

Motivation

Annahmen im Rahmen von Sicherheitsanalysen gingen teilweise davon aus, dass die Radionuklide ^{14}C , ^{79}Se , ^{129}I , ^{36}Cl und ^{99}Tc sowie ^{137}Cs im Nahfeld eines Endlagers für radioaktive Abfälle nicht zurückgehalten werden, weil die genannten Elemente in wässriger Lösung überwiegend anionisch vorliegen und meist leicht lösliche Festphasen bilden. Entsprechend gelten sie in vielen Langzeitsicherheitsrechnungen für Endlager für hochradioaktive Abfälle in Salz- und Tonformationen als Dosis bestimmend.

Im Projekt VESPA sollte untersucht werden, wie sich diese Ungewissheiten durch geochemische Charakterisierung von Rückhalte Mechanismen abbauen lassen.

Das Projekt VESPA nahm Bezug auf folgende Schwerpunkte des Themenbereichs „Geologische Barriere“ und „Geochemisch-technische Barriere“ im Förderkonzept des BMWi (2007-2010):

- Untersuchungen und Modellierung der Radionuklidrückhaltung unter Berücksichtigung von chemischen und mikrobiologischen Prozessen
- Untersuchung der chemischen, physikalischen und mikrobiologischen Effekte und Prozesse im Nahfeld mit Auswirkung auf die Mobilität von Radionukliden und Entwicklung von Modellen zur Beschreibung der ablaufenden Prozesse in Steinsalz und Tonstein
- Absicherung und Erweiterung der thermodynamischen Datenbasis für Actinide und Spaltprodukte unter Nahfeldbedingungen

Forschung zur Entsorgung radioaktiver Abfälle

Kontakt

Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, Bereich Endlagersicherheitsforschung, Braunschweig, Dr. Barbara Bischofer, barbara.bischofer@grs.de

Projektpartner

- Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, Bereich Endlagersicherheitsforschung, Braunschweig
- Forschungszentrum Jülich (FZJ), Institut für Energie- und Klimaforschung (IEK-6), Jülich
- Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf e. V. (HZDR), Institut für Ressourcenökologie (IRE), Dresden
- Karlsruher Institut für Technologie (KIT), Institut für Nukleare Entsorgung (INE), Karlsruhe

Abschlussbericht

www.ptka.kit.edu/downloads/ptka-wte-e/Abschlussberichte-E-Vorhaben.htm



Betreut vom



PTKA
Projekträger Karlsruhe

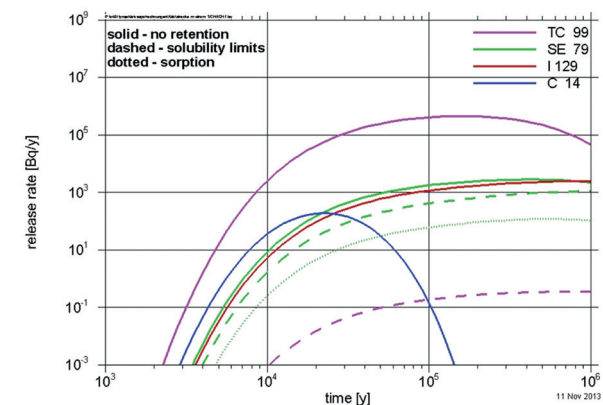
Karlsruher Institut für Technologie

Die Forschungsarbeiten wurden in den Vorhaben mit den Förderkennzeichen 02E10770, 02E10780, 02E10790, 02E10800 im Zeitraum 2010-2014 durchgeführt.

Verantwortlich für den Inhalt, Bilder und Bildrechte sind die Autoren bzw. die ausführenden Forschungsstellen. PTKA übernimmt keine Gewähr insbesondere für die Richtigkeit, Genauigkeit und Vollständigkeit der Angaben sowie die Beachtung privater Rechte Dritter.
PTKA, 02/2018

Projekt VESPA

Verhalten langlebiger Spalt- und Aktivierungsprodukte im Nahfeld eines Endlagers und Möglichkeiten ihrer Rückhaltung



Durchgeführt von:



Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses des Deutschen Bundestages

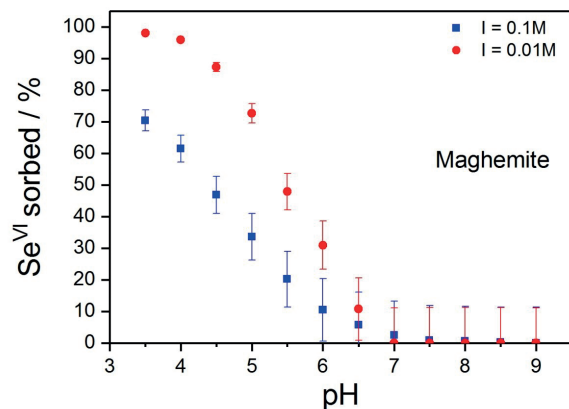
Projekt VESPA

Im Verbundprojekt VESPA wurden Untersuchungen durchgeführt, die für eine quantitative Beschreibung der Mobilisierung, des Transports und der Rückhaltung der Radionuklide ^{14}C , ^{79}Se , ^{129}I , ^{36}Cl und ^{99}Tc sowie ^{137}Cs auf dem Wasserpfad relevant sind. Hierzu gehörten Arbeiten zur:

- Identifizierung schwerlöslicher Festphasen und deren Löslichkeit, insbesondere von niedrigeren Oxidationsstufen der genannten Elemente,
- Charakterisierung der Sorption an Festphasen, die im Nahfeld wahrscheinlich auftreten
- die Bestimmung thermodynamischer Daten zur Modellierung der Rückhaltung

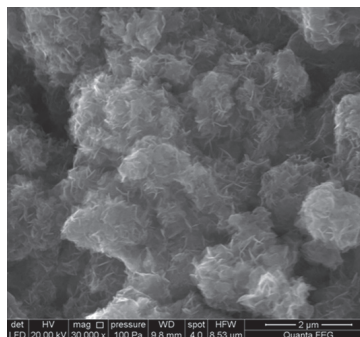
Hierfür wurden geochemische Daten für die o. g. Stoffe zusammengestellt und durch experimentelle Arbeiten ergänzt. Die Untersuchungen konzentrierten sich auf die Randbedingungen in den Wirtsgesteinen Salz, Granit und Ton im Temperaturbereich $25^\circ\text{C} - 90^\circ\text{C}$.

Die nachfolgende Abbildung zeigt die Sorption von Selenat auf dem Eisenoxidmineral Maghemit in Abhängigkeit des pH-Wertes in NaCl-Lösungen unterschiedlicher Konzentration.



Ergebnisse

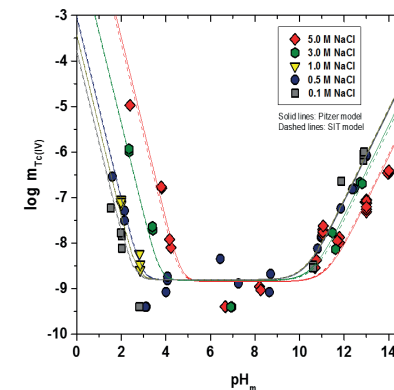
Das Stabilitätsfeld des Tc(IV) konnte genauer abgegrenzt und Aussagen zur Redoxkinetik abgeleitet werden. Zudem wurde ein experimentell abgesicherter Satz thermodynamischer Parameter (Löslichkeitsprodukt, Hydrolysekonstanten, Ionenwechselwirkungsparameter) für Tc(IV) entwickelt, der in die Datenbasis THEREDA implementiert werden soll. Ähnliche Datensätze wurden für Selenat, Cäsium und Iodid für Temperaturen bis 90°C erstellt. Für die Sorption und den Einbau von Tc(VII) und Tc(IV) an eisenhaltigen Festphasen liegt nun ein verbessertes Prozessverständnis vor. Spektroskopisch charakterisiert wurde auch die Sorption von Selenit an Calcit und an Eisenoxidphasen. Beim Kontakt von Selenit mit Pyrit konnte eine Reduktion zu sehr schwer löslichen Eisen-selenit-Mischphasen gezeigt werden. Für Selenat wurde nur eine schwache Sorption an Eisenoxiden beobachtet. Bei gemischten Doppelhydroxidphasen (LDH) wurde eine Zurückhaltung von Anionen durch Ionenaustausch festgestellt. Sie bilden sich bei der Korrosion von Eisen oder in Zementbaustoffen und können die Migration von Selenit, Iodid oder Pertechnetat erheblich verlangsamen. Die folgende Abbildung zeigt die Morphologie einer eisenhaltigen Doppelhydroxidphase im Rasterelektronenmikroskop.



Auf Basis der Arbeiten wurden neue Löslichkeitsgrenzen und Sorptionskoeffizienten abgeleitet. Ihre Berücksichtigung führt bei Langzeitsicherheitsanalysen für ein Modell-Endlager zu einer Senkung des Radionuklidaustrags um drei bis fünf Größenordnungen.

Was folgt daraus?

Die Arbeiten in VESPA weisen auf die herausragende Bedeutung der Geochemie für die Einschätzung von Rückhaltungsprozessen von Radionukliden in einem Endlager für radioaktive Abfälle hin. Durch gezielte experimentelle Studien konnte sowohl ein grundlegend verbessertes Prozessverständnis des Verhaltens der langlebigen Spalt- und Aktivierungsprodukte ^{14}C , ^{79}Se , ^{99}Tc , ^{129}I und ^{137}Cs in endlagerrelevanten Systemen gewonnen als auch grundlegende standortunabhängige thermodynamische Daten und Modelle abgeleitet werden. Sie werden im Rahmen integraler geochemischer Modellrechnungen in Zukunft die Analyse verschiedener Endlagerkonzepte und dazugehöriger Szenarien auf wesentlich verbessertem Niveau erlauben. Die folgende Grafik zeigt die Löslichkeit von Tc(IV) in Abhängigkeit von der H^+ - und der NaCl-Konzentration.



Die Abbildung auf dem Deckblatt zeigt u.a. den berechneten Austrag für ^{99}Tc und ^{79}Se aus einem generischen Endlager. Er fällt z.T. um Größenordnungen geringer aus, wenn die in diesem Vorhaben neu bestimmten Löslichkeitsgrenzen und Sorptionskoeffizienten berücksichtigt werden. Für ^{129}I und ^{14}C wurden noch keine Rückhalteeffekte identifiziert.

Im 2017 gestarteten Nachfolgeprojekt VESPA II werden noch offene Fragestellungen zur Rückhaltung der oben genannten Radionuklide betrachtet.