

Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf

Endlagerforschung: Aktueller Stand und Ergebnisse aus dem HZDR

Dr. Harald Foerstendorf
21. Februar 2014



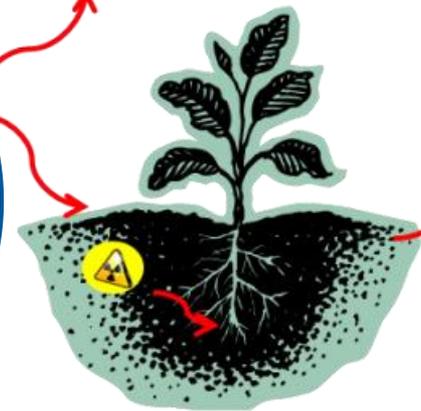
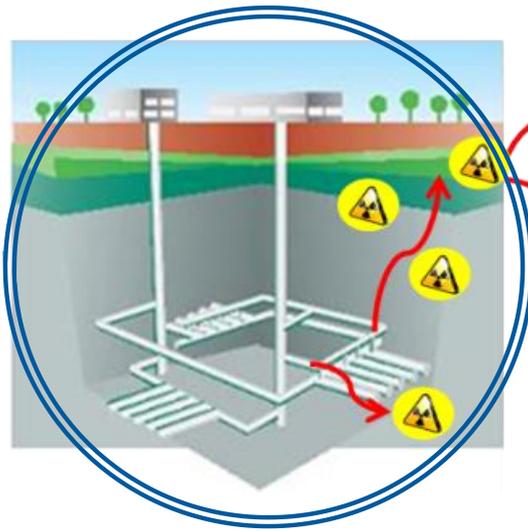
- **Forschungsfeld Ressourcenökologie am HZDR**
 - Ziele der Forschungsarbeiten
- **Kernenergie und radioaktiver Abfall in Deutschland**
 - Politische Rahmenbedingungen seit dem Jahr 2000
 - Woher kommt der Abfall? Was ist radioaktiver Abfall? Wohin damit heute?
 - Konzepte der Entsorgung
- **Auf der Suche nach einem geeigneten Tiefenlager**
 - Aktuelle Lagerung radioaktiver Abfälle in Deutschland
 - Kriterien für das Auswahlverfahren
 - Potentielle Standorte aus heutiger Sicht
- **Naturwissenschaft in der Endlagerforschung**
 - Fragestellungen für die Chemie
 - Molekulare Prozesse in der Geo- und Biosphäre
 - Daten für verlässliche Sicherheitsanalysen

Forschungsfeld Ressourcenökologie am HZDR

Schutz von Mensch und Umwelt vor den Gefahren des Eintrags von (radioaktiven) Schwermetallen in die Biosphäre

Auswirkungen störfallbedingter radioaktiver Kontaminationen

Langzeitsicherheit von nuklearen Endlagern



Entwicklung und Einschätzung von Sanierungsmethoden im Uranerzbergbau

- Wechselwirkung und Mobilität von Actiniden (Th, U, Np, Pu, Cm und Am), langlebigen Radionukliden und Schwermetallen in Geo- und Biosystemen
- Aufklärung molekularer Abläufe für ein makroskopisches Prozessverständnis und die angewandte Modellierung

Kernkraft in Deutschland seit 2000

- 2002: Ausstiegsbeschluss der Bundesregierung
 - Gesetzesnovelle vom 22. April 2002 („Energiekonsens“ mit Betreibern)
 - Verbot des Neubaus von KKW's & Ende der Wiederaufbereitung (ab Juli 2005)
 - Befristung der Regellaufzeit auf 32 Jahre mit Strommengenbegrenzung (2623 TWh ab 1.1.2000), Übertragungen möglich
 - Stand 2002: 19 Reaktoren in Betrieb (davon 2 bis 2005 abgeschaltet)

- 2010: Laufzeitverlängerung
 - 7 Reaktoren: + 8 Jahre; 10 Reaktoren: + 14 Jahre
 - Stand 2010: Ältestes: 1975 (Biblis A), jüngstes: 1989 (Neckarwestheim II), vollständig rückgebaut (1987–95): KKW Niederaichbach

- 2011: „Energiewende“
 - Auslöser: Tōhoku Erdbeben und seine Folgen auf Reaktoren in Fukushima-Daiichi
 - Stand 2011: 8 Reaktoren unmittelbar abgeschaltet, 9 Reaktoren bis 2022 in Betrieb

Bundesdeutsche Gesetze der „Energiewende“

Stand: 30.6.2011

- Atomausstieg bis 2022
- Endlagererkundung Gorleben & Verfahrensfestlegung
- Steuer auf Brennelemente
- Ökoenergieförderung (35% bis 2020)
- Ökoenergie- und Klimafond
- Kraftwerksneubau (vorrangig Gas)
- Stromnetzausbau (ca. 4500 km neu)
- Förderung Gebäudesanierung
- Einheitliches Baurecht für Windräder
- Ausgleich für energieintensive Industrie

EU Richtlinie: Entsorgung radioaktiver Abfälle

2011/70/EURATOM

Die Mitgliedsstaaten müssen:

- geeignete Vorkehrungen für ein hohes Sicherheitsniveau treffen,
- eine fortlaufende Verbesserung ihres Entsorgungssystems erreichen und aufrechterhalten,
- die Öffentlichkeit über ihr Vorgehen informieren und
- den Bürgerinnen und Bürgern dabei die Möglichkeit geben, sich an der Entscheidungsfindung im Zusammenhang mit der Entsorgung effektiv zu beteiligen.
- ... der Kommission [...] spätestens bis zum 23.08.2015, ihre nationalen Entsorgungsprogramme übermitteln.

→ Endlagersuchgesetz 2013

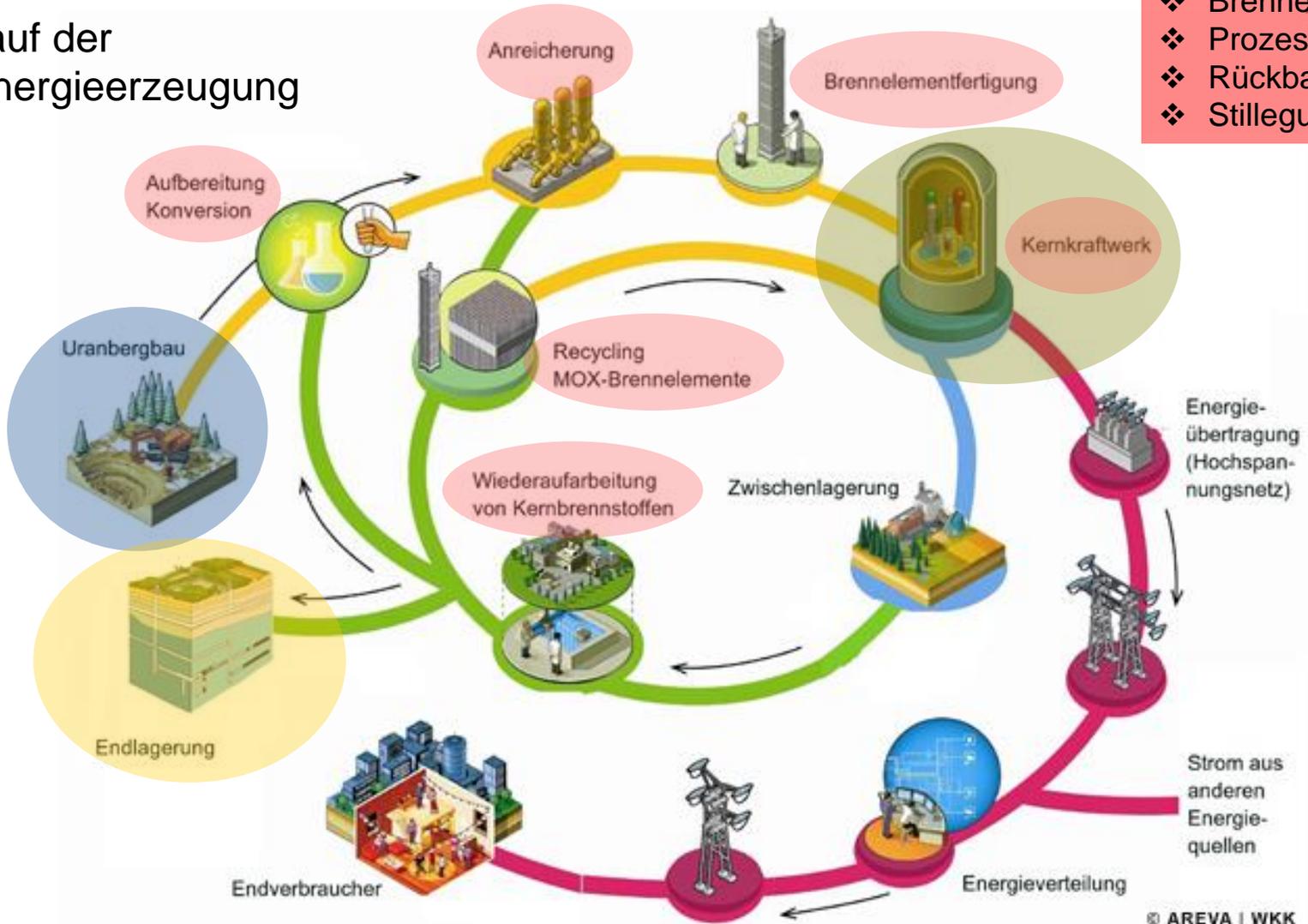
Nukleare Sicherheits- und Entsorgungsforschung

- „... Die Koalition wird die Nuklearforschung auf wichtige Zukunftsthemen fokussieren. Durch die institutionell und projektgeförderte nukleare Sicherheits- und Entsorgungsforschung werden wir einen **wesentlichen Beitrag** zur Verbesserung der Sicherheit im In- und Ausland, **zur Lösung der nuklearen Entsorgungsfragen** und zum Kompetenzerhalt in Deutschland leisten, der besonders auch für die internationale Zusammenarbeit erforderlich ist. **Wir werden nach dem Neubeginn der Endlagersuche die Endlagerforschung verstärken. ...“**

→ Wissenschaftliche Forschung im Bereich der Endlagerung von radioaktivem Abfall ist von aktueller Brisanz und hohem gesellschaftlichen Interesse.

Woher kommen radioaktive Abfälle?

Kreislauf der Kernenergieerzeugung



❖ Außerdem: radioaktive Abfälle aus **Nuklearmedizin, Industrie und Forschung**

Die Menge radioaktiver Abfälle in Deutschland

Angaben in m³

	Bestand		Prognosen			Summe
	Ende 2000	2001 -2010	2011 -2020	2021 -2030	2031 -2040	
Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung (LAW, MAW)	76.000	58.000	54.000	76.000	33.000	297.000
Wärmeentwickelnde Abfälle (HAW)	8.400	9.200	5.700	700	~27	24.000

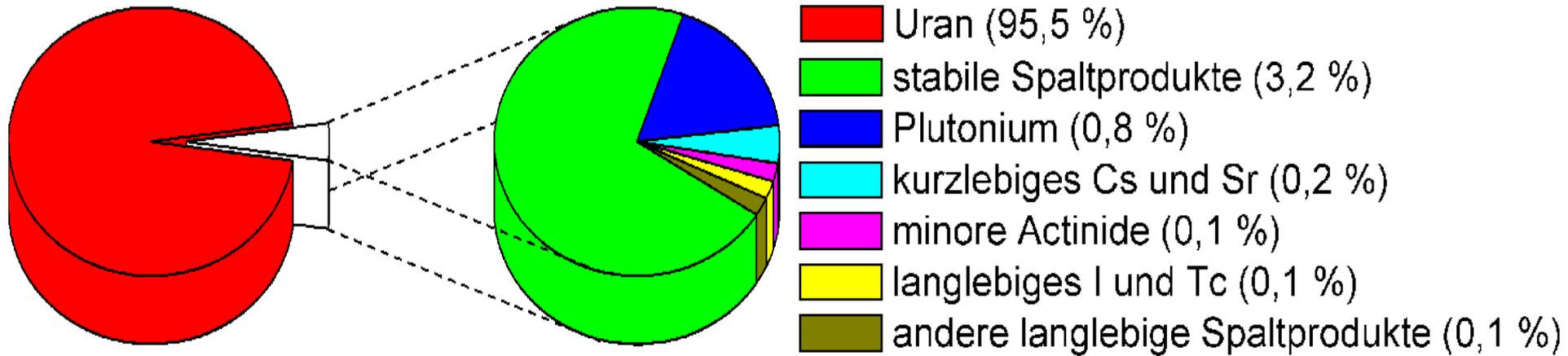
- Wärmeentwickelnde** Abfälle machen weniger als zehn Prozent des Gesamtvolumens aus, setzen aber **99% der Radioaktivität** frei.

~180 x



Quelle: de.wikipedia.org

Verbrauchter Kernbrennstoff (Spent Nuclear Fuel)



■ Toxizität:

- bestimmt durch Art und Energie der ausgesandten Strahlung
- hängt vom Radionuklid ab

■ Radioaktivität:

- nimmt nach physikalischer Gesetzmäßigkeit im Laufe der Zeit ab
- Halbwertszeit für endlagerrelevante Radionuklide von wenigen Jahren bis mehrere zehntausend Jahre

Radioaktive Abfälle: Zusammensetzung

- **Kernbrennstoffe (Uran und Plutonium)**
 - U-234, U-235, U-236, U-238
 - Pu-238, Pu-239, Pu-241, Pu-242
- **Spaltprodukte**
 - γ -Strahler: Ru-106, Sb-125, I-129, I-131, Cs-134, Cs-137, Eu-154, Eu-155
 - β -Strahler: Sr-90, Tc-99
- **Aktivierungsprodukte**
 - Sb-125, Zr-93, Co-60, Fe-55, Ni-59, Ni-63
 - Np-237, Am-241, Cm-242, Cm-244

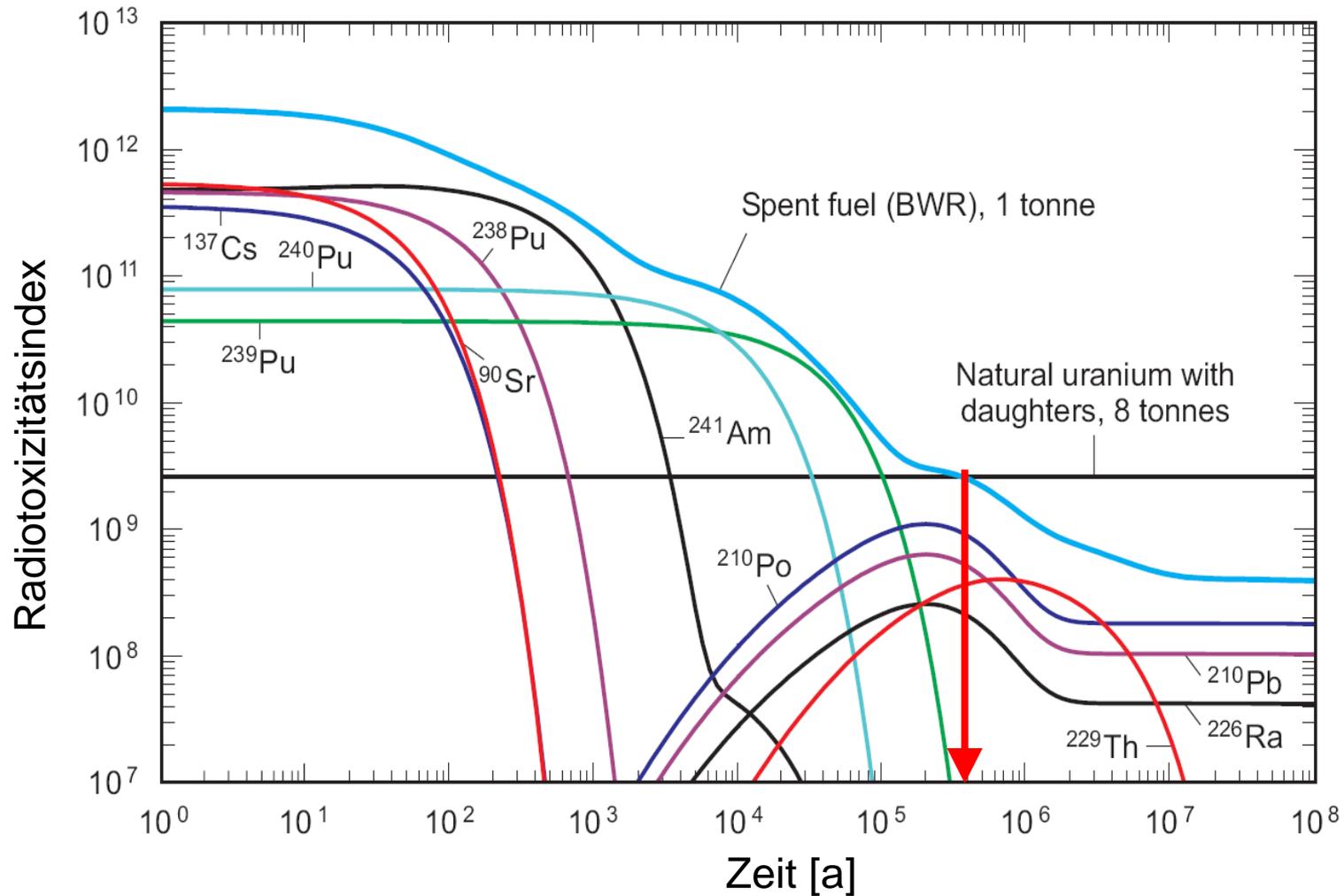
Wichtige Actiniden und Spaltprodukte

periodensystem.net

P.	I-1																VIII-18	
1	1 H	II 2											III 13	IV 14	V 15	VI 16	VII 17	2 He
2	3 Li	4 Be											5 B	6 C	7 N	8 O	9 F	10 Ne
3	11 Na	12 Mg	IIIA 3	IVA 4	VA 5	VIA 6	VIIA 7	VIIIA 8	VIIIA 9	VIIIA 10	IA 11	IIA 12	13 Al	14 Si	15 P	16 S	17 Cl	18 Ar
4	19 K	20 Ca	21 Sc	22 Ti	23 V	24 Cr	25 Mn	26 Fe	27 Co	28 Ni	29 Cu	30 Zn	31 Ga	32 Ge	33 As	34 Se	35 Br	36 Kr
5	37 Rb	38 Sr	39 Y	40 Zr	41 Nb	42 Mo	43 Tc	44 Ru	45 Rh	46 Pd	47 Ag	48 Cd	49 In	50 Sn	51 Sb	52 Te	53 I	54 Xe
6	55 Cs	56 Ba	*	72 Hf	73 Ta	74 W	75 Re	76 Os	77 Ir	78 Pt	79 Au	80 Hg	81 Tl	82 Pb	83 Bi	84 Po	85 At	86 Rn
7	87 Fr	88 Ra	**	104 Rf	105 Db	106 Sg	107 Bh	108 Hs	109 Mt	110 Ds	111 Uuu	112 Uub	113 Uut	114 Uuq	115 Uup	116 Uuh	117 Uus	118 Uuo

Lanthanoide	*	57 La	58 Ce	59 Pr	60 Nd	61 Pm	62 Sm	63 Eu	64 Gd	65 Tb	66 Dy	67 Ho	68 Er	69 Tm	70 Yb	71 Lu
Actinoide	**	89 Ac	90 Th	91 Pa	92 U	93 Np	94 Pu	95 Am	96 Cm	97 Bk	98 Cf	99 Es	100 Fm	101 Md	102 No	103 Lr

Radiotoxizität als Funktion der Zeit



Quelle: Nagra



Radioaktive Abfälle: Prinzipielle Möglichkeiten der Entsorgung

- Oberflächennahe Lagerung
- Lagerung untertägig in geologischen Formationen
- Transport in den Weltraum
- Meeresverkipfung / Versenkung
- Freisetzung / Verteilung / Verdünnung
- Transmutation (Umwandlung) langlebiger Nuklide

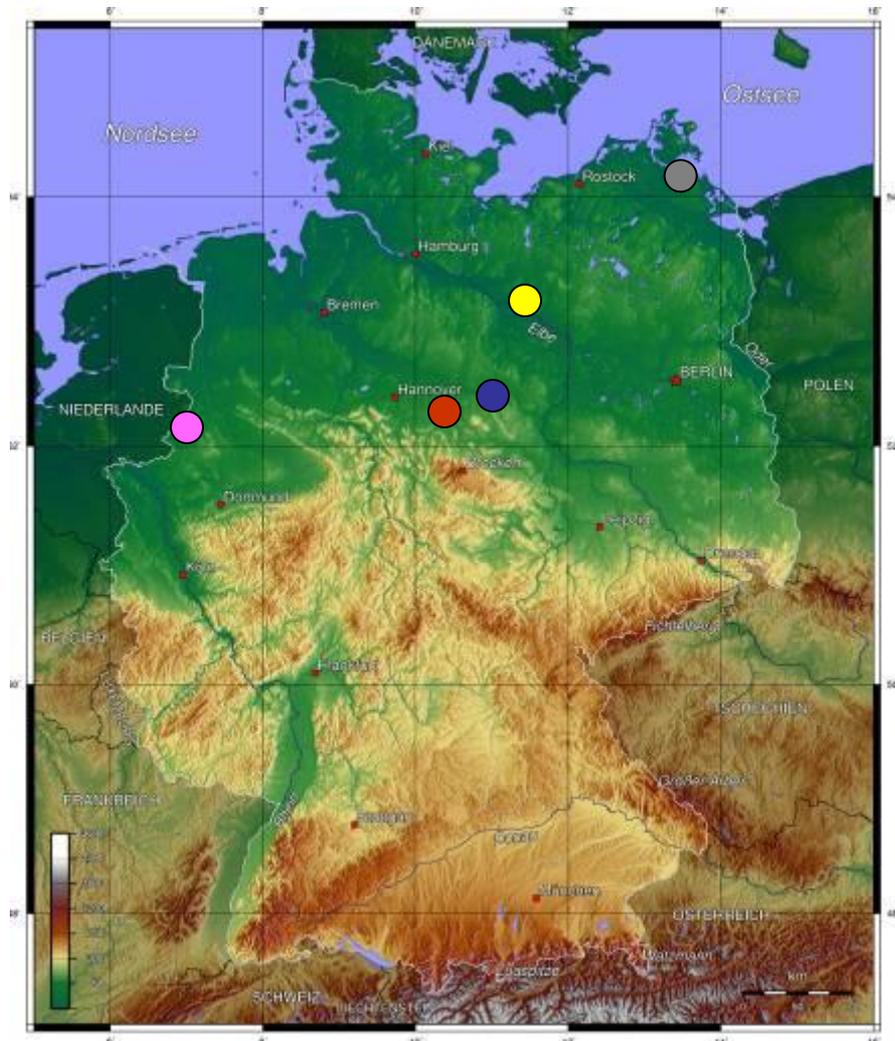
Gute Gründe, die für Tiefenlager sprechen

- Realisierung der Isolation von der Biosphäre über geologische Zeiträume (~ 1 Mio. Jahre) wahrscheinlich
- Keine Gefährdung durch
 - Gesellschaftliche Veränderungen
 - Änderungen der oberflächennahen Nutzung am Standort
 - Klimatische Veränderungen
- Nachsorgefrei

Entsorgung radioaktiver Abfälle: Konzepte in Deutschland

- Kurzzeitlagerung beim Verursacher bzw. Abgabe an Landessammelstelle (low level waste; kein Kernmaterial)
- Zwischenlagerung in zentralen Lagern
 - Mehrere Jahrzehnte Abklingzeit
- Gorleben (Salzstock) als potentieller Standort
 - Ab 2000 Forschungsmoratorium für bis zu 10 Jahre
- Angestrebt: Endlagerung
 - ... bedeutet „Ent-Sorgung“: nachfolgende Generationen sollen nicht durch austretende Schadstoffe gefährdet werden

Nukleare Abfälle in Deutschland heute



Quelle: www.mygeo.info

- Brennelementlager Gorleben
- Zwischenlager Ahaus
- Schacht Konrad Salzgitter
- ERAM Morsleben
- ZL Nord Greifswald

Auswahlverfahren Endlagerstandorte

- Zielsetzungen (BMU an AkEnd):
 - alle radioaktiven Abfälle sollen in tiefe geologischen Formationen im Land
 - ein Endlager soll für alle Abfälle ausreichen
 - Betriebsbereitschaft ab 2030



- Drei mögliche Wirtsgesteine (BGR):

- Kristallinstudie, November 1994
- Salzstudie, August 1995
- Tonstudie, April 2007
- vergleichende Studie, April 2007

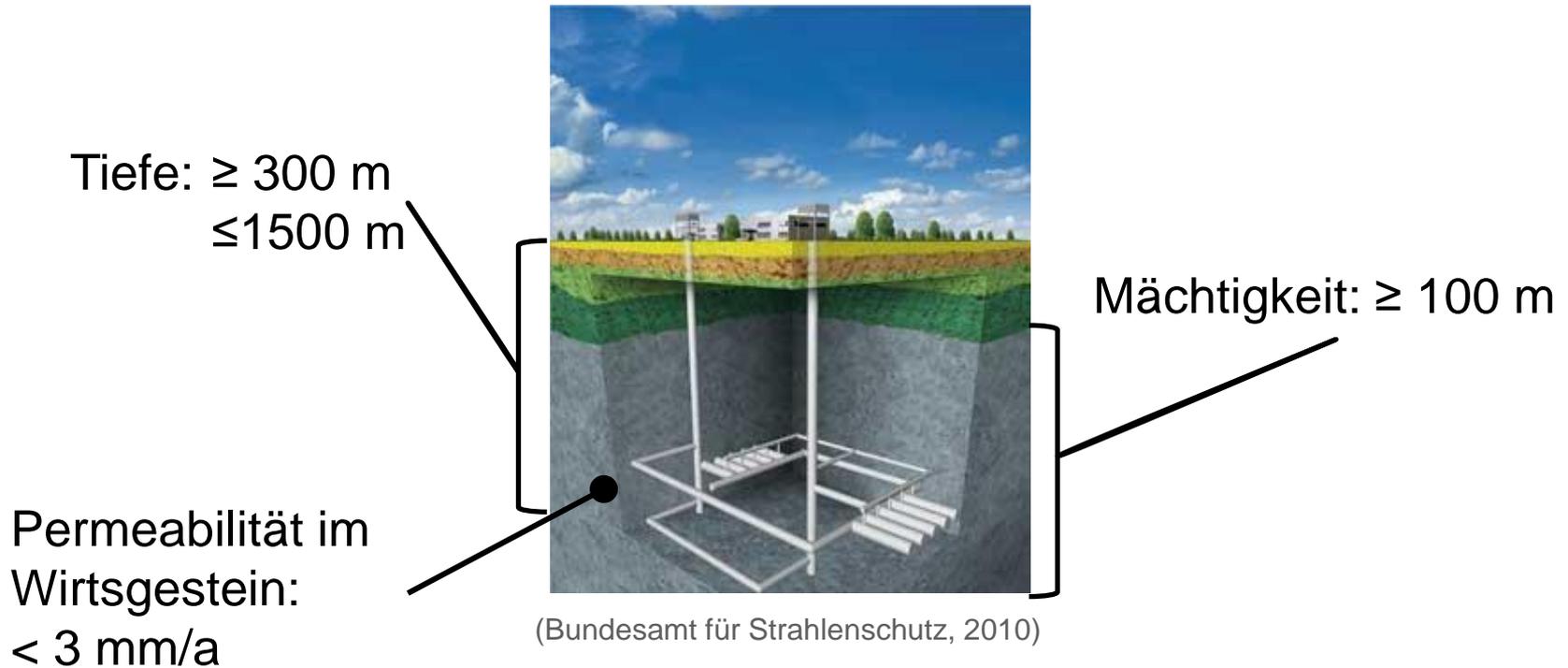


- Prioritär müssen geowissenschaftliche Kriterien Anwendung finden

Mindestanforderungen an Endlagerstandort (I)

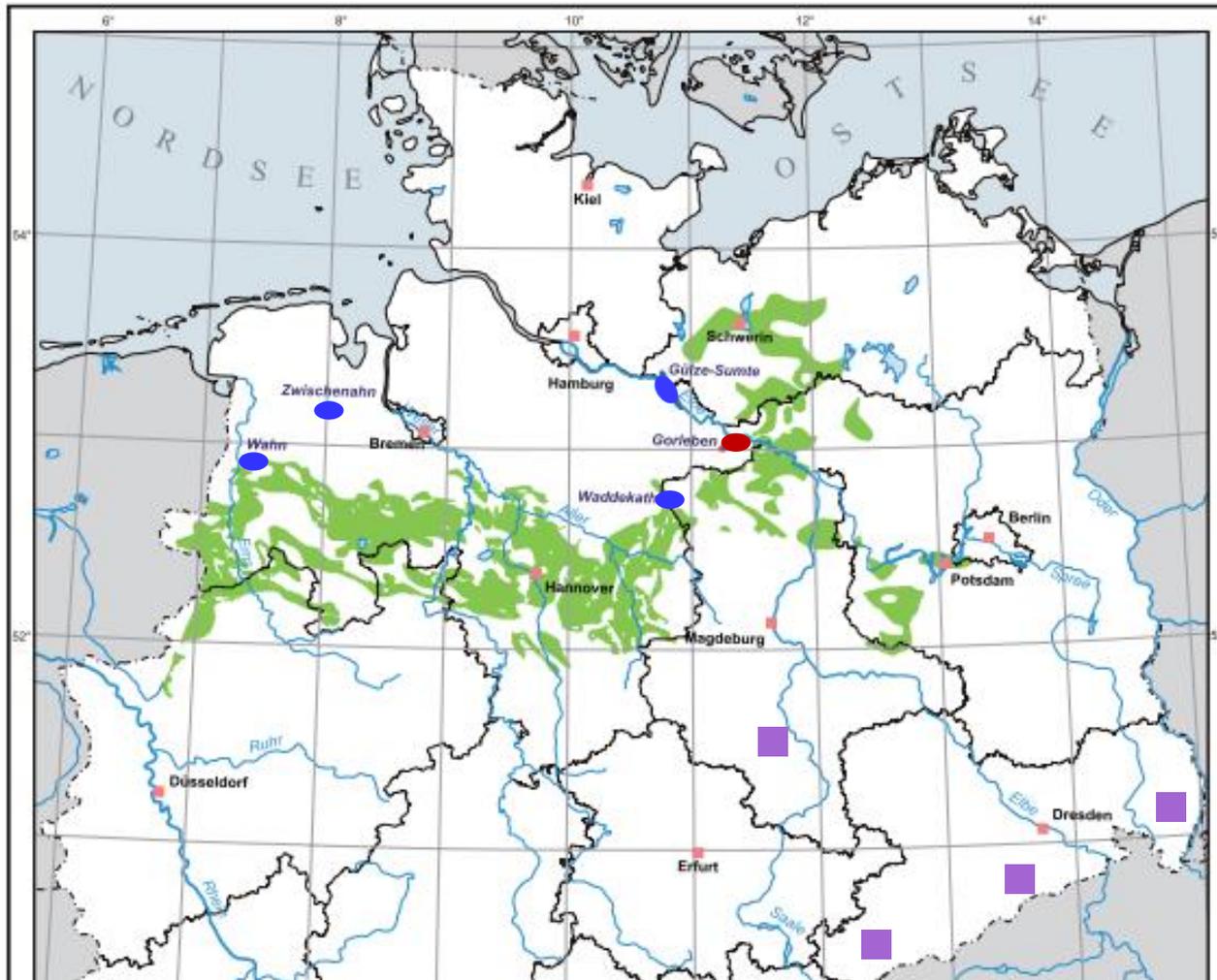
- Vollständiger Einschluss ohne Rückholmöglichkeit
- Mindestgröße des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs
- Keine Gefährdung durch Gebirgsschlag
- Keine Vertikalbewegungen
- Keine seismischen oder vulkanischen Aktivitäten
- Keine jungen Grundwässer nachweisbar
 - Nachweis: kein Tritium, kein C-14
- Gute Erkundbarkeit, gute Prognostizierbarkeit
- Voraussetzungen für 1 Mio. Jahren gewährleistet.
 - Geologische Stabilität (Tektonik, Eiszeit, Überflutung)

Mindestanforderungen an Endlagerstandort (II)



- Mindestgröße des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs:
 - 3 km² in Salzgestein
 - 10 km² in Tongestein oder Granit

Potentiell geeignete norddeutsche Formationen



Untersuchungswürdige Wirtsgesteinsformationen Salzgesteine / Tonsteine

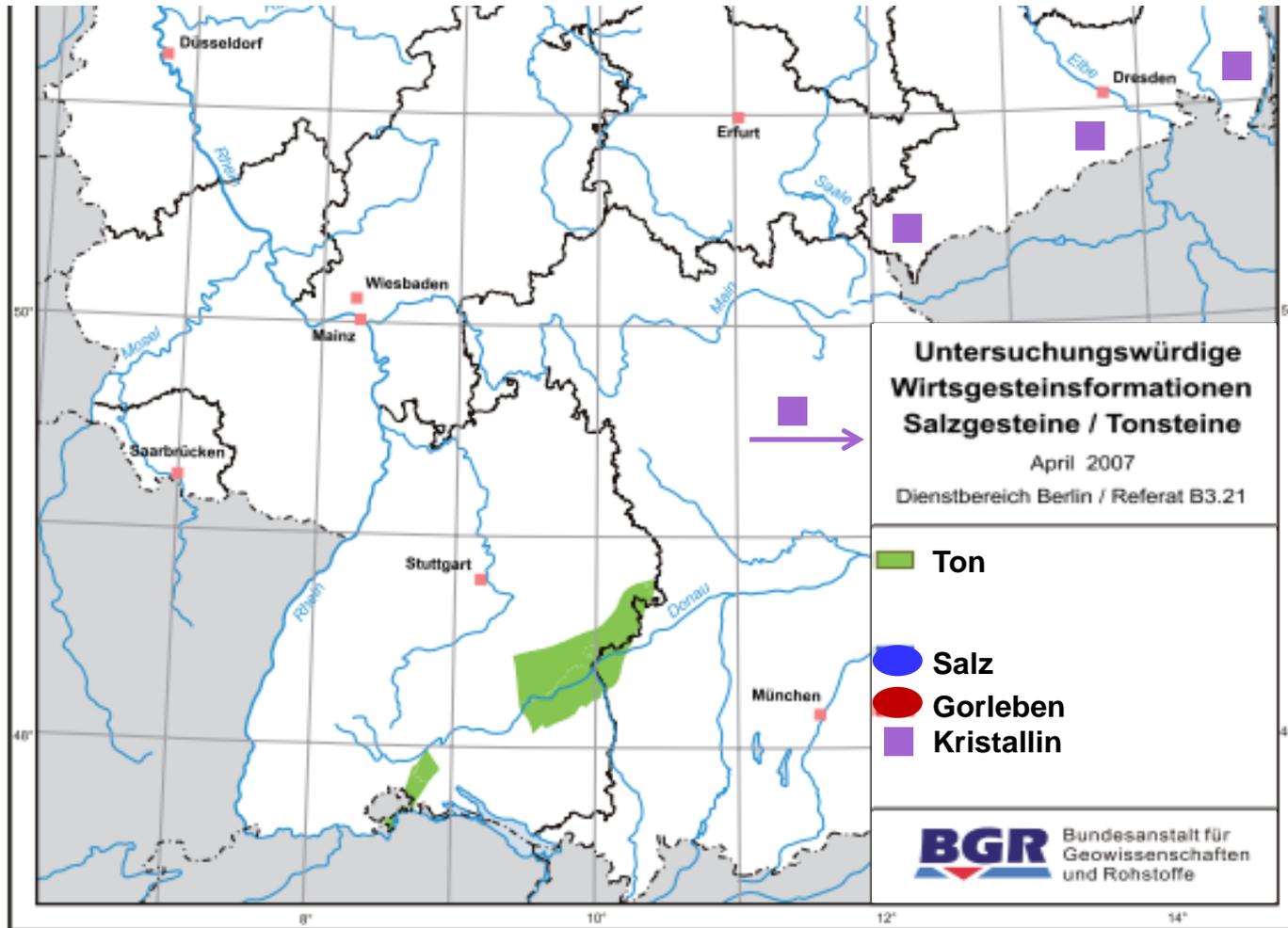
April 2007

Dienstbereich Berlin / Referat B3.21

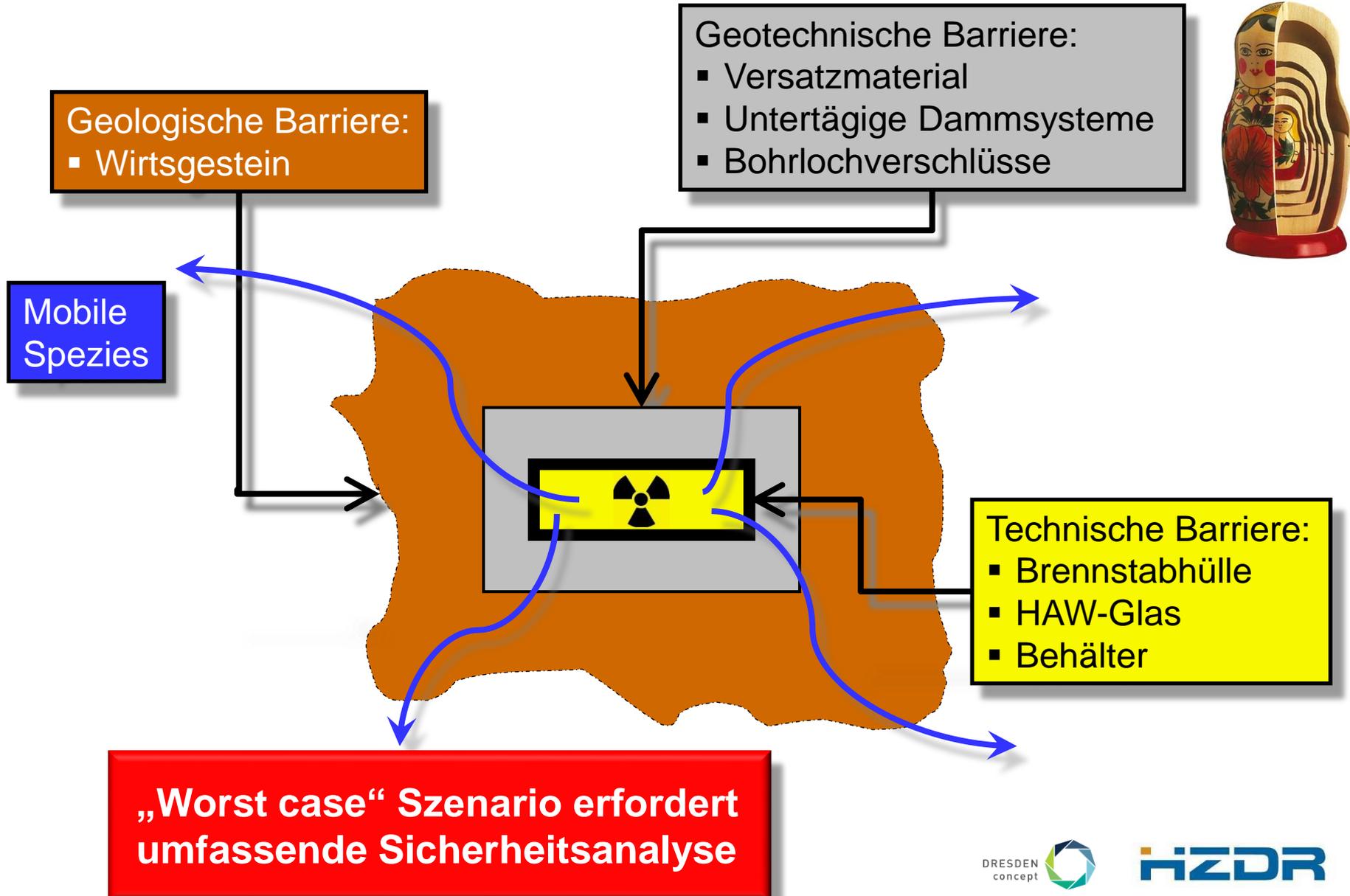
-  Ton
-  Salz
-  Gorleben
-  Kristallin

BGR Bundesanstalt für
Geowissenschaften
und Rohstoffe

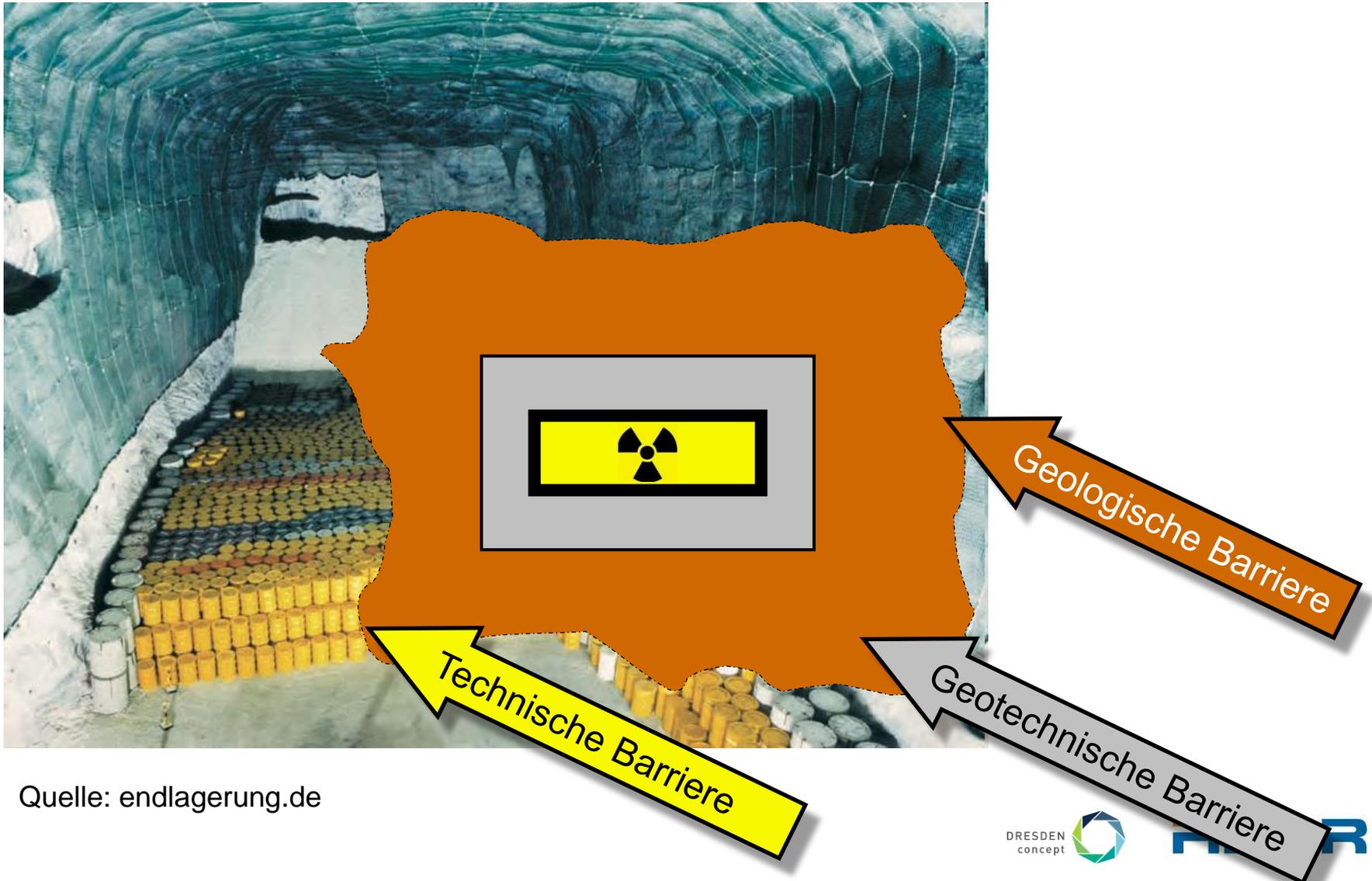
Potentiell geeignete süddeutsche Formationen



Mehrfachbarrierensystem; Nah- und Fernfeld



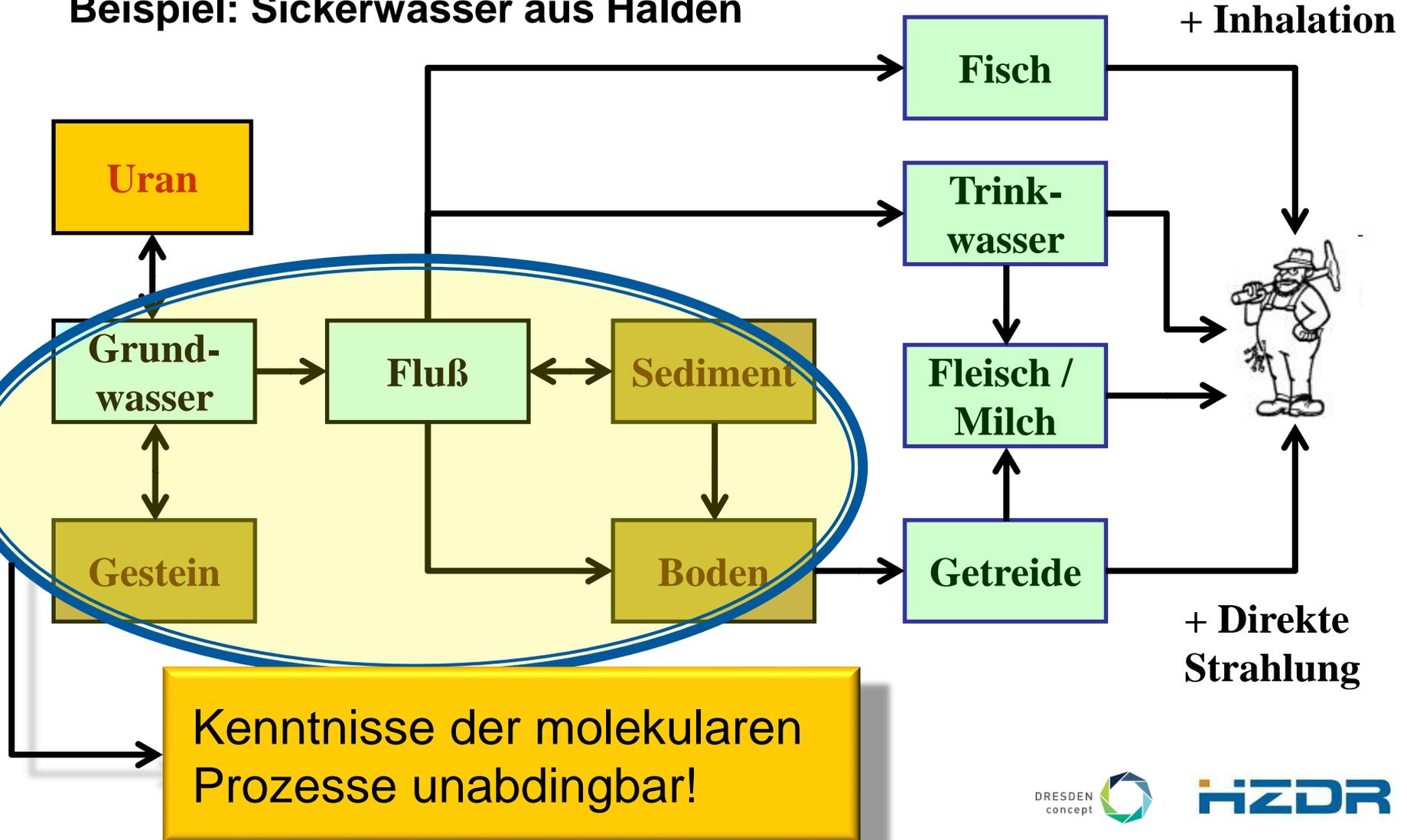
Mehrfachbarrierensystem; Nah- und Fernfeld



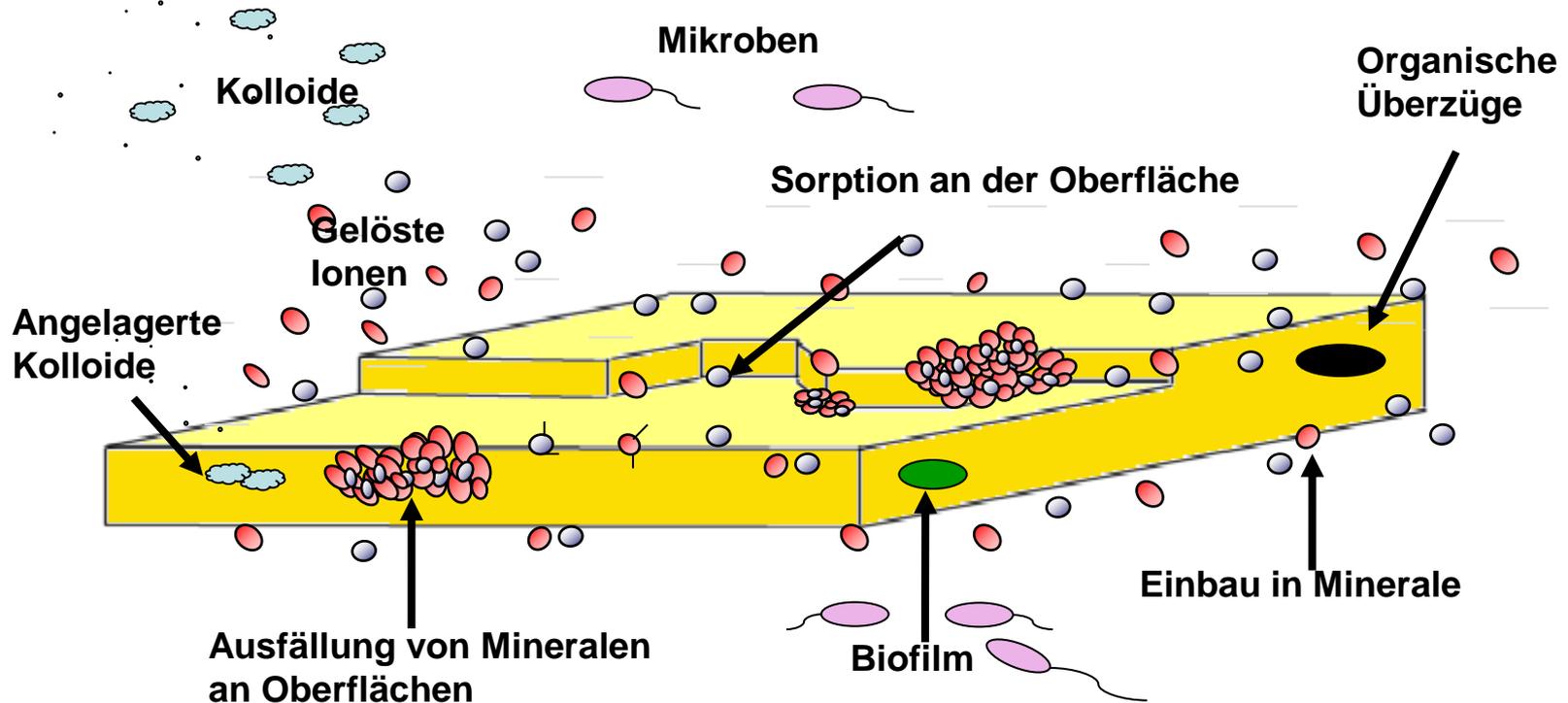
Quelle: endlagerung.de

Risikoabschätzung von Strahlenbelastungen: Compartment-Modell und Ausbreitungspfade

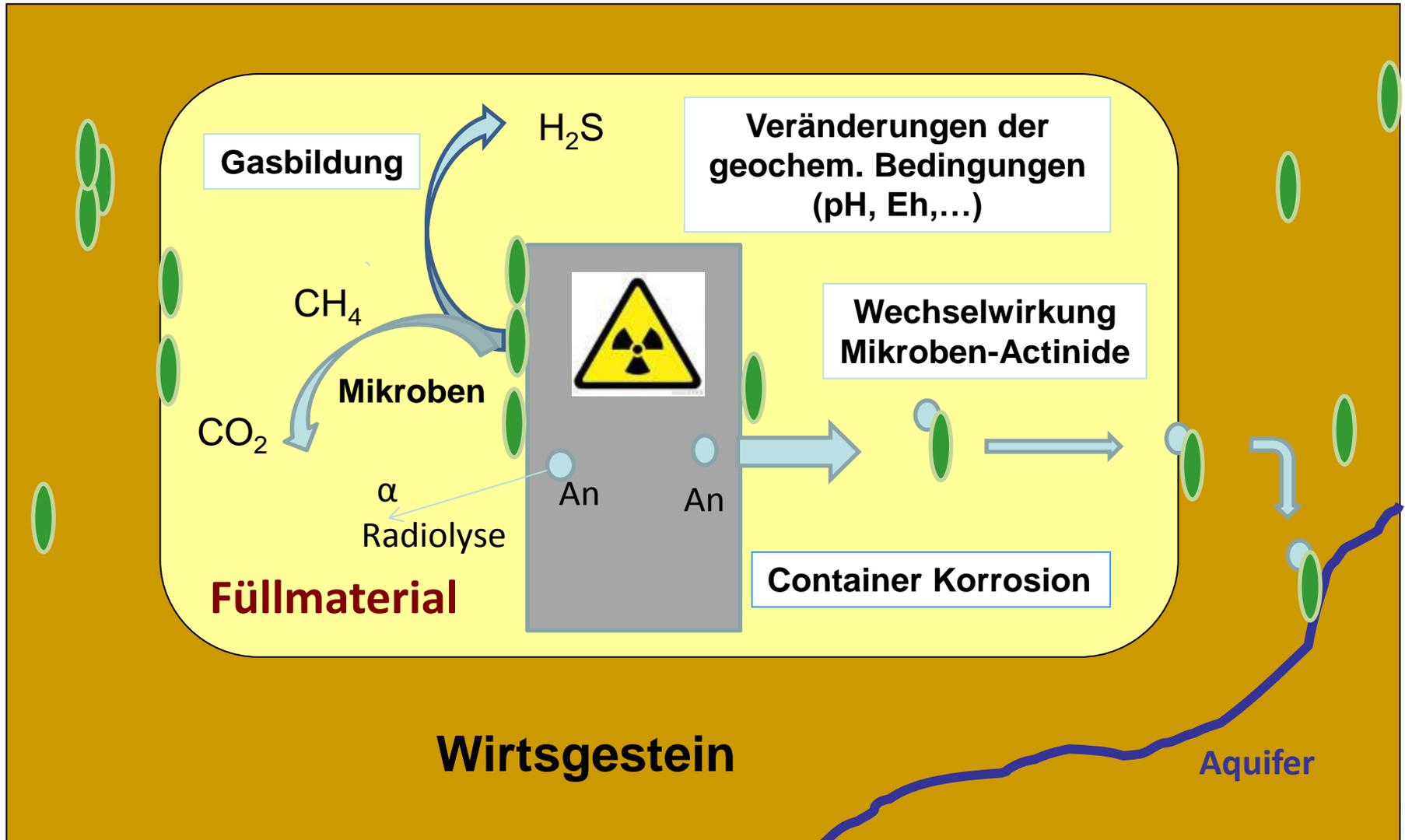
Beispiel: Sickerwässer aus Halden



Wechselwirkungen an der Grenze zwischen Gestein und Wasser



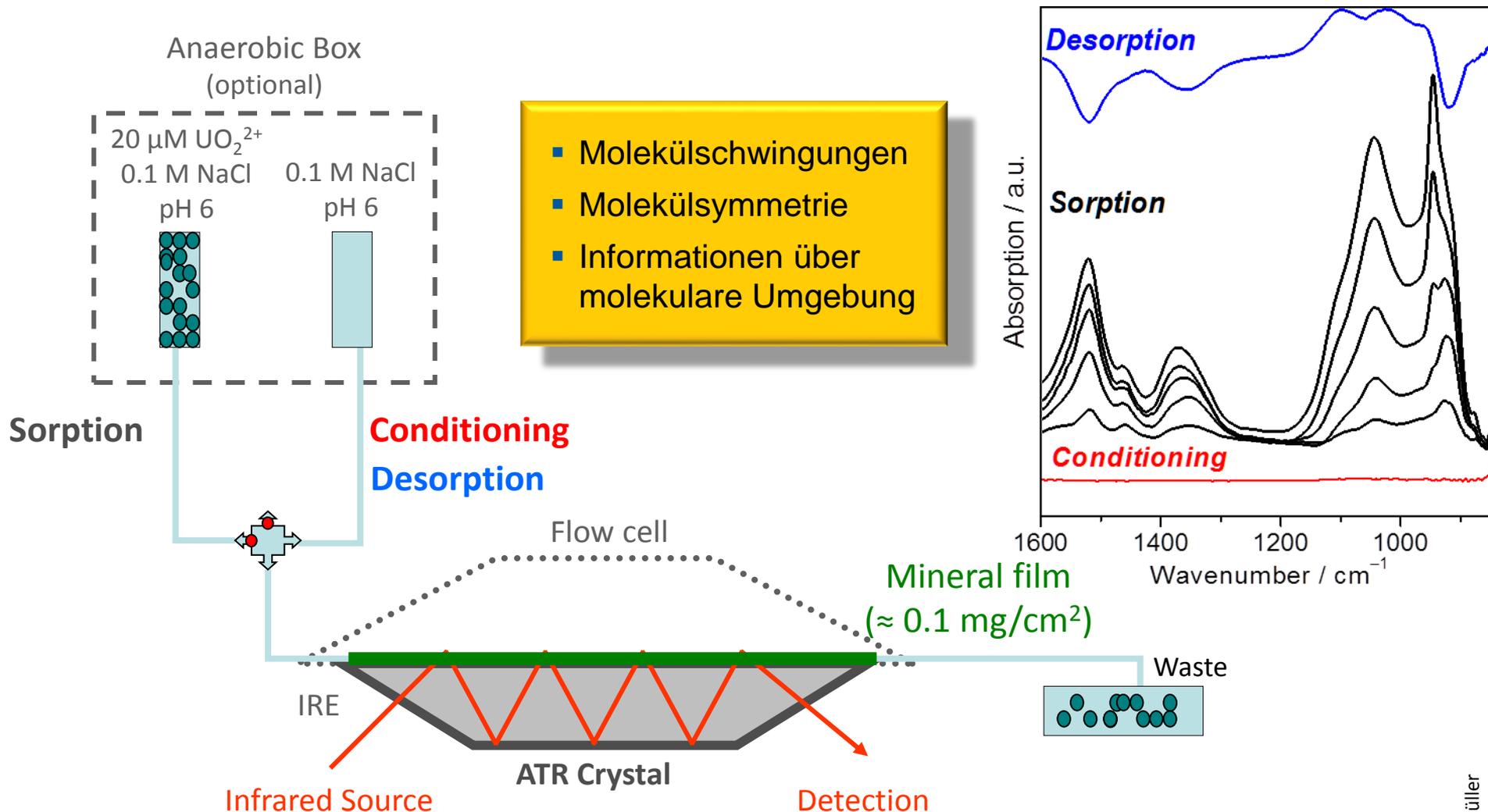
Mikrobiologische Prozesse mit Relevanz für die Endlagerung radioaktiver Abfälle



Ausgewählte Forschungsthemen und -ergebnisse

- Analyse von Grenzflächenkomplexen –
In situ Schwingungsspektroskopie
- Rückhaltung von Plutonium an Korrosionsprodukten –
Beschleunigerbasierte Röntgenabsorptionsspektroskopie
- Langzeitstabile Kolloide –
Sind Actinide mobiler als gedacht?
- Biofilme in Wirtsgesteinen –
Bakterien binden Schwermetalle
- Langzeitsicherheitsanalyse für Uran –
„Smarte“ Gleichgewichtskonstanten für bessere Vorhersagen

In situ Infrarotspektroskopie



Diamond ATR crystal

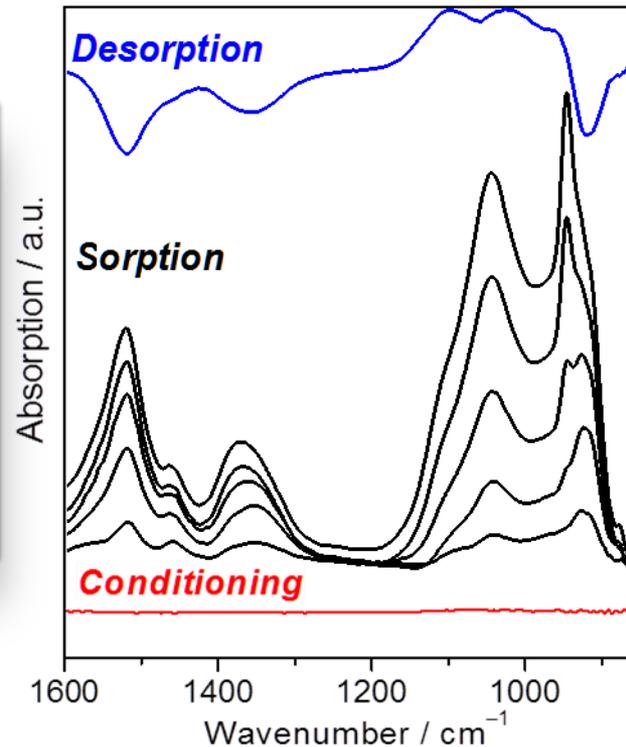
Diameter of crystal surface: 4 mm • No. of reflections: 9

Flow velocity: 0.2 mL/min • Time duration of one experiment: up to 24 h

In situ Infrarotspektroskopie

Informationen über:

- Molekülsymmetrien sorbierter Spezies
- Bildung ternärer Komplexe
- Oberflächenausfällung
- Oberflächenmoden



Information über:

- Desorbierte Spezies
- Reversibilität
- Art der Komplexierung

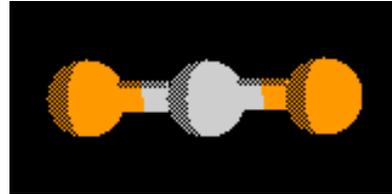
Wichtige Information:

- Referenzspektrum der aquatischen Spezies

- Molekulare Information auf der Nanometerskala
- (De)Sorptionsprozesse werden in Echtzeit verfolgt
- Einblick in dynamische Prozesse

U(VI) Oberflächenspezies an TiO₂ (Anatas)

Unterscheidung der
Oberflächenspezies
durch zeitaufgelöste
IR Spektroskopie

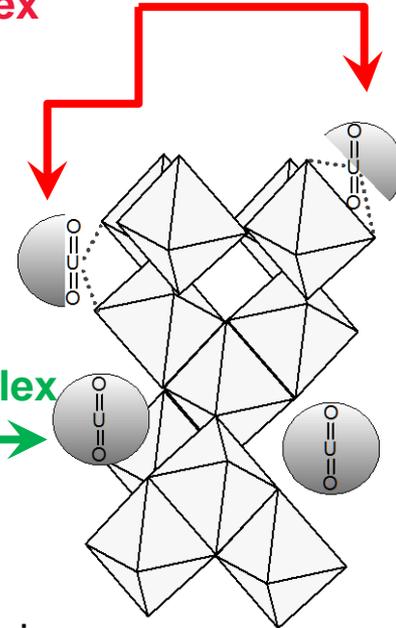


Geringe Beladung:

- 1. Spezies
($\nu_3(\text{UO}_2) \sim 899 \text{ cm}^{-1}$)
Innersphärischer Komplex
(chemisch gebunden)

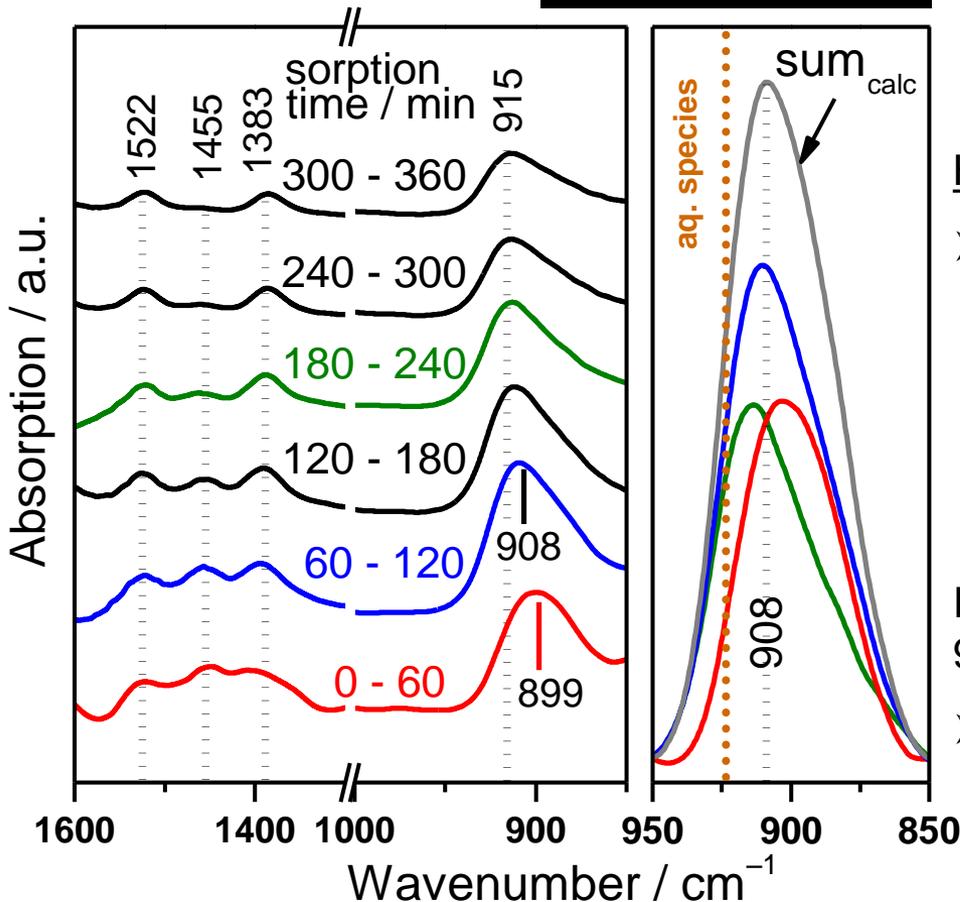
Hohe Beladung:

- 2. Spezies
($\nu_3(\text{UO}_2) \sim 915 \text{ cm}^{-1}$)
Außersphärischer Komplex
(elektrostatisch
gebunden)



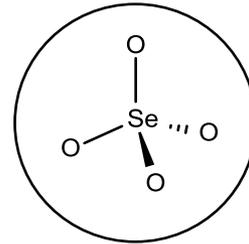
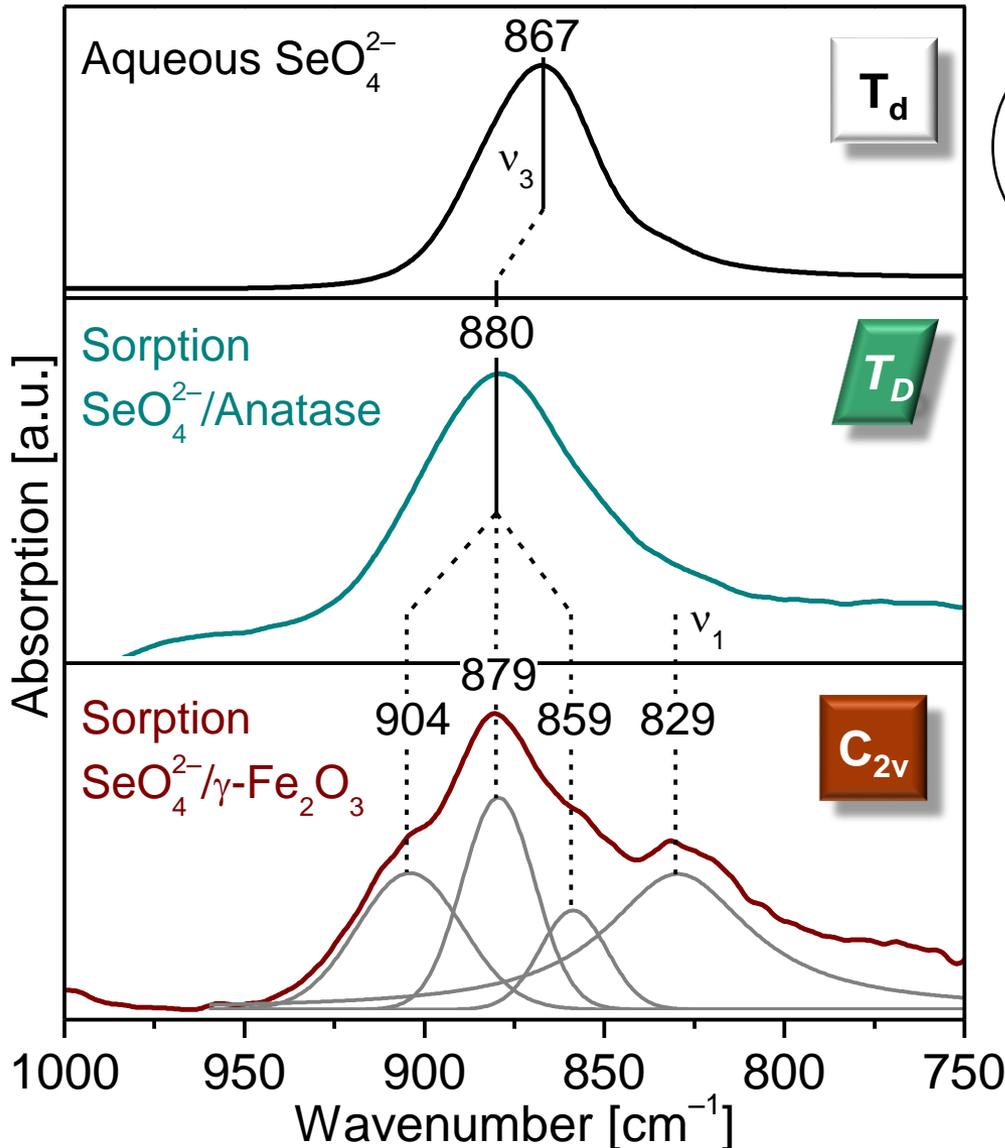
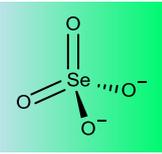
Identifizierung der $\nu_3(\text{UO}_2)$ bei
 908 cm^{-1} als

- **Mix zweier Spezies**

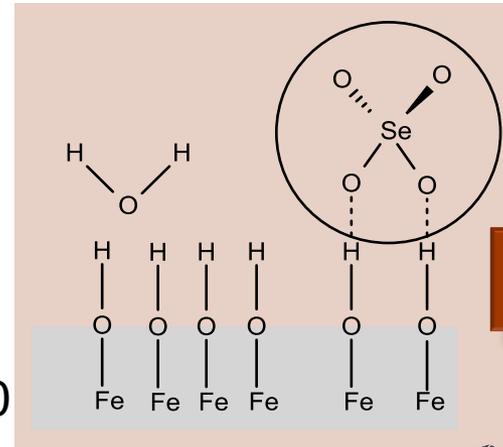
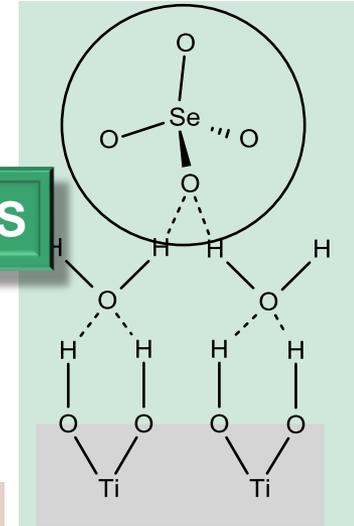


Müller, K. et al. (2012) *Geochim. Cosmochim. Acta* **76**, 191-205.

Außersphärische Se(VI)-Sorption



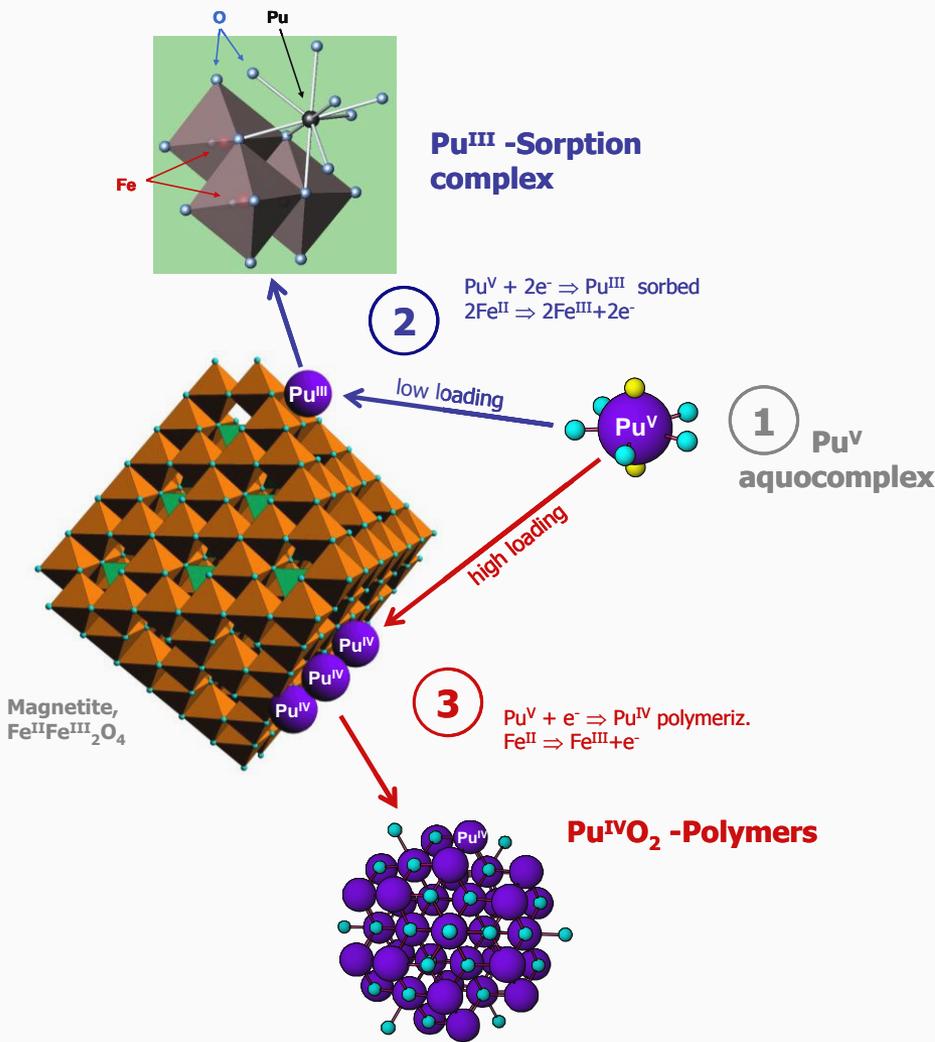
Extended OS



"Classical" OS

Jordan, N. et al. (2011) *Geochim. Cosmochim. Acta* **75**, 1519-1530.
 Jordan, N. et al. (2013) *Geochim. Cosmochim. Acta* **103**, 63-75.

Plutonium: Wie reagiert es mit korrodiertem Container-Material?



- Korrosion von Behältern im Endlager
- Rückhaltung durch Ww. der Korrosionsprodukte mit Kernmaterial hier: Plutonium/Magnetit (Fe^{II}Fe^{III}₂O₄)
- Beladung an der Magnetit-Oberfläche
 - niedrig (1),(2):
Reduktion an der Oberfläche mobile Aquo-Komplexe von Pu^V zu Pu^{III} Bindung an der Oberfläche
 - höher (3):
Bildung von Pu^{IV}O₂-Polymeren Ablösung von Oberfläche, erhöhte Mobilität von Pu möglich
- Für Sicherheitsnachweis aufgeklärt

R. Kirsch et al., Environ. Sci. Technol. 45, 7267–7274 (2011)
gemeinsames Projekt mit der Universität Grenoble

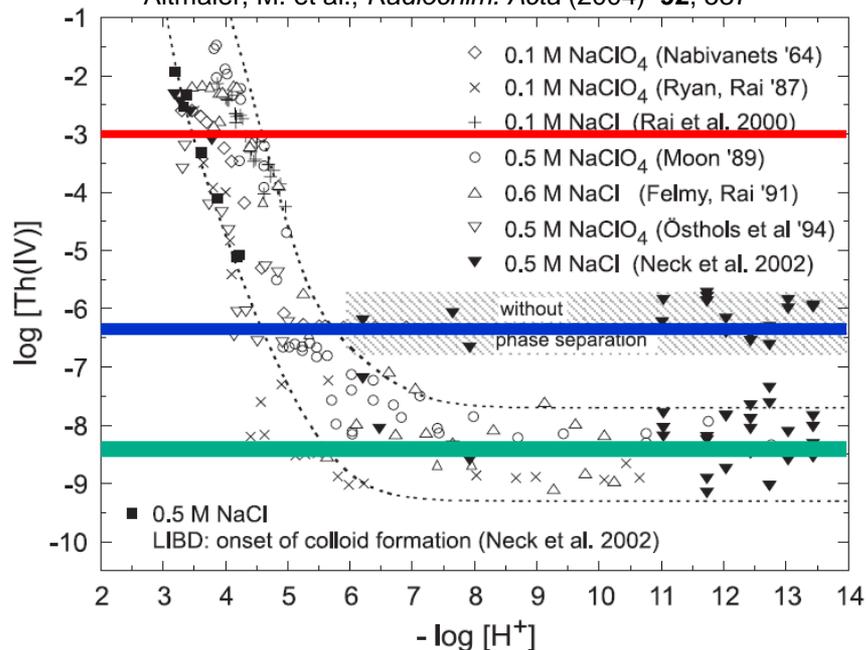
Kolloide können Actinide(IV) mobilisieren

Nah- und Fernfeld des Endlagers:

- pH von 6 bis 13
- „natürliche“ Pseudo-Kolloide
- Silikate reichlich vorhanden

Ideales Werkzeug:
Photon Correlation Spectroscopy

Altmaier, M. et al.; *Radiochim. Acta* (2004) **92**, 537

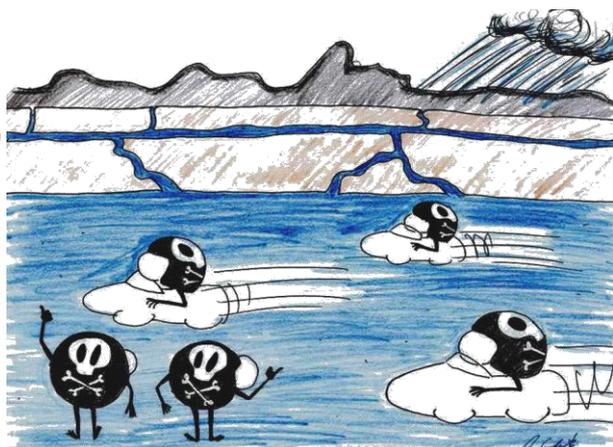


- Thermodynamische Löslichkeit: 10^{-8} M
- Th(IV)-OH Kolloide: 10^{-6} M
- Th(IV)-Silikat Kolloide: 10^{-3} M

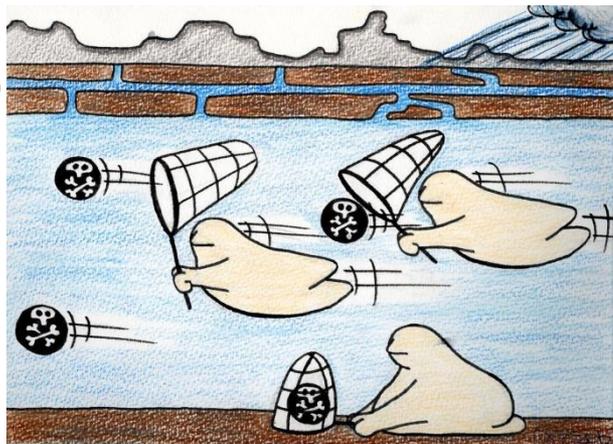
Gegenwärtige Migrations-Szenarien sind vielleicht zu optimistisch !?

U-Si Kolloide in geschlossenen Küvetten sind bereits über 1200 Tage stabil ! Ähnliche Beobachtungen für Th(IV) und Np(IV)

Mobilisierung



Immobilisierung



Rückhaltung von Actiniden durch Biofilme in Granit-Klüften

Wirtsgestein Granit: wasserführende Störungszonen mit Biofilm-Aufwuchs

Untergrundlabor Äspö (Schweden): Biofilme vorrangig aus *Gallionella ferruginea*

→ Experimente zur Rückhaltung von U(VI) und Np(V)

Biofilm Trockenmasse
nach dem Experiment mit U(VI)
[µg/g]

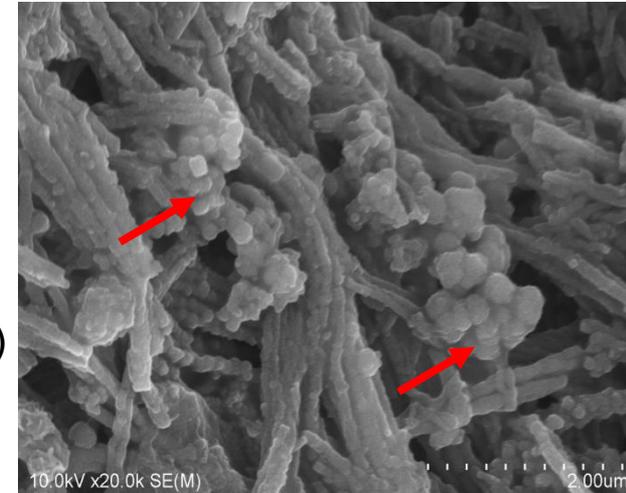
Na	1,17E+04
Mg	4,10E+04
Al	9,45E+01
Si	1,01E+03
P	4,01E+03
K	7,71E+02
Ca	2,06E+04
Fe	3,76E+05
Co	2,29E-01
Ni	3,54E+00
Cu	2,34E+00
As	<5
Br	1,55E+02
Sr	6,19E+02
Sn	4,07E-01
Ba	5,74E+02
Pb	4,24E-01
U	5,00E+02

Ausfällungen von Fe-Mineralen sind abhängig von:

- Gesamtmenge an gelöstem Fe(II)
- Verfügbarkeit von Bindungsplätzen (z.B. Carbonat- / Phosphatgruppen)

Beachtliche Aufnahme von U und Np in Biofilmen bei:

- hohem Anteil an Fe-Ausfällungen (70 %)
- neutralen pH



Aufnahme von Uran (**85%**) und Neptunium (**95%**) durch Biofilme (dominiert von *Gallionella ferruginea*).

Extrem salzresistente Mikroben – erstmalig in Salzsümpfen von ASSE II nachgewiesen

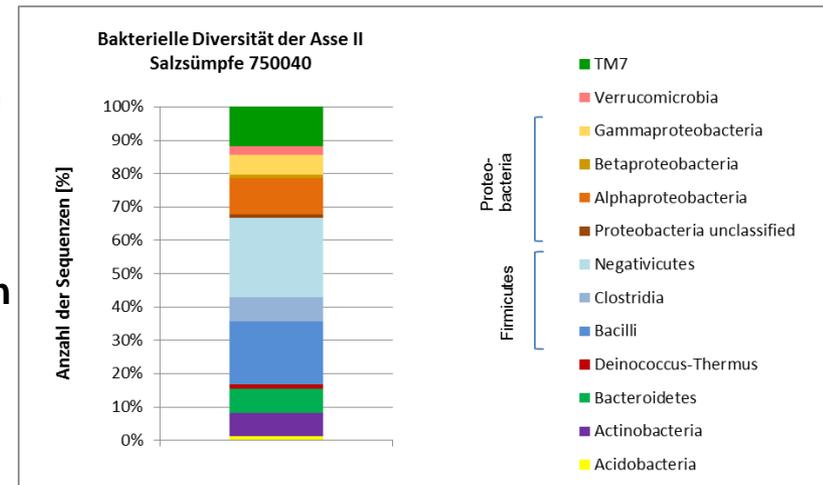
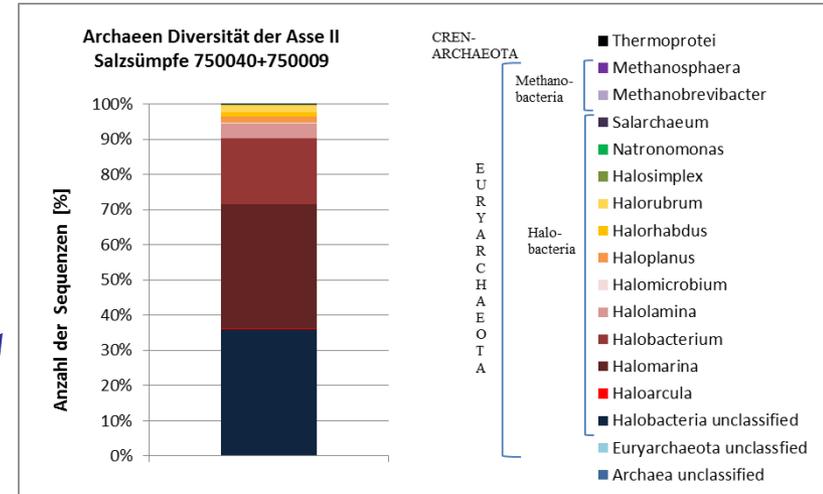
ASSE II, Deutschland

- extreme Bedingungen (in 750m Tiefe), z.B. hoher Salzgehalt, niedriger pH (4,7), hohe Temperaturen (35°C)



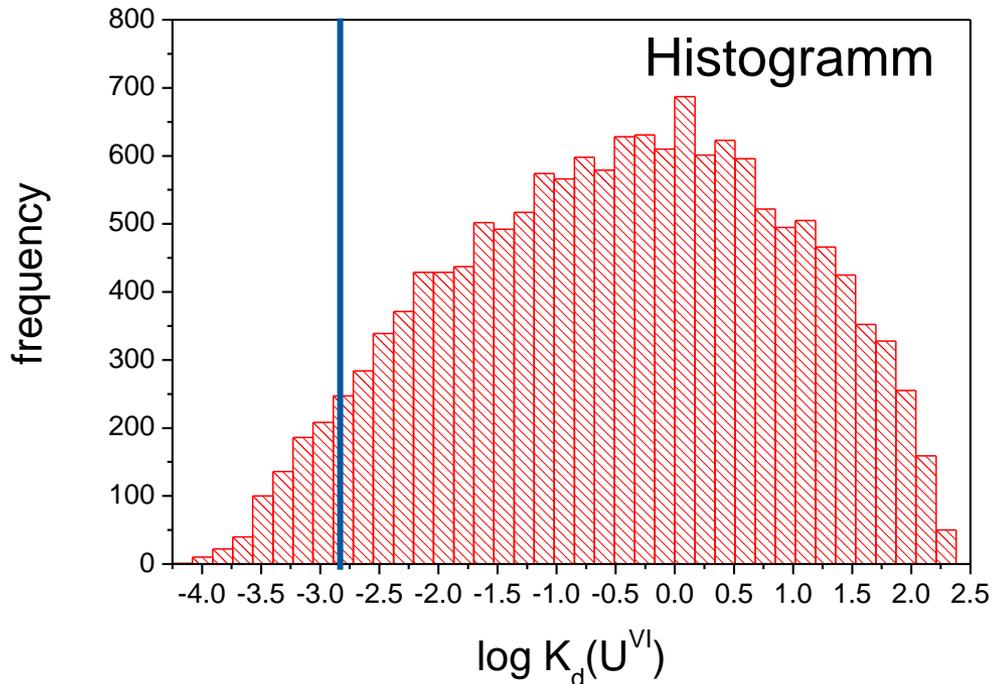
- **Methoden:**
DNA-Extraktion, 16S rDNA PCR, Pyrosequenzierung
- **Ergebnisse:**
Besiedlung durch salzresistente **Archaeen und Bakterien**

Halophile Archaeen (*Halobacteria*) dominieren
Wie beeinflussen diese Mikroben die Mobilität der aus den gelagerten Fässern freigesetzten radioaktiven Elemente?



Sorption von UO_2^{2+} : Sensitivität & Unsicherheit

15.000 berechnete Verteilungskoeffizienten K_d ($\log K_d$ in m^3/kg) für UO_2^{2+} auf Basis eines Latin-Hypercube Sampling



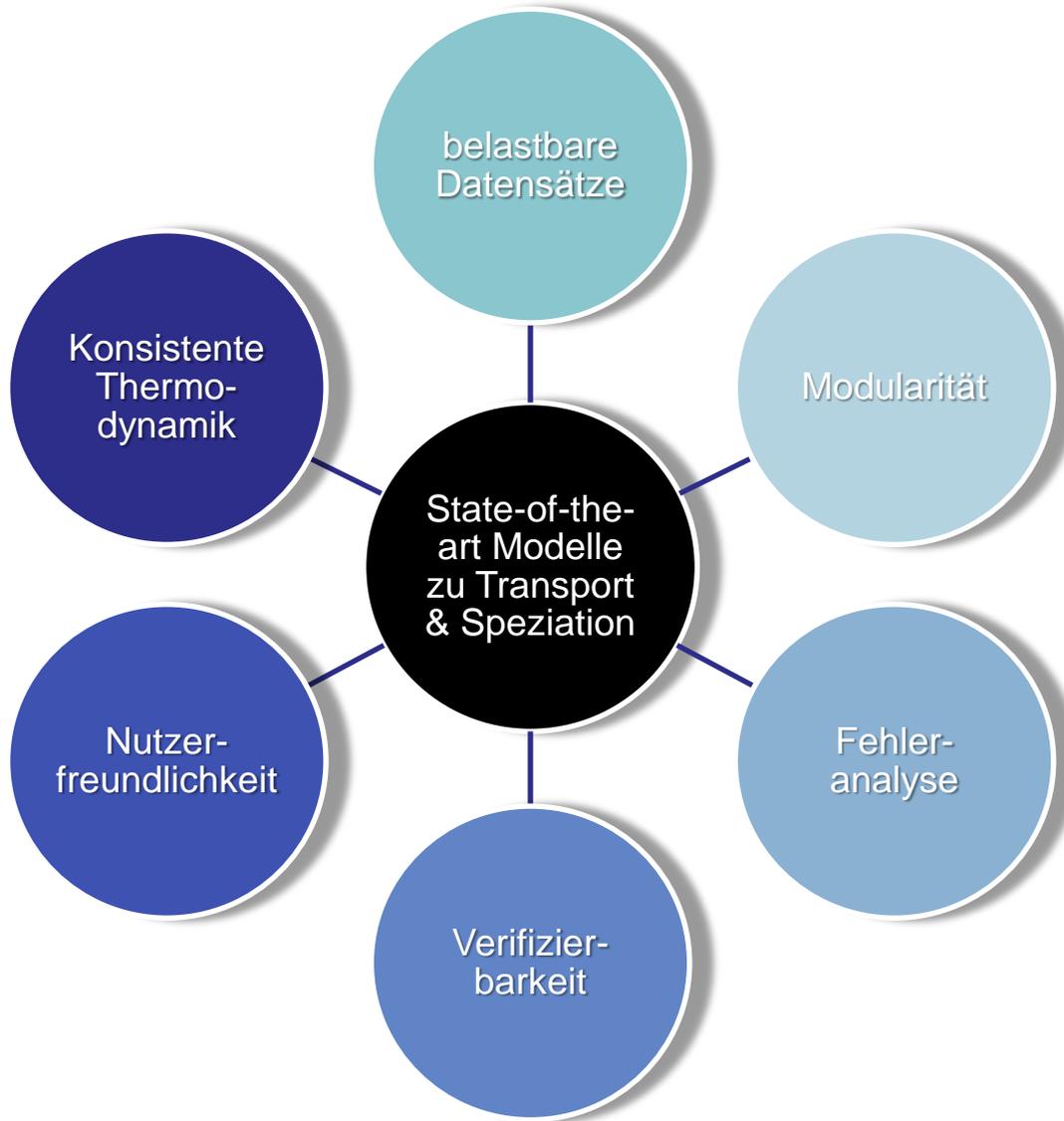
E_i	Sensitivitätsindex	Rang
[DIC]	0.665	1
[Ca]	0.225	2
IS	0.194	3
pH	0.156	4
[U]	0.004	5

Mittelwert: -0.4
Minimum: -4.1
Maximum: 2.3

2σ : 1.7
Bisher [1]: -2.7

[1] Suter, D. et al. (1998). Proceedings DisTec 98.

Prognosen der Schadstoffausbreitung



Ziele:

- Höhere Genauigkeit der Vorhersagen
 - Überprüfbarkeit
- bessere Akzeptanz in der Öffentlichkeit

Dank

- Mitarbeiter und Kollegen:

- Horst Geckeis, KIT-INE, Karlsruhe
- Helge Moog, GRS, Braunschweig
- Gert Bernhard
- Vinzenz Brendler
- Andrea Cherkouk
- Evelyn Krawczyk-Bärsch
- Katharina Müller
- Susanne Sachs
- Andreas Scheinost
- Harald Zänker

} HZDR-IRE

- Vielen Dank für die Aufmerksamkeit !!!