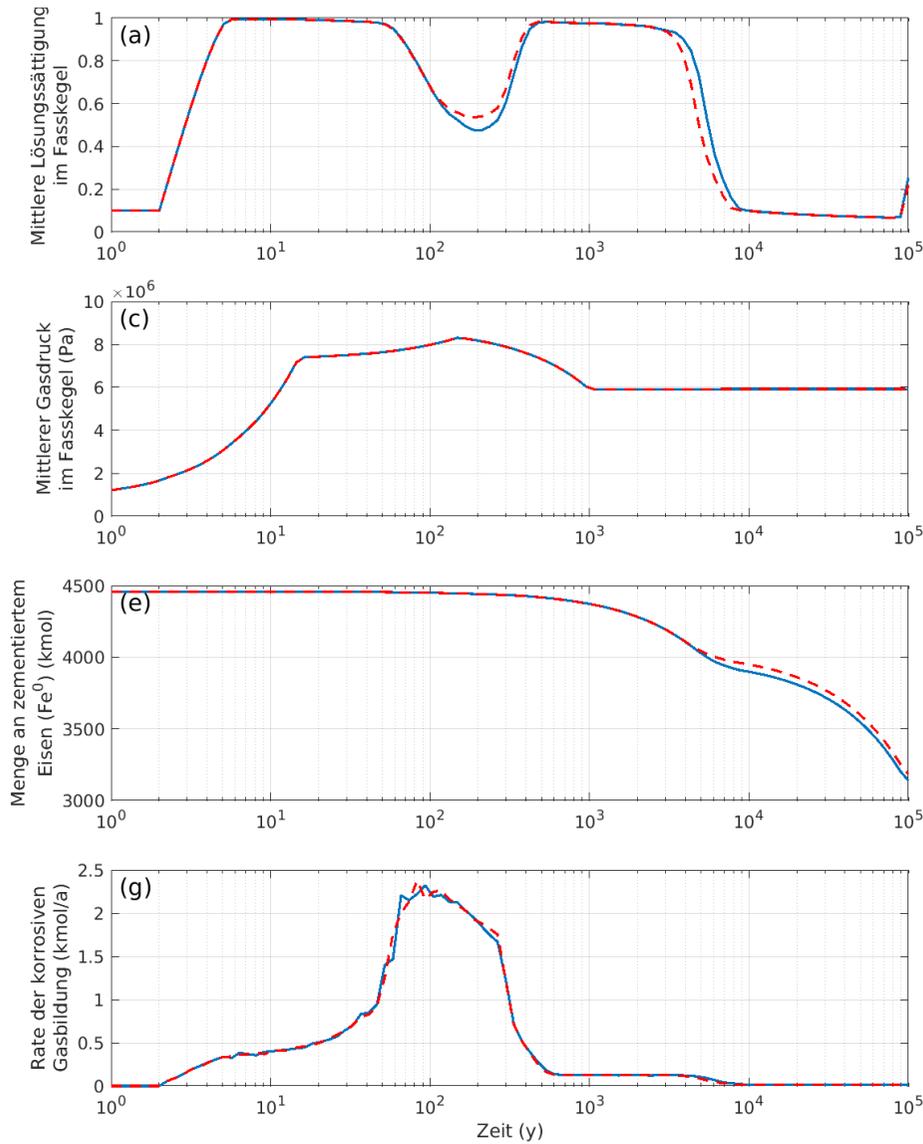
Blatt: 111



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

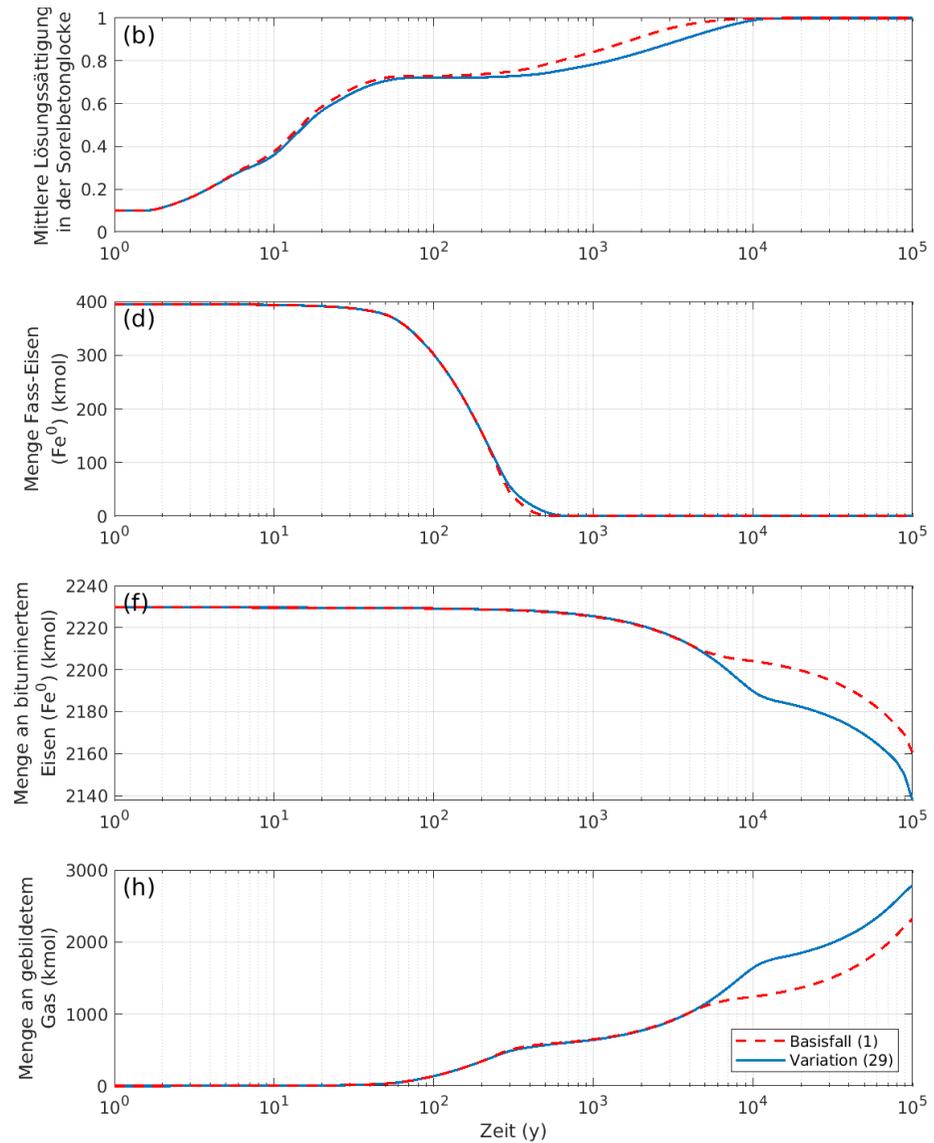
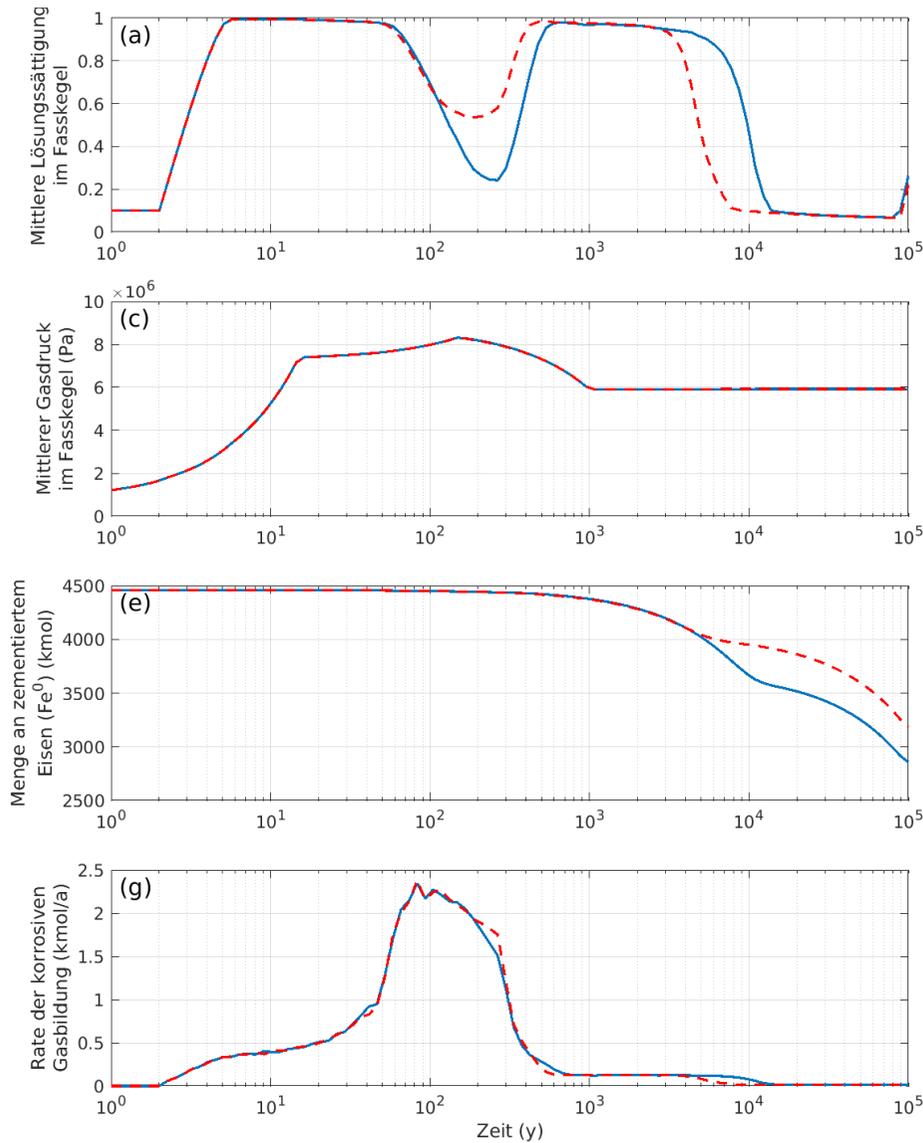
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

Blatt: 112



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00

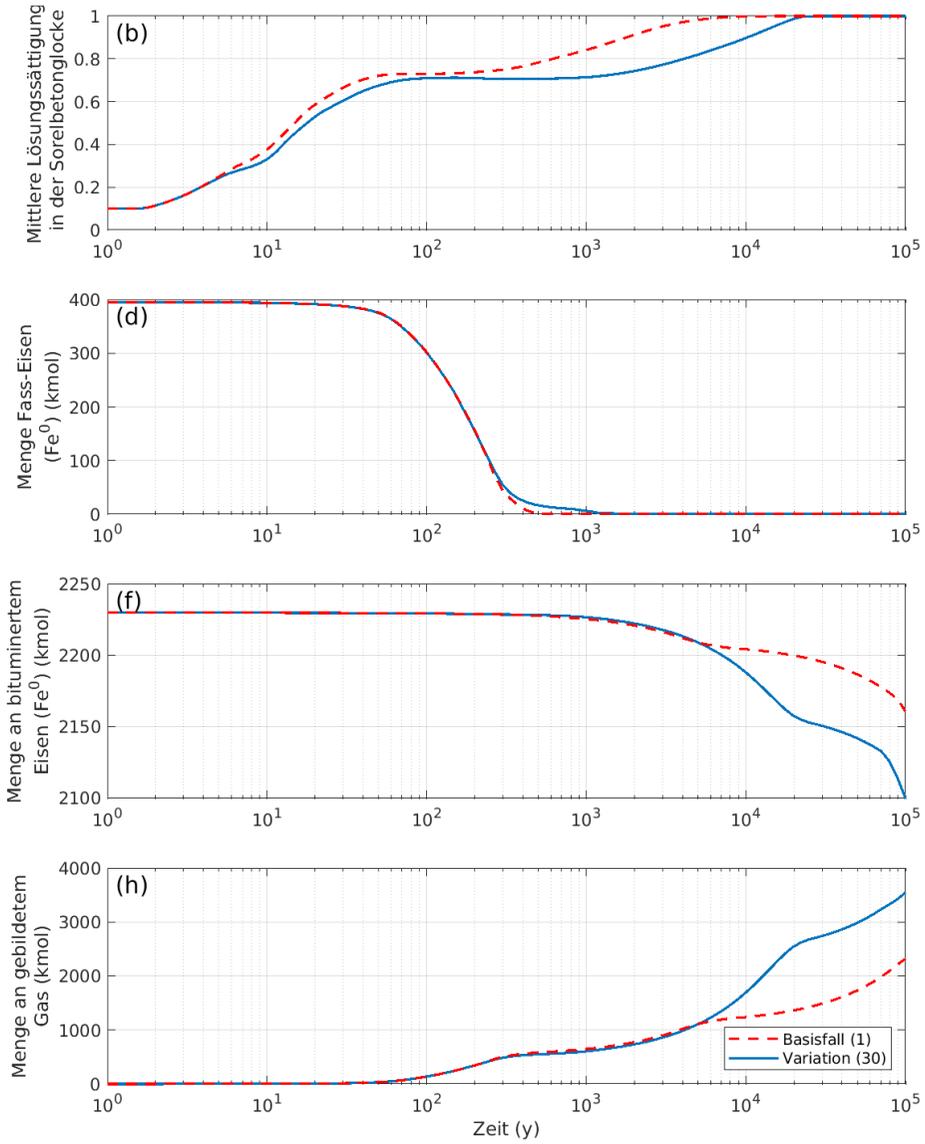
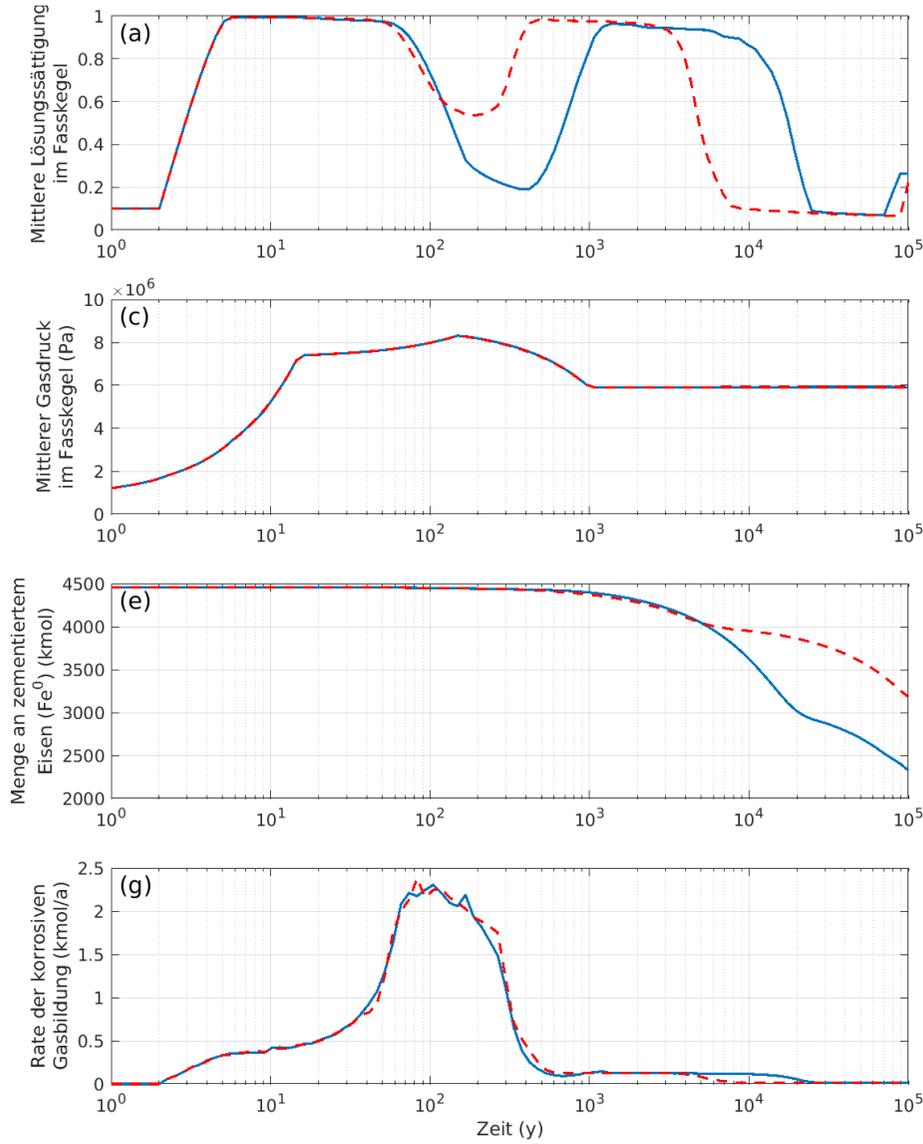
Blatt: 113



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00

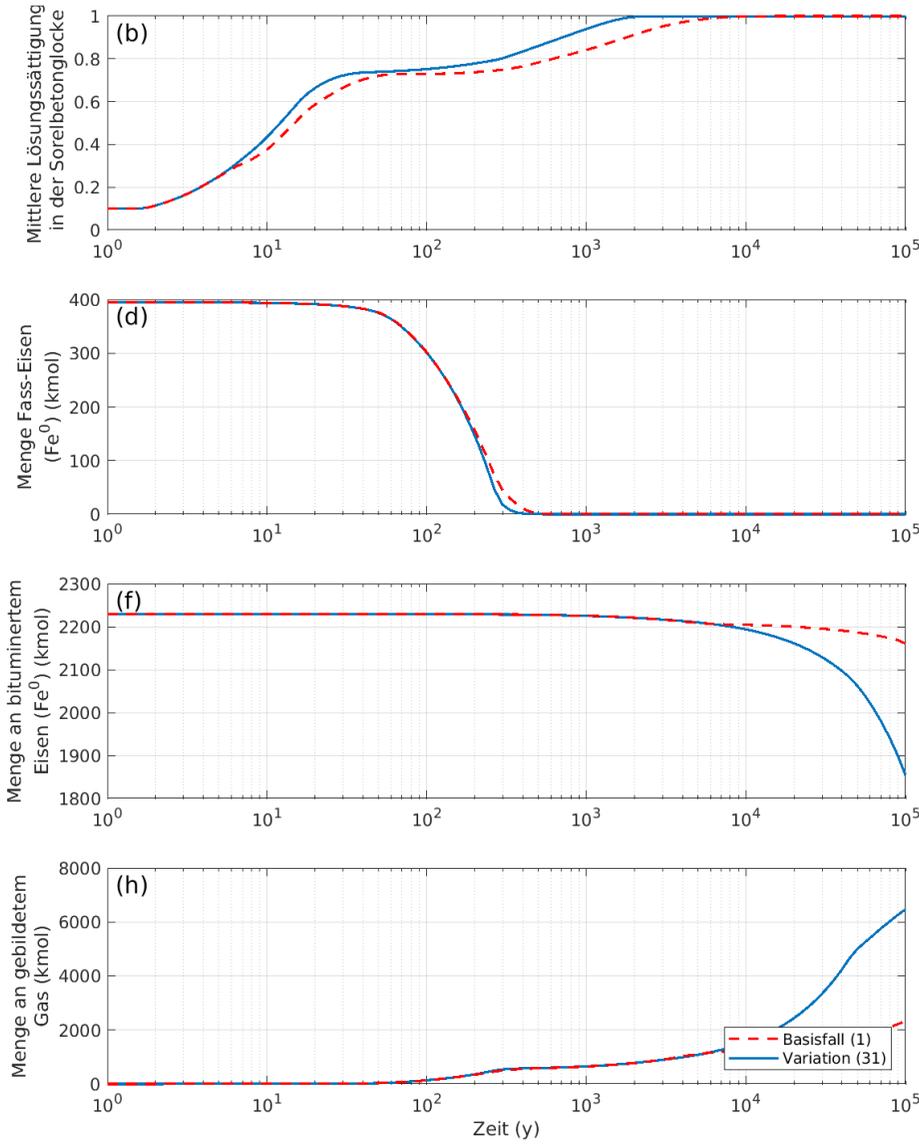
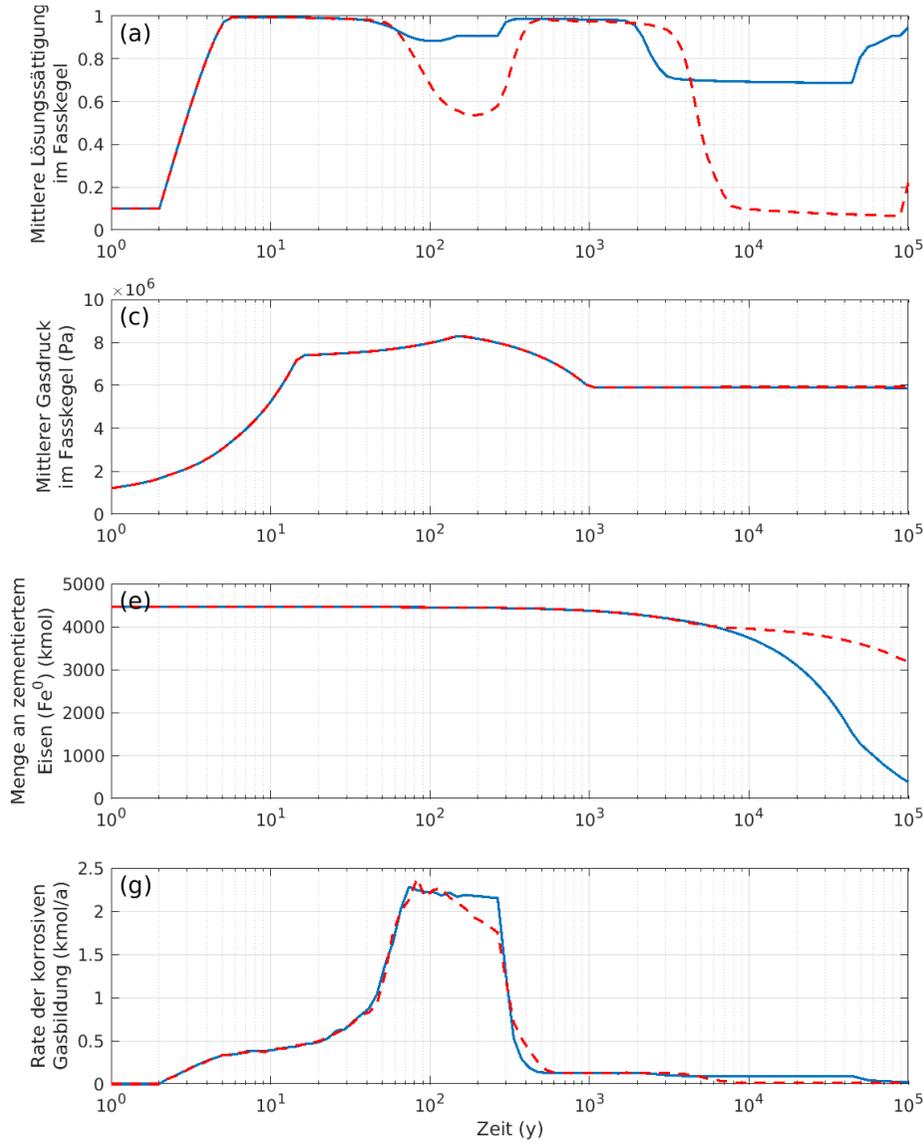
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

Blatt: 114



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00

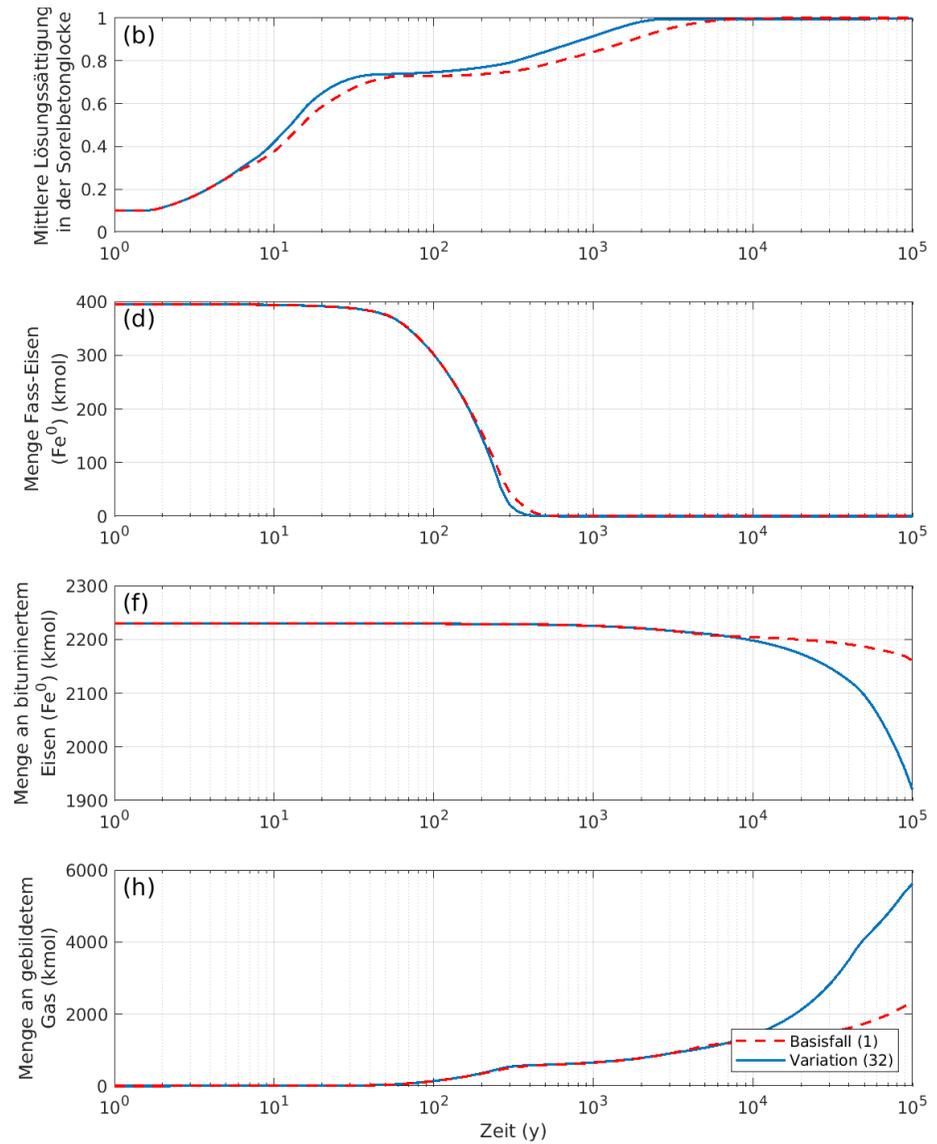
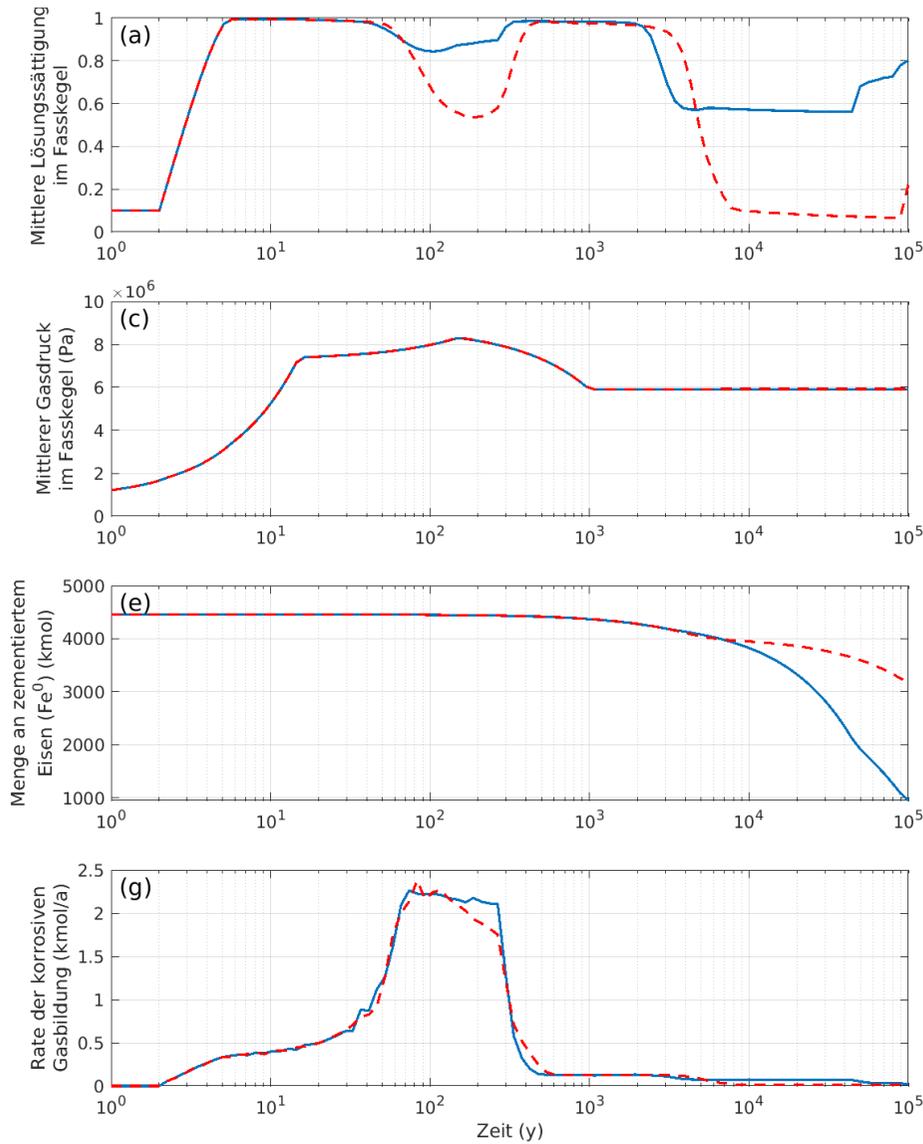
Blatt: 115



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

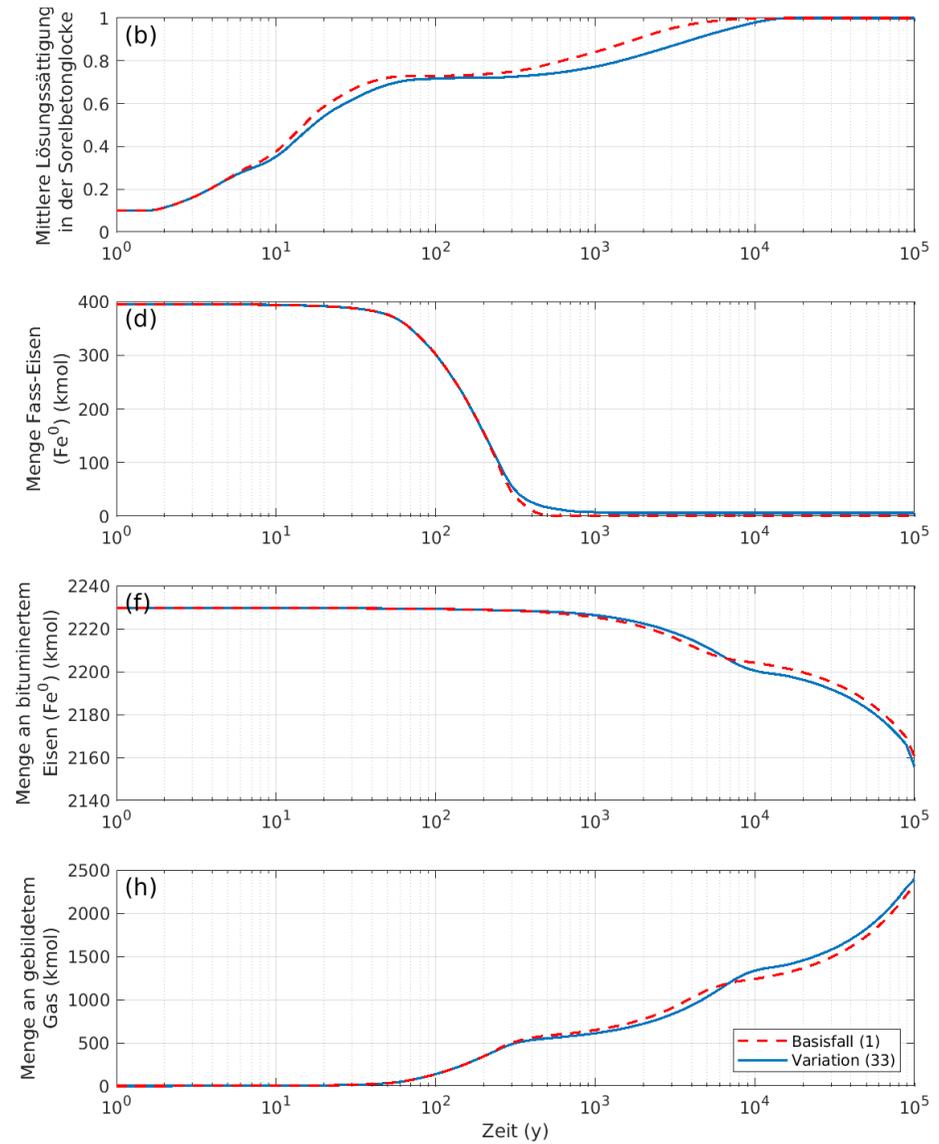
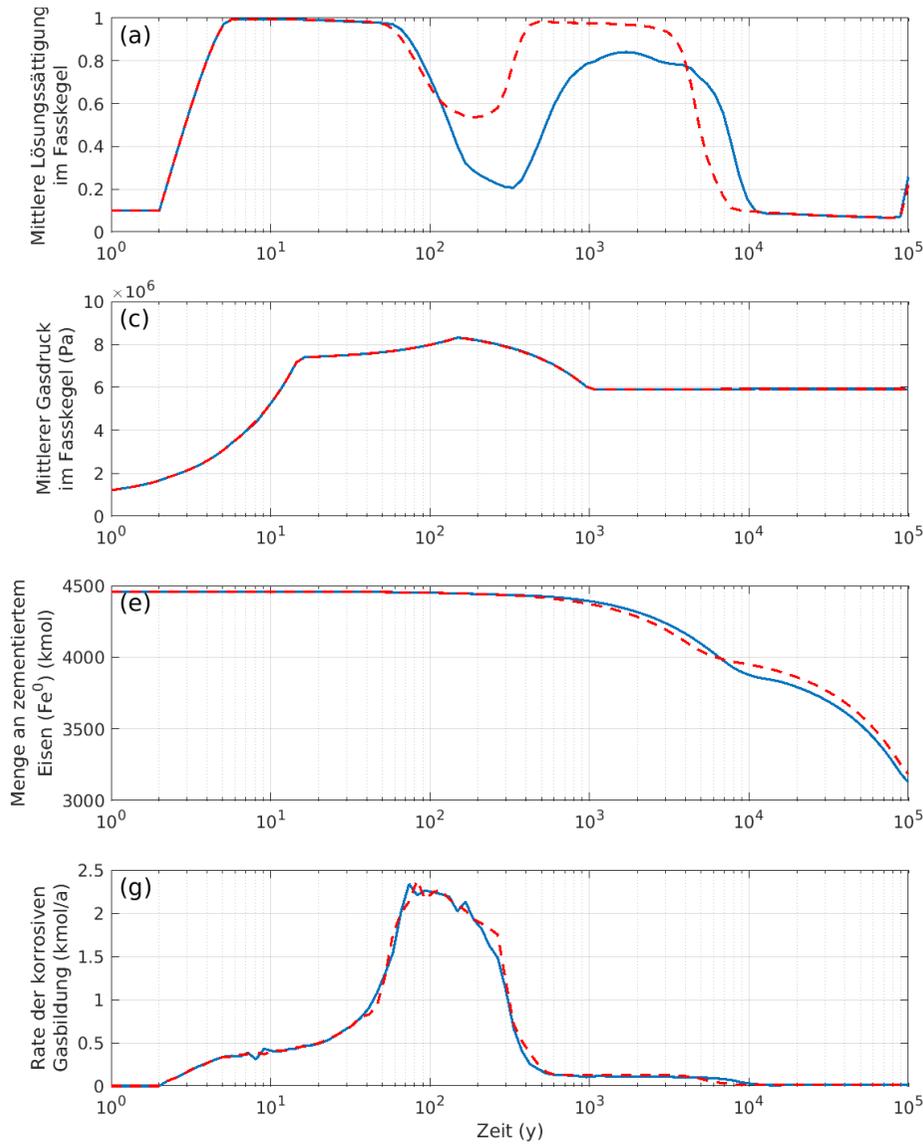
Blatt: 116



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

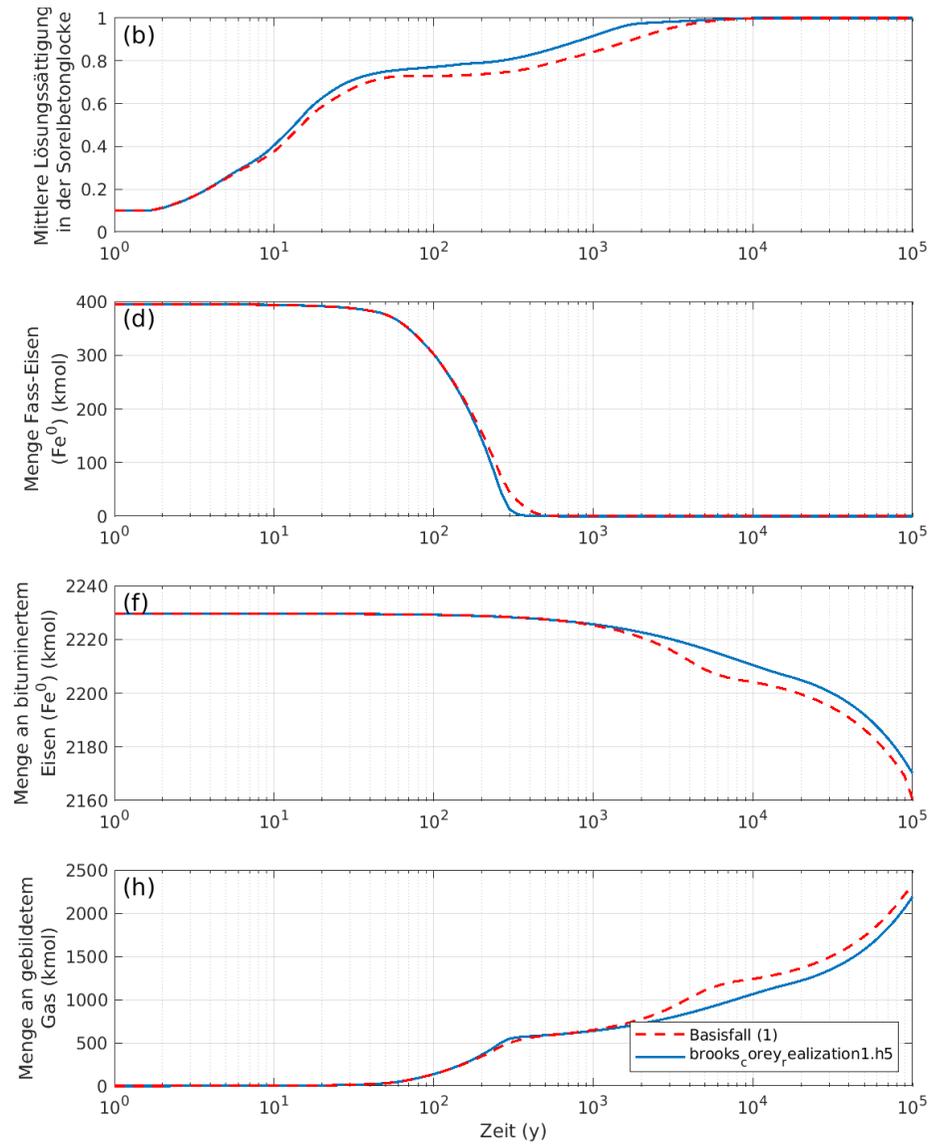
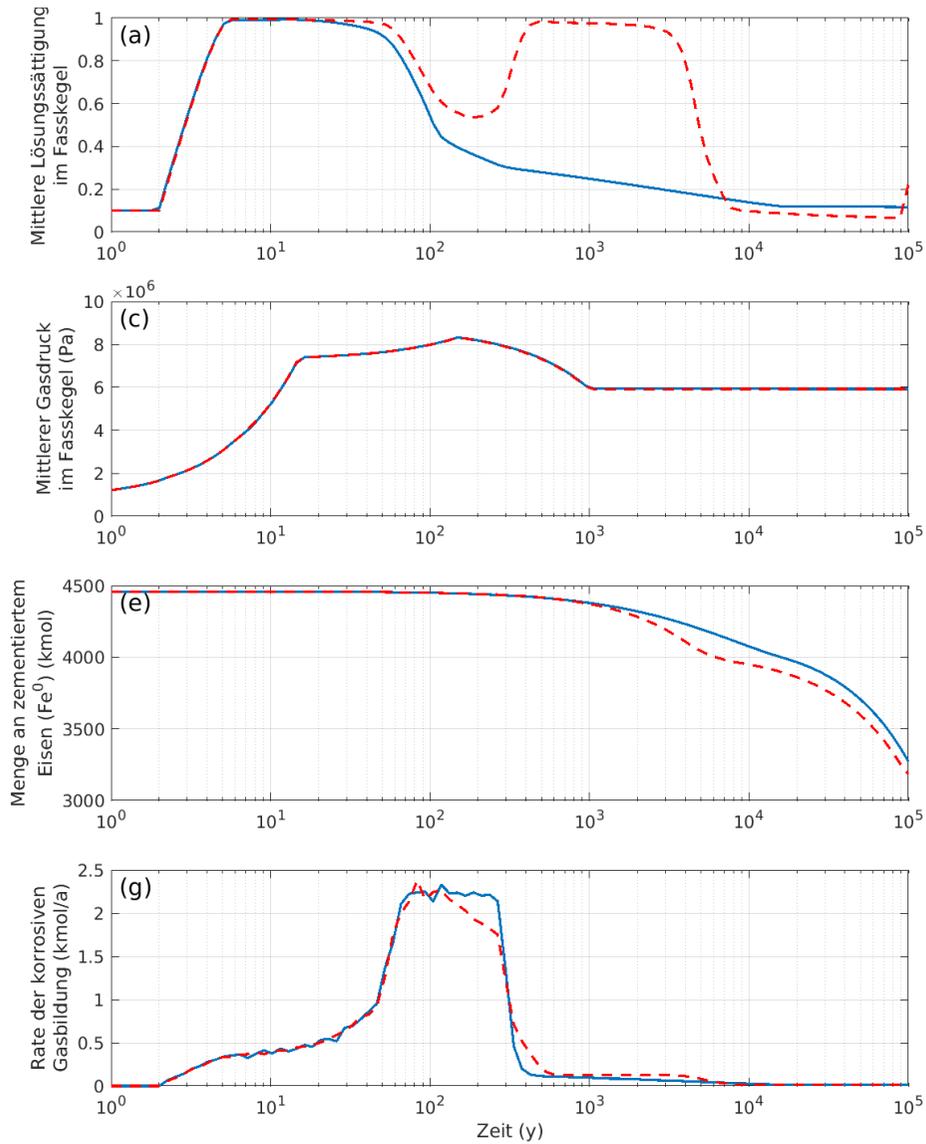
Blatt: 117



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

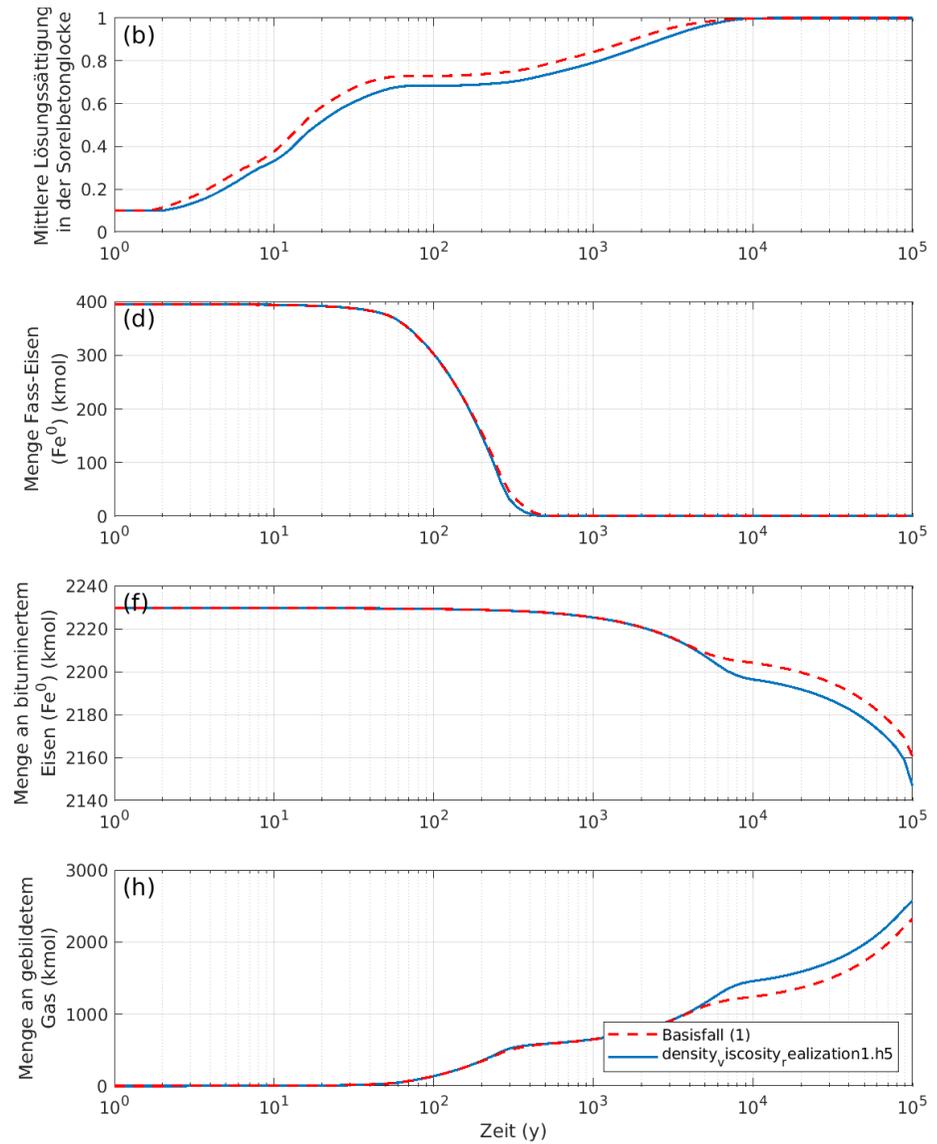
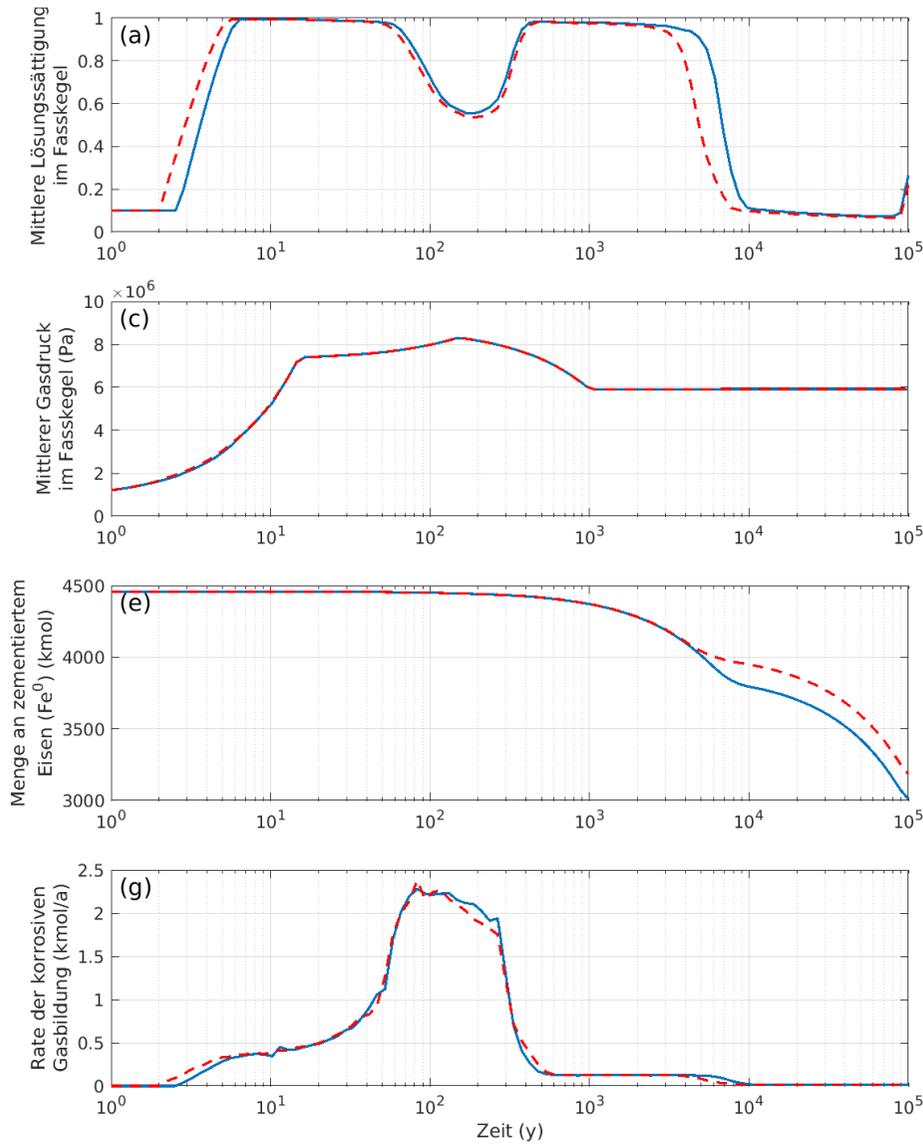
Blatt: 118



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme

Blatt: 119



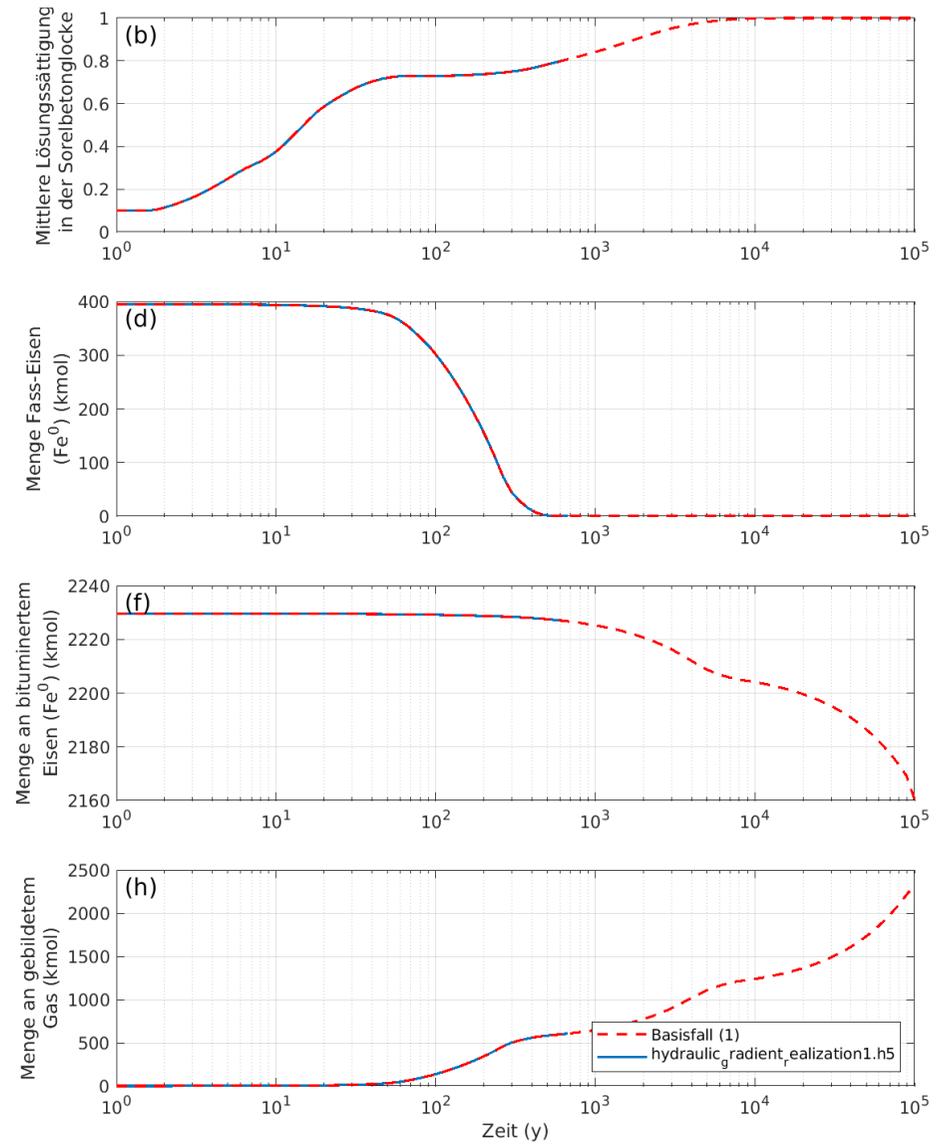
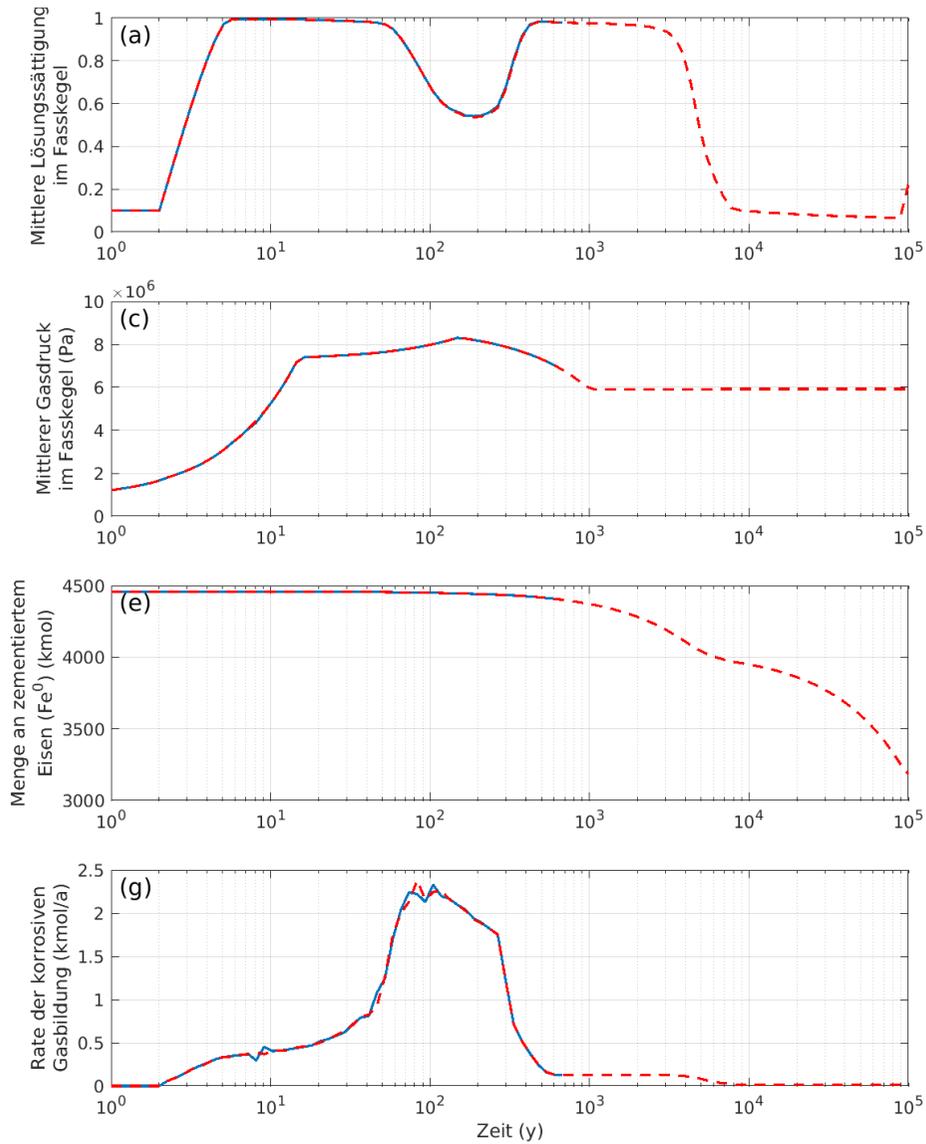
Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00

Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls
und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme



BGE BUNDESGESELLSCHAFT
FÜR ENDLAGERUNG

Blatt: 120



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 121

Anhang F Abschätzungen der Radionuklidfreisetzung auf Basis der Auslaugversuche von Kluger et al. 1980 [57]

In den MAW-Abfällen ist bei den bituminierten Abfällen von einer Salzbeladung (hauptsächlich NaNO_3) von 50 bis 60 M.-% auszugehen. Kluger et al. [57] berichten experimentelle Auslaugraten für Bitumen in MgCl_2 -reicher, quinärer Salzlösung bei Beladung mit ca. 50 M.-% NaNO_3 von $2,4 \cdot 10^{-4} \text{ g/cm}^2/\text{d}$. Aufgrund der hohen Löslichkeit der NaNO_3 -Salze kann die Auslaugrate von NaNO_3 als Obergrenze der Freisetzung angesehen werden.

Diese mittlere Auslaugungsrate, \bar{R} ($\text{kg/m}^2/\text{s}$), beziehen sich auf einen Auslaugungszeitraum t_A (s) von einem Jahr. Bei einem rein diffusiven Auslaugungsprozess ist die momentane Auslaugungsrate, $R(t)$ ($\text{kg/m}^2/\text{s}$), gegeben durch [58]:

$$R(t) = \rho_W \sqrt{\frac{D_A}{\pi \cdot t}}$$

und damit eine Funktion der Dichte des Abfalls, ρ_W (kg/m^3), des Diffusionskoeffizienten in den bituminierten Abfällen, D_A (m^2/s), und der Zeit t (s). Die mittlere Auslaugungsrate der Versuche [57] ist eigentlich ein integrierter Wert der Auslaugraten über ein Jahr:

$$\bar{R} = \frac{1}{t_A} \int_0^{t_A} R(t) dt = \frac{2\rho_W}{t_A} \sqrt{\frac{D_A}{\pi}} \sqrt{t_A}$$

Mit den Werten für \bar{R} und t_A , lässt sich der Diffusionskoeffizient, D_A , berechnen zu

$$D_A = \pi \left(\frac{\bar{R} t_A}{2\rho_W \sqrt{t_A}} \right)^2$$

Der Zeitpunkt der vollständigen Auslaugung, t_B , ist gegeben durch

$$\int_0^{t_B} R(t) dt \cdot F = 1,$$

wobei F (m^2/kg) die als konstant angenommene, spezifische Oberfläche des Abfalls darstellt, und berechnet sich demnach zu

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BGE BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 122

$$t_B = \frac{\pi}{D_A(\rho_w F)^2}$$

Langfristig ist von einer Erhöhung der spezifischen Oberfläche bei der Auslaugung aus der Bitumenmatrix auszugehen, da der Bitumen durch Wasseraufnahme quillt und sich Risse als Folge von Alterung und Hydratisierung der quellfähigen Bestandteile der Salzbeladung bilden können. Andererseits zeigen die Experimente [57], dass die Auslaugung zu Beginn der Versuche schneller vorstattengeht, als es einem rein diffusiven Prozess entsprechen würde. Damit kann der aus den mittleren Auslaugungsraten für das erste Jahr abgeleitete Diffusionskoeffizient, D_A , als Obergrenze für die langfristige Auslaugung angesehen werden.

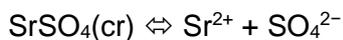
Bei einer angenommenen Dichte der bituminierten Abfallmatrix von 1300 kg/m^3 und einer spezifischen Oberfläche der Fässer von $7.62 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{kg}$ berechnet sich die Diffusionskonstante zu $1.13 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$ und die Zeit bis zur vollständigen Auslaugung zu ca. 90.000 Jahren.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 123

Anhang G Diskussion der Freisetzung ausgewählter Elemente

Strontium (Sr)

Strontium liegt als Vertreter der Erdalkalimetalle in wässriger Lösung stets zweiwertig vor. Da Sr(II) keine spezifischen Wechselwirkungen mit den Elementen des Hintergrundsystems eingeht bzw. diese im Rahmen der thermodynamischen Beschreibung als Wechselwirkungsparameter abgebildet werden, handelt es sich bei der zu berücksichtigenden dominierenden Sr(II)-Spezies stets um das Aquoion Sr^{2+} . Von den im betrachteten Lösungssystem relevanten Sr(II)-Festphasen, $\text{SrCl}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{s})$, $\text{Sr}(\text{OH})_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{s})$, $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{s})$ sowie $\text{SrSO}_4(\text{cr})$, ist lediglich letztere als schwerlöslich einzustufen, so dass als potentiell löslichkeitslimitierend folgendes Gleichgewicht zu beurteilen ist:



Für die betrachteten pH_m -Bedingungen ist dieses Gleichgewicht unabhängig von pH_m , und hängt damit lediglich vom Salzsysteem (Ionenstärke) und der Sulfat-Konzentration ab. Dies lässt sich dadurch erklären, dass es sich bei der löslichkeitskontrollierenden Festphase $\text{SrSO}_4(\text{cr})$ nicht um eine (hydr)oxidische Festphase handelt, und die potentielle Hydrolyse der Spezies Sr^{2+} sowie der Beitrag der protonierten Form des Sulfations, HSO_4^- mit $\text{pK}_s \approx 2$, vernachlässigbar sind. Mit den thermodynamischen Daten aus der THEREDA-Datenbank ist eine gute Abschätzung der Sr(II)-Löslichkeit für die Systeme Mg-Sr- H_2O -Cl- SO_4 (Milieu B) bzw. Ca-Sr- H_2O -Cl- SO_4 (Milieu C) möglich, da für beide Systeme robust unterstellt werden kann, dass die Ionenaktivitäten im Wesentlichen durch das jeweils dominierende Ionenpaar geprägt sind (MgCl_2 bzw. CaCl_2). Für Milieu B (abgeschätzt für eine generische Lösung mit 4,3 m MgCl_2 + 0,36 m MgSO_4) beträgt die berechnete Sr(II)-Löslichkeit $\log [\text{Sr}(\text{II})] = -4,6 \pm 0,5$, für Milieu C (abgeschätzt für eine generische Lösung mit 4,9 m CaCl_2 + $5,5 \cdot 10^{-3}$ m CaSO_4) liegt sie bei $\log [\text{Sr}(\text{II})] = -2,5 \pm 0,5$. Im Gegensatz zu Milieus B und C tragen im Fall von Milieu A mehrere Ionenpaare (Na-K-NO_3 , Na-SO_4) wesentlich zur Ionenaktivität in Lösung bei. Für diese gemischten Systeme stehen weder experimentelle Daten noch vollständige thermodynamische Modelle zur Verfügung. Unter der Annahme, dass die Ionenaktivität durch eine generische Lösung mit 5,3 m NaNO_3 + 2,4 m Na_2NO_3 gegeben ist, und unter Verwendung der Pitzer-Parameter aus [60] ($\text{Na-NO}_3\text{-SO}_4$), [54] (Sr-SO_4) sowie THEREDA-Datenbank (Sr-NO_3 sowie einige ternäre Parameter) ergibt sich $\log [\text{Sr}(\text{II})] = -4,5 \pm 1,5$

Projekt NAAN	PSP-Element NNNNNNNNNN	Funktion/Thema NNAAANN	Komponente AANNNA	Baugruppe AANN	Aufgabe AAAA	UA AA	Lfd Nr. NNNN	Rev. NN	 BUNDEGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 124

Tabelle 11: Molale Sr(II)-Löslichkeit und dominierende Gleichgewichtsreaktionen für Milieus A, B und C. Die betrachteten generischen Lösungsbedingungen sind in Klammern angegeben.

Milieu A (5,3 m NaNO ₃ + 2,4 m Na ₂ SO ₄)		
pH _m	log [Sr(II)] _m	Löslichkeitskontrollierendes Gleichgewicht
12,5	-4,5 ± 1,5 ^{a)}	SrSO ₄ (cr) ⇔ Sr ²⁺ + SO ₄ ²⁻
Milieu B (4,3 m MgCl ₂ + 0,36 m MgSO ₄)		
pH _m	log [Sr(II)] _m	Löslichkeitskontrollierendes Gleichgewicht
8,8	-4,6 ± 0,5 ^{b)}	SrSO ₄ (cr) ⇔ Sr ²⁺ + SO ₄ ²⁻
Milieu C (4,9 m CaCl ₂ + 5,5 mm CaSO ₄)		
pH _m	log [Sr(II)] _m	Löslichkeitskontrollierendes Gleichgewicht
11,8	-2,5 ± 0,5 ^{b)}	SrSO ₄ (cr) ⇔ Sr ²⁺ + SO ₄ ²⁻

a) Fehlerwert ± 1,5, da aufgrund fehlender experimenteller Daten sowie explizit passender thermodynamischer Modelle lediglich eine orientierende Abschätzung möglich ist.

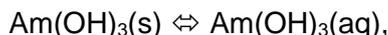
b) Fehlerwert ± 0,5, da aufgrund der guten thermodynamischen Datenlage eine verlässliche Abschätzung möglich ist.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 125

Americium (Am)

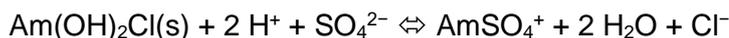
Für Americium spielt innerhalb des thermodynamischen Stabilitätsfelds von Wasser nur die Oxidationsstufe +III eine relevante Rolle. Die im Periodensystem benachbarten dreiwertigen Actinide Pu(III), Am(III) und Cm(III) sowie bestimmte Lanthanide wie Nd(III) weisen aufgrund vergleichbarer Ionenradien ein sehr ähnliches (analoges) Löslichkeitsverhalten auf. Entsprechend sind die bekannten Gleichgewichtskonstanten und thermodynamischen Parameter für Am(III), Cm(III) und Pu(III) sowie auch Nd(III) innerhalb der jeweiligen Fehlergrenzen nahezu gleich, vgl. [42] und [75]. Insgesamt gibt es nur sehr wenige systematische Löslichkeitsuntersuchungen zu Am(III) sowie Cm(III) und Pu(III) in konzentrierter chloridhaltiger Lösung, vgl. [89], [55] bzw. [85], und keine in alkalischen, gemischten, hochkonzentrierten Na-K-NO₃-SO₄-dominierten Lösungen (Milieu A). Demgegenüber steht eine sehr gute experimentelle Datenbasis zur Löslichkeit und Speziation von Nd(III) in Nitrat-freien sowie -haltigen NaCl-, MgCl₂- und CaCl₂-Lösungen, welche auch spektroskopische Arbeiten zur wässrigen Speziation von Cm(III) beinhaltet [75], [45], die zur Abschätzung des Am(III)-Löslichkeit belastet werden können.

Für Milieu A (alkalische hochkonzentrierte Na-K-NO₃-SO₄-dominierte Lösung) ist aufgrund der Redoxverhältnisse in der MAW-Kammer sowie des hohen pH_m-Wertes davon auszugehen, dass Americium dreiwertig vorliegt, und die Am(III)-Löslichkeit durch ein Gleichgewicht zwischen fester und gelöster Am(III)-Hydrolysespezies kontrolliert wird,

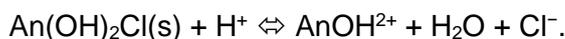


welches aufgrund der Abwesenheit geladener Spezies nur relativ gering durch Ionenstärkeeffekte beeinflusst wird. Weiterhin ist unter diesen Bedingungen kein spezifischer Einfluss von NO₃⁻, SO₄²⁻, Na⁺, K⁺, sowie Ca²⁺ (aufgrund seiner geringen Konzentration), auf die Am(III)-Löslichkeit zu erwarten. Unter Berücksichtigung von [45], welche u.a. das Löslichkeitsverhalten des analogen Nd(III) in 6,0 m NaNO₃ untersucht haben, lässt sich die Am(III)-Löslichkeit näherungsweise und mit relativ großem Fehlerwert auf log [Am(III)] = -8±1,5 abschätzen.

Während das Löslichkeitsverhalten von Am(III) in reiner MgCl₂-reicher Lösung auf Basis der experimentellen Daten für das analoge Nd(III) gut bekannt ist, kann der zusätzliche Effekt von Sulfat in generischer Lösung mit 4,3 m MgCl₂ + 0,36 m MgSO₄ und pH_m 8,8 (repräsentativ für Milieu B) auf die wässrige Am(III)-Speziation nur sehr grob unter Belastung der Konstanten aus [68] sowie des für Na⁺-reiche Lösungen gültigen An(III)-SO₄-Pitzer-Modells aus [73] abgeschätzt werden. Demnach kontrolliert in Analogie mit Nd(III) das Hydroxychlorid Am(OH)₂Cl(s) die Am(III)-Löslichkeit. Bei der dominierenden Am(III)-Spezies handelt es sich um AmSO₄⁺, sowie, mit nachgeordneter Relevanz, um die erste Hydrolysespezies AmOH²⁺,

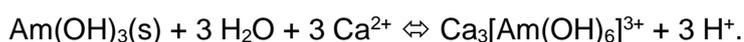


bzw.



Für die Am(III)-Löslichkeit ergibt sich log [Am(III)] = -4,9±1.

Im Fall von Milieu C, welches anhand einer generischen Lösung mit 4,0 m CaCl₂ und pH_m = 11,8 angenähert wird, ist die Am(III)-Löslichkeit durch ein Gleichgewicht zwischen festem Am(OH)₃(s) und dem ternären Komplex Ca₃[Am(OH)₆]³⁺ kontrolliert,



Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	 BUNDEGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 126

Unter Verwendung der in [75] berichteten chemischen Modelle und thermodynamischen Konstanten ergibt sich für die Am(III)-Löslichkeit ein Wert von $\log [Am(III)] = -6,5 \pm 0,5$.

Tabelle 12: Molale Am(III)-Löslichkeit und dominierende Gleichgewichtsreaktionen für Milieus A, B und C. Die betrachteten generischen Lösungsbedingungen sind in Klammern angegeben.

Milieu A (hochkonzentrierte Na-K-NO ₃ -SO ₄ -dominierte Lösung)		
pH _m	log [Am(III)] _m	Löslichkeitskontrollierendes Gleichgewicht
12,5	-8 ± 1,5 ^{a)}	Am(OH) ₃ (s) ⇌ Am(OH) ₃ (aq)
Milieu B (4,3 m MgCl ₂ + 0,36 m MgSO ₄)		
pH _m	log [Am(III)] _m	Löslichkeitskontrollierendes Gleichgewicht
8,8	-4,9 ± 1 ^{b)}	Am(OH) ₂ Cl(s) + 2 H ⁺ + SO ₄ ²⁻ ⇌ AmSO ₄ ⁺ + Cl ⁻ + 2 H ₂ O
Milieu C (4,0 m CaCl ₂)		
pH _m	log [Am(III)] _m	Löslichkeitskontrollierendes Gleichgewicht
11,8	-6,5 ± 0,5 ^{c)}	Am(OH) ₃ (s) + 3 H ₂ O + 3 Ca ²⁺ ⇌ Ca ₃ [Am(OH) ₆] ³⁺ + 3 H ⁺

^{a)} Fehlerwert ± 1,5, da belastbare experimentelle Vergleichsdaten nicht vorhanden sind.

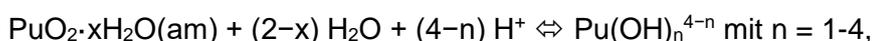
^{b)} Fehlerwert ± 1, da keine spezifischen experimentellen Daten bzw. Modelle zur Ableitung des Effektes von Sulfat auf die Am(III)- bzw. Nd(III)-Löslichkeit in MgCl₂-reicher Lösung vorhanden sind.

^{c)} Fehlerwert ± 0,5, da eine gute experimentelle Datenlage für das analoge Nd(III) vorhanden ist.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 127

Plutonium (Pu)

Das Löslichkeits- und Hydrolyseverhalten von Pu(IV) wurde in [74] und in [42] systematisch evaluiert, und entsprechende chemische und thermodynamische Modelle basierend auf der *specific ion interaction theory (SIT)* abgeleitet. Grundlage waren experimentelle Studien, welche in relativ verdünnten Lösungen ($I \leq 1$ M) durchgeführt wurden. In einer aktuellen Arbeit des KIT-INE [91] wurde die Pu(IV)-Löslichkeit unter sorgfältiger Kontrolle der Redoxbedingungen in neutraler bis alkalischer und verdünnter bis konzentrierter NaCl-Lösung untersucht. Aus diesen Studien geht hervor, dass die Löslichkeit von Pu(IV) unter diesen Bedingungen insgesamt sehr niedrig ist, und durch ein Gleichgewicht zwischen festem $\text{PuO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{am})$ und gelöster Pu(IV)-Hydrolysespezies bzw. Pu(IV)-Kolloiden kontrolliert wird,



bzw.



Gemäß [7] stellen Pu(IV)-Kolloide mit einer abgeschätzten Gleichgewichtskonzentration von $\log [\text{Pu}(\text{IV})(\text{coll}, \text{aq})] = -7,9 \pm 1,0$ die dominierende gelöste Pu(IV)-Spezies für pH-neutrale und alkalische Lösungen dar, wobei dieser Wert anhand von experimentellen Untersuchungen für das analoge Th(IV) abgeleitet wurde. In [91] wurde für die Pu(IV)-Gesamtlöslichkeit inklusive Beitrags von Pu(IV)-Kolloiden in konzentrierter, neutraler bis alkalischer NaCl-Lösung ein Höchstwert von $\log [\text{Pu}(\text{IV})] < -7,7$ ermittelt. Aufgrund der Arbeiten zum Verhalten anderer vierwertiger Actinide (Th(IV) in [7], U(IV) in [30]) ist kein wesentlicher Unterschied des An(IV)-Kolloidniveaus für die unterschiedlichen Salzlösungen NaCl, MgCl_2 , und CaCl_2 zu erwarten.

Für Milieu A (alkalische hochkonzentrierte Na-K- NO_3 - SO_4 -dominierte Lösung) sowie Milieu B (abgeschätzt für eine generische Lösung mit 4,5 m MgCl_2 -Lösung und $\text{pH}_m = 8,5$ bestimmt) liegt die Pu(IV)-Löslichkeit entsprechend bei $\log [\text{Pu}(\text{IV})] = -7,9 \pm 1$. Es ist anzumerken, dass keine systematischen Studien zur Bestimmung des Pu(IV)-Kolloidniveaus in konzentrierter MgCl_2 - oder CaCl_2 -Lösung bekannt sind, was in dem relativ großen Fehlerbandbreite des Wertes reflektiert ist.

Zur Abschätzung der Löslichkeit von Pu(III) für Milieu B (analog zu Am(III) erfolgt die Ermittlung anhand einer generischer Lösung mit 4,3 m $\text{MgCl}_2 + 0,36$ m MgSO_4), für welche keine systematischen Löslichkeitsuntersuchungen vorliegen, werden die gut abgesicherten Werte für Nd(III) (wie unter Am(III) diskutiert) verwendet. Es ergibt sich $\log [\text{Pu}(\text{III})] = -4,9 \pm 1$.

Wie in [8], [9], [37] gezeigt, muss in konzentrierter **CaCl₂-Lösung** mit $\text{pH}_m > 10$ zusätzlich die Bildung des ternären Komplexes $\text{Ca}_4[\text{Pu}(\text{OH})_8]^{4+}$ berücksichtigt werden,



welcher mit zunehmender $[\text{CaCl}_2]$ und zunehmendem pH_m -Wert an Bedeutung gewinnt, und je nach Lösungsbedingungen das Niveau der PuO_2 -Kolloide übersteigen kann. Für die betrachtete generische Lösung mit 4,0 m CaCl_2 und $\text{pH}_m 11,8$ liegt die Pu(IV)-Löslichkeit unter alleiniger Berücksichtigung des Gleichgewichtes mit dem ternären Komplex und Belastung der experimentellen Daten aus [9] und [37] bei ca. $\log [\text{Pu}(\text{IV})] = -7,8 \pm 0,4$, und damit beinahe gleichauf mit dem Pu(IV)-Kolloidniveau. Die Pu(IV)-Gesamtlöslichkeit wird daher als Summe beider Gleichgewichte auf $\log [\text{Pu}(\text{IV})] = -7,5 \pm 0,5$ abgeschätzt.

Projekt NAAN	PSP-Element NNNNNNNNNN	Funktion/Thema NNAAANN	Komponente AANNNA	Baugruppe AANN	Aufgabe AAA	UA AA	Lfd. Nr. NNNN	Rev. NN	 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 128

Tabelle 13: Molale Pu(IV)-Löslichkeit und dominierende Gleichgewichtsreaktionen für Milieus A, B und C. Die betrachteten generischen Lösungsbedingungen sind in Klammern angegeben.

Milieu A (hochkonzentrierte Na-K-NO ₃ -SO ₄ -dominierte Lösung)		
pH _m	log [Pu(IV)] _m	Löslichkeitskontrollierendes Gleichgewicht
12,5	-7,9 ± 1 ^{a)}	PuO ₂ ·xH ₂ O(am) ⇌ Pu(OH) _n ⁴⁻ⁿ bzw. PuO ₂ (coll,aq)
Milieu B (4,5 m MgCl ₂ für Pu(IV), 4,3 m MgCl ₂ + 0,36 m MgSO ₄ für Pu(III))		
pH _m	log [Pu(IV)] _m	Löslichkeitskontrollierendes Gleichgewicht
8,8	-7,9 ± 1 ^{a)}	Pu(IV): PuO ₂ ·xH ₂ O(am) ⇌ Pu(OH) _n ⁴⁻ⁿ bzw. PuO ₂ (coll,aq)
8,8	-4,9 ± 1 ^{b)}	Pu(III): Pu(OH) ₂ Cl(s) + 2 H ⁺ + SO ₄ ²⁻ ⇌ PuSO ₄ ⁺ + Cl ⁻ + 2 H ₂ O
Milieu C (4,0 m CaCl ₂)		
pH _m	log [Pu(IV)] _m	Löslichkeitskontrollierendes Gleichgewicht
11,8	-7,5 ± 0,5 ^{c)}	PuO ₂ ·xH ₂ O(am) + (6-x) H ₂ O + 4 Ca ²⁺ ⇌ Ca ₄ [Pu(OH) ₈] ⁴⁺ + 4 H ⁺ bzw. PuO ₂ ·xH ₂ O(am) ⇌ Pu(OH) _n ⁴⁻ⁿ bzw. PuO ₂ (coll,aq)

- a) Fehlerwert ± 1, da belastbare experimentelle Vergleichsdaten für Pu(IV) nur für verdünnte Lösungen vorhanden sind, und die genannten Werte unter Verwendung des Analogieprinzips mit Th(IV) bzw. U(IV) abgeschätzt sind.
- b) Fehlerwert ± 1, da keine spezifischen experimentellen Daten bzw. Modelle zur Ableitung des Effektes von Sulfat auf die Pu(III)- bzw. Nd(III)-Löslichkeit in MgCl₂-reicher Lösung vorhanden sind.
- c) Fehlerwert ± 0,5, da eine gute experimentelle Datenlage für das dominierende Gleichgewicht vorhanden ist.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 129

Literatur

- [1] AFC (2015): Radionuklidtransport und Sorption im Deckgebirge – Vorgehen, erforderliche Grundlagen, Nutzen und mögliche Herausforderungen, AF 1764/73, AF-Consult Switzerland, Baden, BGE-SZ-KZL: 9A/24250000/EGC/RZ/0001/00, Stand 10.08.2015.
- [2] AFC/KIT (2017): Kenntnisstand zu Reaktionen organischer Abfallbestandteile in den Einlagerungskammern der Schachanlage Asse II mit Relevanz für das geochemische Milieu und die Gasbildung. Gemeinsamer Bericht, AF 1764/93; KIT-INE 001/17, AF-Consult Switzerland AG, Baden; Karlsruher Institut für Technologie – Institut für Nukleare Entsorgung, Eggenstein-Leopoldshafen, BGE-SZ-KZL: 9A/24250000/EGB/RZ/001/00, 2017.
- [3] Aggarwal, S., Angus, M.J., Ketchen, J. (2000): Sorption of radionuclides onto specific mineral phases present in repository cements. NSS/R312, AEA-DandR-0395.
- [4] Alexander, B.J., Foley, R.T. (1976): Corrosion Products of Iron Dissolution – Dependence on Anions in Solution. Corrosion 32, 297-302.
- [5] Allard B. (1984): Mechanisms for the interaction of Americium(III) and Neptunium(V) with geologic media. In: Proceedings of the Material Research Society Symposium, 26, 899–906.
- [6] Altmaier, M., Brendler, V., Bube, C., Neck, V., Marquardt, C., Moog, H., Richter, A., Scharge, T., Voigt, W., Wilhelm, S., Willms, T., Wollmann, G. (2011): THEREDA Thermodynamische Referenz-Datenbasis: Abschlussbericht. KIT-INE, HZDR-IRC, GRS, TU-BAF, AF Colenco, GRS-265.
- [7] Altmaier, M., Neck, V., Fanghänel, T. (2004): Solubility and colloid formation of Th(IV) in concentrated NaCl and MgCl₂ solution. Radiochimica Acta, 92, 537-543.
- [8] Altmaier, M., Neck, V., Fanghänel, T. (2008): Solubility of Zr(IV), Th(IV) and Pu(IV) hydrous oxides in alkaline CaCl₂ solution and the formation of ternary Ca-M(IV)--OH complexes. Radiochimica Acta, 96, 541-550.
- [9] Altmaier, M., Neck, V., Lützenkirchen, J., & Fanghänel, T. (2009): Solubility of plutonium in MgCl₂ and CaCl₂ solutions contact with metallic iron. Radiochimica Acta, 97, 187-192.
- [10] Anderko, A., Sridhar, N., Jakab, M.A., Tormoen, G. (2008): A general model for the repassivation potential as a function of multiple aqueous species. 2. Effect of oxyanions on localized corrosion of Fe-Ni-Cr-Mo-W-N alloys. Corrosion Science 50, 3629-3647.
- [11] Andersson, K., B. Torstenfelt, B., Allard, B. (1983): Sorption and diffusion studies of Cs and I in concrete, SKB Technical Report.
- [12] Datenbank ASSEKAT (Version 9.3) der Schachanlage Asse II. Schachanlage Asse II, Remlingen.
- [13] Asse (2009): Beschreibung der Lagerbereiche der Abfälle. Bericht, Asse-GmbH, BfS-KZL 9A/13500000/BE/RA/0001/00, Remlingen 27.03.2009.
- [14] Asse (2010): Notfallplanung zur Minimierung der Konsequenzen eines Auslegungsüberschreitenden Lösungszutritts. Bericht, Asse-GmbH, BfS-KZL 9A/34000000/EBM/RB/0003/00, Remlingen 23.02.2010.
- [15] BASE (2022): Internetseite des Bundesamtes für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung <https://www.base.bund.de/DE/base/gesetze-regelungen/dosiskoeffizienten/dosiskoeffizienten.html> (abgerufen am 24.01.2022).
- [16] BGE (2017): Rückholung der Radioaktiven Abfälle aus der Schachanlage Asse II – Konzeptplanung für die Rückholung der Radioaktiven Abfälle von der 511-m-Sohle. 1. Teilbericht: Planungsgrundlagen. DMT GmbH & Co. KG. Essen, 29.11.2017. BGE-SZ-KZL: 9A/23520000/GHB/BM/0722/00

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 130

- [17] BGE (2018): Risswerk der Schachtanlage Asse II. BGE Schachtanlage Asse II, Remlingen 30.10.2018.
- [18] BGE (2019): Rückholung der Radioaktiven Abfälle aus der Schachtanlage Asse II – Konzeptplanung für die Rückholung der Radioaktiven Abfälle von der 511-m-Sohle. 4. Teilbericht: Sicherheits- und Nachweiskonzept. DMT, Essen, 16.12.2019. BGE-SZ-KZL: 9A/23520000/GHB/RA/0049/00
- [19] BGE (2020a): Plan zur Rückholung der radioaktiven Abfälle aus der Schachtanlage Asse II – Rückholplanung. Bundesgesellschaft für Endlagerung mbH (BGE), BGE-SZ-KZL: 9A/23500000/GHB/RZ/0110/00, 19.02.2020.
- [20] BGE (2020b): Geotechnisches, geophysikalisches, geochemisches Monitoring und Baustoffuntersuchungen, Jahresbericht 2019. BGE Schachtanlage Asse II, BGE-Asse-KZL 9A/64300000/GMÜ/GC/BT/0021/00, 27.05.2020.
- [21] BGE (2020c): Zusammenstellung von Berichten des Projektes ALSA-C „Modellierung der Fluidbewegung und des Radionuklidtransports“ zur Dokumentation. Anhang 3: AP5 – Methode der Modellrechnungen zur Konsequenzenanalyse. Bundesgesellschaft für Endlagerung mbH (BGE). BGE-SZ-KZL 9A/24000000/BE/RB/0007/00.
- [22] BGE (2020d): Systembeschreibung „Nahfeld“ für den Standort Asse. BGE-SZ-KZL: 9A/24200000/EG/RZ/0013/00, 11.12.2020
- [23] BGE (2023): Dokumentation der Datenbank ASSEKAT 10.0. Brenk Systemplanung GmbH, BGE-SZ-KZL: 9A/25110000/MAM/RB/0005/00. Stand 13.01.2023
- [24] Bleyen, N., Smets, S., Verwimp, W., Hendrix, K., Sillen, X., Valcke, E. (2016): Hydration of Eurobitum Bituminized Waste under Free Swelling Conditions: Osmosis-Induced Swelling and NaNO_3 Leaching. *MRS Advances* 1, no. 62: 4103–8. <https://doi.org/10.1557/adv.2017.196>.
- [25] Bradbury, M.H., Baeyens, B. (2005): Modelling the sorption of Mn(II), Co(II), Ni(II), Zn(II), Cd(II), Eu(III), Am(III), Sn(IV), Th(IV), Np(V) and U(VI) on montmorillonite: linear free energy relationships and estimates of surface binding constants for some selected heavy metals and actinides. *Geochim. Cosmochim. Acta* 69, 857–892.
- [26] Brooks R.H. & Corey, A.T. (1964): Hydraulic properties of porous media. Civil Engineering Department, Colorado State University. Hydrological Paper No. 3, 22-27
- [27] Brossia, C.S., Kelly, R.G. (1998): Influence of Alloy Sulfur Content and Bulk Electrolyte Composition on Crevice Corrosion Initiation of Austenitic Stainless Steel. *Corrosion* 54, 145-154.
- [28] Buchheim, B., Meyer, H., Tholen, M. (2004): Bestimmung des Inventars an chemischen und chemotoxischen Stoffen in den eingelagerten radioaktiven Abfällen der Schachtanlage Asse. Abschlussbericht, BfS-SZ-KZL: 9A/25100000/HE/RB/0003/00, März 2004.
- [29] Bube, C., Metz, V., Bohnert, E., Garbev, K., Schild, D., Kienzler, B. (2013): Long-term cement corrosion in chloride-rich solutions relevant to radioactive waste disposal in rock salt – Leaching experiments and thermodynamic simulations. *Physics and Chemistry of the Earth*, 64, 87–94. doi:10.1016/j.pce.2012.11.001.
- [30] Cevirim, N. et al. (2017): Redox chemistry, solubility and hydrolysis of uranium in reducing, dilute to concentrated NaCl, MgCl₂ and CaCl₂ systems. Abstract No. PA4-12, Book of Abstracts, 15th International Conference on Chemistry and Migration Behavior of Actinides and Fission Products in the Geosphere, Barcelona, Spain.
- [31] Christiansen, B.C., Dideriksen, K., Katz, A., Nedel, S., Bovet, N., Sorensen, H.O., Frandsen, C., Gundlach, C., Andersson, M.P., Stipp, S.L.S. (2014): Incorporation of Monovalent Cations in Sulfate Green Rust. *Inorg. Chem.* 53, 8887-8894.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 131

- [32] CSD/GRS (2019): Notfallplanung für die MAW: Bewertung vor dem Hintergrund langzeitsicherheitsrelevanter Prozesse. Bericht, AF 1764/100, CSD 2734/08, GRS-A-3882, Arbeitsgruppe AF-Consult Switzerland, Baden, CSD Ingenieure, Aarau, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, Braunschweig, BGE-SZ-KZL: 9A/24200000/EGD/RZ/0003/00, Stand 18.01.2019.
- [33] CSD/GRS (2020a): Bezugsfall BF20a für Kompatibilitätsprüfungen am Standort Asse – Ergebnisse von Modellrechnungen. Interner Bericht, CSD 2734/19, GRS-550800-139, CSD Ingenieure AG, Aarau, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit gGmbH, Braunschweig, BGE-SZ-KZL: 9A/24200000/MZS/RE/0001/00, Stand: 12.05.2020.
- [34] CSD/INE (2020): Modellierung des geochemischen Milieus und der Mineralumbildungen in den zementierten Abfällen der ELK bei Kontakt mit MgCl₂-reicher Lösung („Fassmodell“). CSD Ingenieure AG, Aarau, Schweiz; Karlsruher Institut für Technologie (KIT), Institut für Nukleare Entsorgung (INE), Eggenstein-Leopoldshafen, Deutschland, BGE-SZ-KZL: 9A/24250000/EGB/RZ/0007/00, 17.06.2020.
- [35] Davies, P. B. (1991): Evaluation of the role of threshold pressure in controlling flow of waste-generated gas into bedded salt at the Waste Isolation Pilot Plant, Davies, P., Sandia National Laboratory Report SAND90-3246 UC-721, Albuquerque, NM.
- [36] EWN & TÜV Nord SysTec (2008): Möglichkeit einer Rückholung der MAW-Abfälle aus der Schachanlage Asse, Stand 06.10.2008, Lubmin, Hamburg: EVN GmbH & TÜV NORD SysTec GmbH & Co. KG, BfS-KZL: 9A/21300000/BB/B/0020/00.
- [37] Fellhauer, D., Neck, V., Altmaier, M., Lützenkirchen, J., Fanghänel, T. (2010): Solubility of tetravalent actinides in alkaline CaCl₂ solutions and formation of Ca₄[An(OH)₈]⁴⁺ complexes: A study of Np(IV) and Pu(IV) under reducing conditions and the systematic trend in the An(IV) series. Radiochimica Acta (2010), 98, 541-548.
- [38] Gerstmann, U., Meyer, H., Tholen, M. (2002): Bestimmung des nuklidspezifischen Aktivitätsinventars der Schachanlage Asse: Abschlußbericht. im Auftrag des GSF-Forschungsbergwerkes Asse, BfS-KZL: 9A/25100000/LAB/RB/0001/00, 08/2002
- [39] Greene, N.D., Fontana, M.G. (1959): A Critical Analysis of Pitting Corrosion, Corrosion Engineering Digest 8, 298-307.
- [40] Grenthe, I. et al. (2020): Second update on the chemical thermodynamics of uranium, neptunium, plutonium, americium and technetium. OECD Publications, Paris, France.
- [41] GRS/CSD (2019): Strukturmodell D8 und Datensatz für das Grubengebäude der Schachanlage Asse II. Interner Bericht, GRS-A-3925, CSD 2734/09, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit gGmbH, Braunschweig, CSD Ingenieure, Aarau, Schachanlage Asse II, BGE-SZ-KZL: 9A/24200000/EG/RB/0004/00, Stand 24.10.2019.
- [42] Guillaumont, R., Fanghänel, T., Neck, V., Fuger, J., Palmer, A., Grenthe, I., Rand, M.H. (2003): Chemical thermodynamics vol. 5, update on the chemical thermodynamics of uranium, neptunium, plutonium, americium and technetium. Elsevier North Holland, Amsterdam.
- [43] Gwinner, B., Sercombe, J., Tiffreau, C., Simondi-Tesseire, B., Felines, I., Adenot, F. (2006): Modelling of bituminized radioactive waste leaching. Part II: Experimental validation. Journal of Nuclear Materials 349. 107 – 118.
- [44] Hammond, G.E., Lichtner, P.C., Mills, R.T. (2014): Evaluating the performance of parallel subsurface simulators: An illustrative example with PFLOTRAN. Water Resources Research, 50, 208–228. doi:10.1002/2012WR013483
- [45] 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, Karlsruher Institut für Technologie (2015).

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 132

- [46] Hofmann, S., Voitchovsky, K., Schmidt, M., Stumpf, T. (2014): Trace concentration – Huge impact: Nitrate in the calcite/Eu(III) system. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 125, 528-538.
- [47] Hofmann, S., Voitchovsky, K., Schmidt, M., Stumpf, T. (2016): Visualising the molecular alteration of the calcite (104) –water interface by sodium nitrate. *Sci. Rep.* 6, 21576.
- [48] Irisawa, K., Ohson, O., Meguro, Y. (2014): Effects of salt content on leaching properties of synthetic bituminized wastes. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 51, 323–331. doi:10.1080/00223131.2014.864959
- [49] Kay, J.G. (1988): Bateman equations simplified for computer usage. *Journal of Chemical Education*, 65, 970. doi:10.1021/ed065p970
- [50] Kienzler, B., Metz, V. (2009): Modelling Long-Term Corrosion of Cemented Waste Forms in Salt Brines. 1–7. doi:10.1115/ICEM2009-16202
- [51] Kienzler, B., Borkel, C., Metz, V. (2015): Langzeit-Wechselwirkungen von zementierten Abfallsimulaten im Originalmaßstab mit Salzlösungen; Zusammenfassender Abschlussbericht. Karlsruhe Institute of Technology (KIT), Institut für Nukleare Entsorgung (INE) für Bundesamt für Strahlenschutz (BfS), BfS-KZL: 9A/62260000/MAN/RB/0002/00, 12.04.2015.
- [52] Kienzler, B., Borkel, C., Metz, V., Schlieker, M. (2016): Long-Term Interactions of Full-Scale Cemented Waste Simulates with Salt Brines. Karlsruhe Institute of Technology (KIT), Institut für Nukleare Entsorgung (INE), KIT Scientific Reports, 7721, 2016.
- [53] Kim, J.I. (1986): Chemical behaviour of transuranic elements in natural aquatic systems. In: Freeman, A.J., Keller, C. (eds): *Handbook of the Physics and Chemistry of the Actinides*, vol. 4. North- Holland Press, Amsterdam, 413–455.
- [54] Kim, H.-T. Frederick Jr, W. J. (1988): Evaluation of Pitzer ion interaction parameters of aqueous electrolytes at 25°C. 1. Single salt parameters. *Journal of Chemical and Engineering Data*, 33, 177-184.
- [55] KIT-INE (2017): Experimentelle Arbeiten zur Absicherung von Modellrechnungen und Maximalkonzentrationen für Plutonium und Americium. Bundesamt für Strahlenschutz, Bericht 9A/24250000/EGC/RZ/0005/00.
- [56] KIT-INE (2017): Iststandsanalyse zum geochemischen Milieu und dem Radionuklidverhalten in den Einlagerungskammern der Schachanlage Asse II. Karlsruher Institut für Technologie (KIT) - Institut für Nukleare Entsorgung (INE) für Bundesamt für Strahlenschutz (BfS), BfS-KLZ: 9A/24200000/EG/RZ/0003/00.
- [57] Kluger, W., Hild, W., Köster, R., Meier, G., Krause, H. (1980): Bituminierung radioaktiver Abfallkonzentrate aus Wiederaufarbeitung, Kernforschungseinrichtungen und Kernkraftwerken. Kernforschungszentrum Karlsruhe, Institut für Nukleare Entsorgungstechnik. KfK 2975, PWA 15/80.
- [58] Köster, R., Rudolph, G. (1988): Das Gleichgewichtskonzept – ein neuer Ansatz zur Abschätzung der Langzeit-Radionuklidfreisetzung aus einem Endlager für radioaktive Abfälle. Kernforschungszentrum Karlsruhe: Institut für Nukleare Entsorgungstechnik, KfK 4406.
- [59] Kulik, D.A. (2011): Improving the structural consistency of C-S-H solid solution thermodynamic models. *Cement and Concrete Research*, 41, 477–495. doi:10.1016/j.cemconres.2011.01.012
- [60] Lach, A., André, L., Lassin, A. (2017): Darapskite solubility in basic solutions at 25°C: A Pitzer model for the Na-NO₃-SO₄-OH-H₂O system. *Applied Geochemistry* (2017), 78, 311-320.
- [61] Libert, M.-F., Jacquot, F., Romero, M.A., Besnidou, B. (1996): In vitro evaluation of microbial effects on bitumen waste form. In *Microbial Degradation Processes in*

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 133

- Radioactive Waste Repository and in Nuclear Fuel Storage Areas, NATO ASI, pp. 275–283.
- [62] Lichtner, P.C., Hammond, G.E., Lu, C., Karra, S., Bisht, G., Andre, B., Mills, R.T., Kumar, J., Frederick, J.M. (2018): PFLOTRAN User Manual: A Massively Parallel Reactive Flow and Transport Model for Describing Surface and Subsurface Processes. Release 1.1, 09.08.2018.
- [63] Lichtner, P.C., Hammond, G.E., Lu, C., Karra, S., Bisht, G., Andre, B., Mills, R.T., Kumar, J. (2020): PFLOTRAN Web page. PFLOTRAN: A Massively Parallel Reactive Flow and Transport Model for describing Surface and Subsurface Processes. URL <http://www.pflotran.org> (aufgerufen am 22.06.2021).
- [64] Lichtner, P.C., Hammond, G.E., Lu, C., Karra, S., Bisht, G., Andre, B., Mills, R.T., Kumar, J. (2020): PFLOTRAN Web page. General Mode – Governing Equations. https://documentation.pflotran.org/theory_guide/mode_general.html#capillary-pressure-saturation-functions (aufgerufen am 10.02.2022).
- [65] Lothenbach, B., Kulik, D.A., Matschei, T., Balonis, M., Baquerizo, L., Dilnesa, B., Miron, G.D., Myers, R.J. (2018): Cemdata18: A chemical thermodynamic database for hydrated Portland cements and alkali-activated materials. Cement and Concrete Research, in press. doi:10.1016/j.cemconres.2018.04.018
- [66] 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: Abschlussbericht Teil 4, Standortspezifische Sorptionskoeffizienten. FZK-INE 015/03. Forschungszentrum Karlsruhe.
- [67] Mariën, A, Valcke, E. Bleyen, N., Smets, S. (2012): The osmosis-induced swelling and NaNo₃ leaching of radioactive and artificially aged Eurobitum bituminized waste. MRS Proceedings 1475, 113 – 118.
- [68] 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., Walschburger, C. (2011): Studie zur Abschätzung standortspezifischer Pu- und Am-Rückhaltung (Schachanlage Asse II) – Abschlussbericht, Institut für Nukleare Entsorgung (KIT-INE).
- [69] Müller-Hoeppe, N., Engelhardt, H.J. (2011): Ermittlung der anfänglichen Porenraumsättigung vom Salzbeton Typ Asse und vom Sorelbeton A1 und Ca. Bentonit Typ Salzdetfurth (Arbeitspaket 9.1.2). DBETEC: Peine, Oktober 2011.
- [70] NAGRA. (1989): Mikrobieller Abbau von Bitumen. Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), Nagra Technical Report, NTB 89-14.
- [71] Nakayama, S., Lida, Y., Nagano, T., Akimoto, T. (2003): Leaching Behavior of a Simulated Bituminized Radioactive Waste Form under Deep Geological Conditions. Journal of Nuclear Science and Technology, 40:4, 227-237, DOI:10.1080/18811248.2003.9715353
- [72] NEA (2012): Methods for Safety Assessment of Geological Disposal Facilities for Radioactive Waste, Outcomes of the NEA MeSA Initiative. NEA No. 6923, Nuclear Energy Agency, Paris.
- [73] Neck, V., Fanghänel, T., Kim, I. (1998): Aquatische Chemie und thermodynamische Modellierung von trivalenten Actiniden. Bericht FZKA 6110, Forschungszentrum Karlsruhe.
- [74] Neck, V. & Kim, J. I. (2001): Solubility and hydrolysis of tetravalent actinides. Radiochimica Acta, 89, 1-16.
- [75] Neck, V., Altmaier, M., Rabung, T., Lützenkirchen, J., Fanghänel, T. (2009): Thermodynamics of trivalent actinides and neodymium in NaCl, MgCl₂, and CaCl₂

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									Blatt: 134

- solutions: Solubility, hydrolysis, and ternary Ca-M(III)-OH complexes. *Pure and Applied Chemistry*, 81, 1555-1568.
- [76] Niemeyer, M. (2015): LZS ERAM: Mikrobielle Oxydation von Bitumen in Dichtelementen. AF-Consult Switzerland AG, Baden (Schweiz), MEMO 4651/279, 19.11.2015.
- [77] Ochs, M., Hager, D., Helfer, S., Lothenbach, B. (1998): Solubility of radionuclides in fresh and leached cementitious systems at 22 °C and 50 °C. In: *Proceedings of the Material Research Society Symposium*, 506, 773–780.
- [78] Ochs, M., Pointeau, I., Giffaut, E. (2006): Caesium sorption by hydrated cement as a function of degradation state: experiments and modelling. *Waste Manage.* 26, 725–732.
- [79] Ochs, M., Mallants, D., Wang, L. (2016): *Radionuclide and Metal Sorption on Cement and Concrete*, Springer International Publishing AG Switzerland.
- [80] Parkhurst, D.L., Appelo, C.A.J. (2013): *Description of Input and Examples for PHREEQC Version 3-A Computer Program for Speciation, Batch-Reaction, One-Dimensional Transport, and Inverse Geochemical Calculations*. U.S. Department of the Interior, U.S. Geological Survey, Chapter 43 of Section A, Groundwater; Book 6, Modeling Techniques; Techniques and Methods 6–A43.
- [81] Pettersson, M., Elert, M. (2001): Characterisation of bitumenised waste in SFR 1. SKB Report R-01-26.
- [82] Pointeau, I., Piriou, B., Fedoroff, M., Barthes, M.-G., Marmier, N., Fromage, F. (2001): Sorption mechanisms of Eu³⁺ on CSH phases of hydrated cements. *J. Colloid Interface Sci.* 236, 252–259.
- [83] Poller, A., Mayer, G., Darcis, M., Smith, P. (2016): Modelling of Gas Generation in Deep Geological Repositories after Closure. Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), Nagra Working Report, NAB 16-04.
- [84] Pruess, K. (1987): *TOUGH User's Guide*, Lawrence Berkeley National Laboratory Report LBL-20700, Berkeley, California.
- [85] Rabung, T., Altmaier, M., Neck, V., Fanghänel, T. (2008): A TRLFS study of Cm(III) hydroxide complexes in alkaline CaCl₂ solutions. *Radiochimica Acta*, 96, 551-559.
- [86] Rauche, H., Freyer, D., Popp, T (2018): Schachanlage Asse II: Nachweis der Langzeitbeständigkeit für den Sorelbaustoff der Rezeptur A1. ERCOSPLAN, TU BAF (IFAC), IFG, BGE-SZ-KZL: 9A/33510000/GHS/TS/0001/00, 08.10.2018.
- [87] Regenauer, U. (2020): Organische Stoffe in den Abfällen der Schachanlage Asse II. Anfrage von ASE-RH.4. Interne Mitteilung, DokID B2985060. Salzgitter, 15.05.2020.
- [88] Roffey, R., Norqvist, A. (1991): Biodegradation of bitumen used for nuclear waste disposal. *Experientia*, 47, 539–542. doi:10.1007/BF01949874.
- [89] Runde, W. (1993): Zum chemischen Verhalten von drei- und fünfwertigem Americium in salinen NaCl-Lösungen. Dissertation, Technische Universität München (1993).
- [90] Sazou, D., Pagitsas, M. (2002): Nitrate ion effect on the passive film breakdown and current oscillations at iron surfaces polarized in chloride-containing sulfuric acid solutions, *Electrochimica Acta* 47, 1567-1578.
- [91] Schepperle, J. (2020): Löslichkeit von Plutonium und Neptunium in An- und Abwesenheit von Carbonat. Dissertation, Karlsruher Institut für Technologie.
- [92] Schlegel, M.L., Pointeau, I., Coreau, N., Reiller, P. (2004): Mechanism of Europium retention by calcium silicate hydrates: an EXAFS study. *Environ. Sci. Technol.* 38, 4423–4431.

Projekt	PSP-Element	Funktion/Thema	Komponente	Baugruppe	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.	
NAAN	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AANNNA	AANN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24000000				EGB	RZ	0011	00	
Gekoppelte Modelle zum Systemverhalten der MAW-Kammer bei Eintreten eines Notfalls und Ableitung orientierender Radionuklid- und Gasquellterme									 BUNDESGESELLSCHAFT FÜR ENDLAGERUNG
									Blatt: 135

- [93] Schwenk, W. (1964): Theory of Stainless Steel Pitting Corrosion 20, 129-137. Tits, J., Wieland, E., Bradbury, M.H., Ecker, P., Schaible, A. (2002): The Uptake of Eu(III) and Th(IV) by Calcite under Hyperalkaline Conditions. PSI Bericht, Villigen.
- [94] Tits, J., Wieland, E., Dobler, J.-P., Kunz, D. (2004): The uptake of strontium by calcium silicate hydrates under high pH conditions: an experimental approach to distinguish adsorption from co-precipitation processes. In: Proceedings of the Material Research Society Symposium, 807, 689–694.
- [95] Tits, J., Wieland, E., Muller, C.J., Landesmann, C., Bradbury, M.H. (2006): A wet chemistry study of the strontium binding by calcium silicate hydrates. J. Colloid Interface Sci. 300, 78–87.
- [96] Van Iseghem, P., Berghman, K., Timmermans, W. (1991): Physico-chemical characterization of bituminized Eurochemic medium-level waste. Task 3: Characterization of radioactive waste forms. A series of final reports (1985 -89). No.5. Commission of the European Communities, Luxembourg.
- [97] Van Genuchten M.T. (1980): A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. Soil science of America journal 44, 892-898.
- [98] Wardeh, G. & Perrin, B. (2006): Relative Permeabilities of Cement-based Materials: Influence of the Tortuosity Function. Journal of Building Physics, July 2007, DOI: 10.1177/1744259106064597
- [99] Wieland, E., Tits, J., Kunz, D., Dahn, R. (2008): Strontium uptake by cementitious materials. Environ. Sci. Technol. 42, 403–409.
- [100] Wolf, M., Bachofen, R. (1991): Microbial degradation of bitumen matrix used in nuclear waste repositories. The Science of Nature, 78, 414–417. doi:10.1007/BF01133415.
- [101] Xu, W., Zhang, B., Deng, Y., Yang, L., Zhang, J. (2021): Nitrate on localized corrosion of carbon steel and stainless steel in aqueous solutions. Electrochimica Acta 396, 137660.
- [102] Zuo, Y., Wang, H., Zhao, J., Xiong, J. (2002): The effects of some anions on metastable pitting of 316L stainless steel. Corrosion Science 44, 13-24.