



BUNDESGESELLSCHAFT  
FÜR ENDLAGERUNG

# Aufruf zu Forschungsbeiträgen

## Parameter der Freisetzung, Sorption und Löslichkeit (Parfrei)

BGE-Forschungsauftragsnummer STAFuE-22-03-js

Stand 08.12.2022

Rückfragen bitte ausschließlich per E-Mail an [forschungsauftraege@bge.de](mailto:forschungsauftraege@bge.de)

## **Inhaltsverzeichnis**

<b>Inhaltsverzeichnis</b>	<b>2</b>
<b>Abkürzungsverzeichnis</b>	<b>3</b>
<b>1 Allgemeines</b>	<b>4</b>
<b>2 Veranlassung</b>	<b>5</b>
<b>3 Leistungsinhalt</b>	<b>6</b>
3.1 AP 1: Hydrochemische Milieus in den Teilgebieten	7
3.2 AP 2: Freisetzung	7
3.3 AP 3: Lösung und Fällung	7
3.4 AP 4: Sorption	8
3.5 Zeitlicher Ablauf	8
<b>4 Tabelle der Nuklide aus dem VSG-Schema</b>	<b>9</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>10</b>
<b>Anzahl der Blätter dieses Dokumentes</b>	<b>11</b>

## Abkürzungsverzeichnis

<b>AP</b>	Arbeitspaket(e)
<b>AtG</b>	Atomgesetz
<b>BASE</b>	Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung.
<b>BGE</b>	Bundesgesellschaft für Endlagerung mbH
<b>BMU</b>	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit; ab12/2021: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz (BMUV)
<b>EndISiAnfV</b>	Endlagersicherheitsanforderungsverordnung
<b>EndISiUntV</b>	Endlagersicherheitsuntersuchungsverordnung
<b>IRF</b>	<i>instant release fraction</i> ; zu deutsch: instantan freigesetzter Anteil der Radionuklide
<b>rvSU</b>	repräsentative vorläufige Sicherheitsuntersuchung(en)
<b>StandAG</b>	Standortauswahlgesetz
<b>VSG</b>	Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben
<b>vsu</b>	vorläufige Sicherheitsuntersuchung(en)

## 1 Allgemeines

Am 21. September 2016 wurde die Bundesgesellschaft für Endlagerung mbH (BGE) im Geschäftsbereich des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit (BMU) auf Basis des Gesetzes zur Neuordnung der Organisationsstruktur im Bereich der Endlagerung aus dem Juli 2016 gegründet.

Die Übertragung der Wahrnehmung der Aufgaben des Bundes nach § 9a Abs. 3 S. 1 des Atomgesetzes (AtG) auf die BGE erfolgte gemäß § 9a Abs. 3 S. 2 AtG am 25.04.2017. Damit ist die BGE Vorhabenträgerin für das Standortauswahlverfahren nach § 3 Abs. 1 des Standortauswahlgesetzes (StandAG). Am 5. September 2017 erfolgte der offizielle Start des Standortauswahlverfahrens in Berlin.

Das Standortauswahlverfahren gemäß StandAG ist ein iteratives Verfahren, welches mit Festlegung eines Standortes für ein Endlager für hochradioaktive Abfälle abgeschlossen werden soll. Gemäß § 1 Abs. 2 StandAG soll der Standort mit der bestmöglichen Sicherheit als Standort für ein Endlager für hochradioaktive Abfälle ausgewählt werden. § 1 Abs. 2 StandAG [...] „Der Standort mit der bestmöglichen Sicherheit ist der Standort, der im Zuge eines vergleichenden Verfahrens aus den in der jeweiligen Phase nach den hierfür maßgeblichen Anforderungen dieses Gesetzes geeigneten Standorten bestimmt wird und die bestmögliche Sicherheit für den dauerhaften Schutz von Mensch und Umwelt vor ionisierender Strahlung und sonstigen schädlichen Wirkungen dieser Abfälle für einen Zeitraum von einer Million Jahren gewährleistet.“ [...].

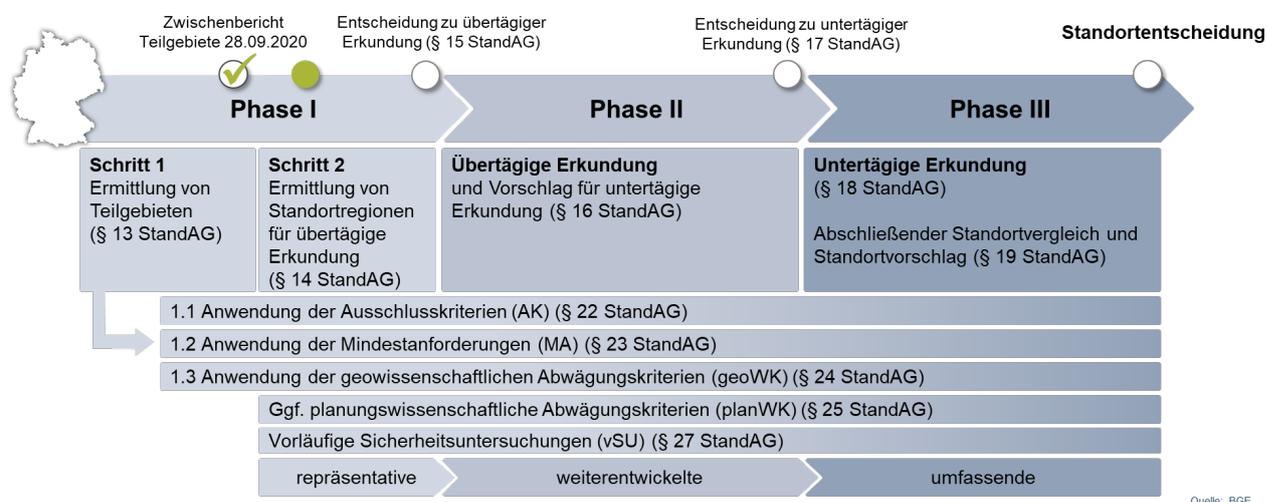


Abbildung 1: Schematischer Ablauf des Standortauswahlverfahrens

Zu Beginn wurde von einer „weißen Landkarte“ Deutschlands ausgegangen. Die Standortauswahl begann im Schritt 1 der Phase I mit der Ermittlung von Teilgebieten (§ 13 StandAG), welche mit der Veröffentlichung des Zwischenberichts Teilgebiete am 28.09.2020 (BGE 2020g) und der Ausweisung von 90 Teilgebieten abgeschlossen wurde. Im Schritt 2 der Phase I ermittelt die BGE Standortregionen für die übertägige Erkundung (§ 14 StandAG). Die BGE schlägt dem Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung (BASE) Standortregionen nebst standortbezogener Erkundungsprogramme zur übertägigen Erkundung vor. Mit der Ermittlung von Standortregionen werden erstmals vorläufige Sicherheitsuntersuchungen (vSU) im Rahmen des

Standortauswahlverfahrens durchgeführt. Diese werden im Schritt 2 der Phase I (§ 14 StandAG) des Standortauswahlverfahrens in Form von repräsentativen vorläufigen Sicherheitsuntersuchungen (rvSU) durchgeführt. In Phase II (§ 16 StandAG) werden auf Basis der gesetzlich festgelegten Standortregionen übertägige Erkundungen durchgeführt und Vorschläge für die untertägige Erkundung von Standorten an das BASE übermittelt. In Phase III (§ 18 StandAG) werden die zuvor gesetzlich festgelegten Standorte untertägig erkundet und ein Standortvorschlag an das BASE übermittelt. Die vSU finden sich in diesem gestuften, iterativen Verfahren dreimal wieder und werden erstmals im Rahmen von § 14 StandAG in Form der rvSU durchgeführt. Mit steigenden Kenntnissen werden im Rahmen von § 16 StandAG weiterentwickelte und im Rahmen von § 18 StandAG umfassende vSU durchgeführt.

Nach § 27 Abs. 1 StandAG dienen die vSU zur Bewertung, inwieweit der sichere Einschluss der radioaktiven Abfälle unter Ausnutzung der geologischen Standortgegebenheiten erwartet werden kann. Dabei sind die Sicherheitsanforderungen nach § 26 StandAG sowie der Endlagersicherheitsanforderungsverordnung (EndlSiAnfV) zugrunde zu legen und die Anforderungen an die Durchführung der Sicherheitsuntersuchungen nach Endlagersicherheitsuntersuchungsverordnung (EndlSiUntV) zu berücksichtigen.

Zentraler Bestandteil dieser vSU ist eine umfangreiche Analyse des Endlagersystems (§ 7 EndlSiUntV), die unter anderem das Verhalten des Endlagersystems im Bewertungszeitraum von einer Million Jahren analysiert (Langzeitsicherheitsanalyse, § 9 EndlSiUntV). Aufgabe ist es das Verhalten des Endlagersystems zu betrachten und entsprechend der darauf einwirkenden Entwicklungen im Hinblick auf den sicheren Einschluss (Integrität und Robustheit) zu bewerten.

Von besonderer Bedeutung sind hier die Kriterien des Massen- und Stoffmengenaustrags (§ 4 EndlSiAnfV) bzw. der Geringfügigkeit der Exposition durch aus dem Endlager entweichende Radionuklide gegenüber der natürlichen Strahlenbelastung (§ 7 EndlSiAnfV). Um festzustellen, ob diese Kriterien eingehalten werden können, sind detaillierte Transportmodelle notwendig, die den Transport von Radionukliden in und um ein mögliches Endlager abbilden.

## **2       Veranlassung**

Eine besondere Herausforderung bei der Transportmodellierung im Rahmen der rvSU ist die Modellierung der Prozesse in und an den Endlagerbehältern sowie in deren unmittelbarer Umgebung bis an den Rand des Wirtsgesteins (im Folgenden als Nahfeld bezeichnet). Neben Prozessen wie Advektion, Diffusion, Sorption und radioaktivem Zerfall, die auch in der geologischen Barriere (im Folgenden als Fernfeld bezeichnet) eine Rolle spielen, sind hier insbesondere die Korrosion/Zersetzung von Abfallformen sowie die Lösung und Fällung von Radionukliden relevant. Einige betrachtete Radionuklide sind je nach hydrochemischem Milieu leicht löslich, was den Transport begünstigen kann und somit sicherheitsrelevant ist.

Im Rahmen der gegenwärtigen Phase I des Standortauswahlverfahrens soll die Auflösung der Abfallformen und damit die Freigabe von Radionukliden aus den Behältern durch konstante Auflösungsraten (etwa der Brennstoffmatrix) modelliert werden. Eine Ausnahme hiervon stellen die verglasten Abfälle dar, für die ein einfaches, zeitabhängiges Modell mit variablen Auflösungsraten ver-

wendet wird (Nagra 2002). Für die Prozesse Lösung bzw. Fällung sollen temperaturabhängig parametrisierte Löslichkeitsgrenzen verwendet werden. Sorption wird durch den  $K_D$ -Wert parametrisiert (siehe z. B. McKinley & Scholtis 1992 oder Schröder et al. 2017)

Eine detaillierte Kenntnis der jeweiligen Materialparameter für diese Prozesse ist entscheidend, um die Migration von Radionukliden möglichst realistisch zu modellieren.

### **3 Leistungsinhalt**

Mit diesem Forschungsauftrag erbitten wir Projektvorschläge, welche mindestens, aber nicht ausschließlich, die im Folgenden beschriebenen Leistungsinhalte berücksichtigen sollen, inkl. Terminplanung und Kostenaufstellung.

Im Rahmen des FuE-Vorhabens sollen Materialparameter zusammengestellt und entwickelt werden, insbesondere

- Parameter, die die Freisetzung von Radionukliden aus den Abfallformen bestimmen, wie etwa die Auflösungsrate der Brennstoffmatrix, der Hüllrohre usw.
- Parameter, die die Löslichkeit der relevanten Radionuklide im Nahfeld charakterisieren, insbesondere Löslichkeitsgrenzen, differenziert nach hydrochemischem Milieu und ggf. Versatzmaterial
- Sorptionsparameter für das Nah- und Fernfeld, differenziert nach hydrochemischem Milieu

Die Bearbeitung von Sorptionsparameter, insbesondere auch für das Fernfeld, ergibt sich hier aus der Notwendigkeit eines möglichst konsistenten Vorgehens: Sorption und Lösung bzw. Fällung sind komplementäre Prozesse des Radionuklidtransportes sowohl im Fern- als auch im Nahfeld, deren gemeinsame Betrachtung für eine in sich stimmige Gesamtbetrachtung vorteilhaft ist.

Dabei sollen petrologische Unterschiede (im Wesentlichen Salz, Tongestein, Kristallin) berücksichtigt werden. Am Ende sollen Empfehlungen für die Wahl dieser Parameter vorgelegt werden, die sowohl die unterschiedlichen geologischen Rahmenbedingungen im Standortauswahlverfahren als auch unterschiedliche hydrochemische Milieus berücksichtigen, insbesondere die möglichen Porenwasserzusammensetzungen. Da es eine Vielzahl von Forschungsarbeiten sowohl in der deutschen als auch der internationalen Literatur gibt (z. B. Verbundprojekt VESPA, (GRS et al. 2016)), soll die Bearbeitung eine Literaturrecherche beinhalten. Insbesondere im Falle der Sorptionsparameter und der Löslichkeiten bietet sich außerdem eine numerische Modellierung an, falls neue Informationen erhoben werden müssen. Es sollen dabei die einschlägigen hydrochemischen Modellsysteme (z. B. GEM, PHREEQC) und Datenbanken (z. B. Pitzer, THEREDA, ThermoChimie) verwendet und entsprechend weiterentwickelt werden. Falls es zweckmäßig und notwendig ist, können auch neue, eigene Experimente/Versuche herangezogen werden.

Es müssen mindestens die in Larue et al. (2013) angegebenen Nuklide des vereinfachten Schemas der „Vorläufigen Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben“ (VSG) betrachtet werden, siehe auch Tabelle 1.

Im Folgenden werden die vier Arbeitspakete (AP) umrissen.

### 3.1 AP 1: Hydrochemische Milieus in den Teilgebieten

Grundlage für die weiteren Arbeiten sind Überlegungen dazu, wie die Porenwasserzusammensetzung in den Teilgebieten<sup>1</sup> im Hinblick auf die zu modellierenden Prozesse (Freisetzung, Sorption, Lösung/Fällung) charakterisiert werden kann.

Dazu sollen Parameter (wie pH-Wert, Salinität, CO<sup>2</sup>-Partialdruck, Ionenstärke, ...) und Parameterbandbreiten gewählt und geeignet begründet werden. Im Hinblick auf die verschiedenen Prozesse und Wirtsgesteine kann die gewählte Parametrisierung sich unterscheiden, wenn dies sinnvoll ist: Es ist etwa denkbar, dass für einen der Prozesse die Abhängigkeit von einem oder mehreren Parametern vernachlässigbar ist. Auf Konsistenz ist dabei zu achten. Eine geografische Eingrenzung der Parameterbandbreiten ist vorzunehmen, falls und soweit dies möglich ist. Weiterhin sollen bei der Auswahl der relevanten Parameter auch Anlage 9 und 10 des StandAG berücksichtigt werden, um die Ergebnisse des AP auch in diesem Zusammenhang nutzen zu können.

### 3.2 AP 2: Freisetzung

Für das Freisetzungsmodell, welches im engeren Sinne hier nur die Freisetzung aus den Endlagerbehältern meint, werden Parameterwerte für die Auflösungsrate der typischen Abfallformen benötigt:

- Brennstoffmatrix
- Hüllrohre
- Verglaste Abfälle

Abhängigkeiten vom Wirtsgestein oder dem hydrochemischen Milieu, insbesondere der Porenwasserzusammensetzung, sind zu berücksichtigen. Ebenfalls benötigt werden Werte für die instantan freigesetzten Radionuklide (*instant release fraction*, IRF).

Es wird davon ausgegangen, dass dieses AP insbesondere Literaturrecherche erfordert. Nach vier Monaten Laufzeit wird ein Zwischenbericht zu diesem AP gewünscht, um mit ersten Ergebnissen bereits arbeiten zu können. Der Zwischenbericht kann vorläufig sein, insofern er von Ergebnissen aus AP 1 abhängt.

### 3.3 AP 3: Lösung und Fällung

Für die Betrachtung der Lösung bzw. Fällung von Radionukliden werden Löslichkeitsgrenzen für das Nahfeld benötigt, differenziert nach hydrochemischen Milieus, insbesondere Porenwasserzusammensetzungen und, wenn sinnvoll, nach Wirtsgestein. Dazu müssen u. a. Annahmen für die verwendeten Versatzmaterialien getroffen werden. Es ist auf ein konsistentes Vorgehen im Hinblick auf die Sorptionsparameter (s. u.) zu achten. Im Ergebnis soll eine Tabelle entstehen, die die Löslichkeitsgrenzen für bestimmte Radionuklide in Abhängigkeit von Parametern der Porenwasserzusammensetzung angibt. Lösung und Fällung werden vor allem im Hinblick auf das Nahfeld betrachtet.

---

<sup>1</sup> <https://www.bge.de/de/endlagersuche/zwischenbericht-teilgebiete/>

### **3.4 AP 4: Sorption**

Sorptionsparameter sollen für die verschiedenen Tongesteine und im Rahmen des Standortauswahlverfahrens berücksichtigten kristallinen Wirtsgesteine ermittelt werden. Da diese Parameter von einer Reihe von chemischen Parametern (Randbedingungen) abhängen, wie z. B. der Ionenstärke oder dem pH-Wert, ist ein geeigneter Parameterraum abzudecken, vgl. etwa Bradbury et al. (2010) und Baeyens et al. (2014). Es sollen mögliche Porenwasserzusammensetzungen in den Teilgebieten abgedeckt werden sowie die zu erwartenden Gesteine bzw. Versatzmaterialien. Im Ergebnis soll eine Tabelle entstehen, die die Löslichkeitsgrenzen für bestimmte Radionuklide in Abhängigkeit von Parametern der Porenwasserzusammensetzung angibt. Sorption ist gleichermaßen im Hinblick auf Nah- und Fernfeld zu betrachten.

### **3.5 Zeitlicher Ablauf**

Der im Folgenden skizzierte zeitliche Ablauf ist ein Vorschlag seitens des Auftraggebers. Es kann in der Ausgestaltung des Projektantrags von diesem Vorschlag abgewichen werden, wenn dies begründet wird.

- AP 1 legt Grundlagen für die anderen AP und ist daher als erstes zu bearbeiten. Da vorläufige Ergebnisse aus der Literaturrecherche in AP 2 schnell benötigt werden, ist mit AP 2 ebenfalls zeitnah zu beginnen. AP 2 sollte idealerweise nicht später als nach 8 Monaten mit einem AP-Abschlussbericht beendet sein.
- Die AP 3 und AP 4 starten nach Abschluss, oder leicht ineinander verzahnt, von AP 2 und sollten idealerweise nicht länger als 14 Monate Bearbeitungszeit erfordern. Die Bearbeitung dieser beiden AP kann parallel erfolgen. Die Ergebnisse müssen entsprechend in Berichtsform verschriftlicht werden, im Falle von Modellrechnungen sind zusätzlich dazu andere Formate notwendig. Dies ist individuell mit dem Auftraggeber abzustimmen.

#### 4 Tabelle der Nuklide aus dem VSG-Schema

Tabelle 1: Nuklide des vereinfachten Nuklidschemas nach VSG (Larue et al. 2013)

Spalt- und Aktivierungsprodukte		Thorium-Reihe	Neptunium-Reihe	Uran-Reihe	Actinium-Reihe
Be-10	Mo-93	Cm-248	Cm-245	Cm-246	Cm-247
C-14	Tc-99	Pu-244	Am-241	Pu-242	Am-243
Cl-36	Pd-107	Pu-240	Np-237	U-238	Pu-239
Ca-41	Ag-108m	U-236	U-233	Am-242m	U-235
Ni-59	Sn-126	Th-232	Th-229	Pu-238	Pa-231
Ni-63	I-129	U-232		U-234	Ac-227
Se-79	Cs-135			Th-230	
Rb-87	Cs-137			Ra-226	
Sr-90	Sm-147				
Zr-93	Sm-151				
Nb-94	Ho-166m				

## Literaturverzeichnis

- AtG: Atomgesetz in der Fassung der Bekanntmachung vom 15. Juli 1985 (BGBl. I S. 1565), das zuletzt durch die Bekanntmachung vom 3. Januar 2022 (BGBl. I S. 14) geändert worden ist
- Baeyens, B., Thoenen, T., Bradbury, M. H. & Marques Fernandes, M. (2014): *Sorption Data Bases for Argillaceous Rocks and Bentonite for the Provisional Safety Analyses for SGT-E2*. 2014. Technical Report 12-04. Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (Nagra). Wettingen, Switzerland
- BGE (2020g): *Zwischenbericht Teilgebiete gemäß § 13 StandAG*. Peine: Bundesgesellschaft für Endlagerung mbH. [https://www.bge.de/fileadmin/user\\_upload/Standortsuche/Wesentliche\\_Unterlagen/Zwischenbericht\\_Teilgebiete/Zwischenbericht\\_Teilgebiete\\_barrierefrei.pdf](https://www.bge.de/fileadmin/user_upload/Standortsuche/Wesentliche_Unterlagen/Zwischenbericht_Teilgebiete/Zwischenbericht_Teilgebiete_barrierefrei.pdf)
- Bradbury, M. H., Baeyens, B. & Thoenen, T. (2010): *Sorption Data Bases for Generic Swiss Argillaceous Rock Systems*. 2010. NTB 09-03. Paul Scherrer Institut. Wettingen, Switzerland
- EndlSiAnfV: Endlagersicherheitsanforderungsverordnung vom 6. Oktober 2020 (BGBl. I S. 2094)
- EndlSiUntV: Endlagersicherheitsuntersuchungsverordnung vom 6. Oktober 2020 (BGBl. I S. 2094, 2103)
- GRS, FZJ, HZDR & KIT (2016): *VESPA - Behaviour of Long-Lived Fission and Activation Products in the Nearfield of a Nuclear Waste Repository and the Possibilities of their Retention*. Hg. v. Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH. 2016. GRS-374. GRS. online
- Larue, J., Balthes, B., Fischer, H., Frieling, G., Kock, I., Navarro, M. & Seher, H. (2013): *Radiologische Konsequenzenanalyse*. 2013. Bericht zum Arbeitspaket 10 - Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben. 9783939355656. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH. Köln
- McKinley, I. G. & Scholtis, A. (1992): *Compilation and comparison of radionuclide sorption databases used in recent performance assessments*. 1992. Nuclear Energy Agency of the OECD (NEA). Wettingen (Switzerland)
- Nagra (2002): *Models, Codes and Data for Safety Assessment*. 2002. Project Opalinus Clay - Demonstration of disposal feasibility for spent fuel, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level waste (Entsorgungsnachweis). Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle. Wettingen, Switzerland
- Schröder, T. J., Meeussen, J. C. L., Dijkstra, J. J., Bruggeman, C. & Maes, N. (2017): *Report on model representation of radionuclide sorption in Boom Clay*. Hg. v. NRG. 20.01.2017. Opera. OPERA-PU-NRG6121. Centrale Organisatie voor Radioactief Afval (Covra). Borsele
- StandAG: Standortauswahlgesetz vom 5. Mai 2017 (BGBl. I S. 1074), das zuletzt durch Artikel 1 des Gesetzes vom 7. Dezember 2020 (BGBl. I S. 2760) geändert worden ist

**Bundesgesellschaft für Endlagerung mbH**  
**Eschenstraße 55**  
**31224 Peine**  
**T +49 5171 43-0**  
**[poststelle@bge.de](mailto:poststelle@bge.de)**  
**[www.bge.de](http://www.bge.de)**