



**Forschungszentrum Karlsruhe**  
Technik und Umwelt

**Wissenschaftliche Berichte**  
FZKA-PTE Nr. 3

## **GEISHA**

**Gegenüberstellung von Endlager-  
konzepten in Salz und Hartgestein**

**R. Papp**

Projektträger des BMBF für Entsorgung

Mai 1999

**PTE**

**PROJEKTTRÄGERSCHAFT  
ENTSORGUNG**



**Forschungszentrum Karlsruhe**

Technik und Umwelt

Wissenschaftliche Berichte

FZKA-PTE Nr. 3

**GEISHA**

Gegenüberstellung von Endlagerkonzepten  
in Salz und Hartgestein

R. Papp  
Projekträger des BMBF für Entsorgung

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe  
1997



## **FZKA-PTE-Berichte**

Der vorliegende Band dient der aktuellen Unterrichtung der auf dem Gebiet der Entsorgung radioaktiver Abfälle und der untertägigen Ablagerung chemisch-toxischer Abfälle arbeitenden Institutionen und der zuständigen Behörden.

Verantwortlich für den Inhalt sind die Autoren. Das Forschungszentrum Karlsruhe GmbH übernimmt keine Gewähr insbesondere für die Richtigkeit, Genauigkeit und Vollständigkeit der Angaben sowie die Beachtung privater Rechte Dritter.

Druck und Verbreitung:

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH

Postfach 36 40, 76021 Karlsruhe

ISSN 1430-6751



## KURZFASSUNG

Der vorliegende Bericht faßt die wichtigsten Ergebnisse aus Studien zusammen, die im Zeitraum 1994 - 1996 auf Anregung von FZK-PTE erstellt und zum größten Teil vom Forschungszentrum Karlsruhe finanziert wurden. Ziel dieser Studien war es, ein Endlagerkonzept für Hartgestein, das die für Deutschland typischen Eigenschaften aufweist, zu entwerfen und den für Steinsalz vorliegenden Konzepten gegenüberzustellen. Es wurde ein Behälter zur Direkten Endlagerung von abgebrannten Brennelementen entworfen und dafür ein Endlager in Hartgestein inklusive Kernmaterialüberwachungskonzept vorgeschlagen.

Der Nachweis der Langzeitsicherheit wird bei der Endlagerung über die Funktionsfähigkeit der Barrieren erbracht, bei Hartgestein vor allem über diejenigen im Nahfeld. Daher lag der Schwerpunkt der Studien bei den Nahfeldbarrieren Endlagergebäude und Verfüllmaterial, insbesondere bei deren Rolle im Rahmen einer Gesamtdarstellung der Geochemie des Mehrbarrierensystems. Schließlich wurde die Leistungsfähigkeit bisheriger Langzeitsicherheitsanalysen für Salz und Hartgestein dargestellt und die Notwendigkeit von Verbesserungen auf dem Gebiet der Geochemie hervorgehoben.

In keinem der Beiträge, auf denen dieser Bericht beruht, sind Aspekte zu Tage getreten, die zu Zweifeln am Endlagermedium Salz Anlaß geben. Die frühe Entscheidung für Salz als Endlagermedium in Deutschland erscheint auch aus deren Blickwinkel vernünftig und nachvollziehbar.

## ABSTRACT

This report summarizes the essential results of studies which had been stimulated by FZK-PTE and carried out in the period 1994 - 1996, to a large extent financed by Forschungszentrum Karlsruhe. The goal of these studies was to a) draft spent fuel disposal in hard rock with properties typical for Germany and b) contrast it with existing disposal concepts for rock salt. A cask for direct disposal of spent fuel and a repository were conceptually designed including a safeguards concept for spent fuel in this repository.

Evidence of long-term safety is given through a performance assessment of the barriers, in hard rock mainly of those in the near-field. Therefore, these studies focused on the engineered barriers in the near-field, the disposal package and the buffer material, with special emphasis on their contribution to the geochemistry of the entire repository. Finally, it was shown what has been achieved so far in the field of long-term safety analyses of both hard rock and rock salt. In future, analyses can be improved if geochemical aspects will be dealt with in greater detail.

None of these studies on which this report is based leads one to be in doubt about rock salt as a suitable geological medium for a repository. The early German decision for rock salt is justifiable also from the point of view provided by these studies.



## Die Beiträge zu GEISHA lieferten:

Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe:

Bräuer, V., Randbedingungen Hartgestein in Deutschland

Bräuer, V., Standorterkundung

Wallner, M., Geotechnischer Sicherheitsnachweis

Deutsche Gesellschaft zum Bau und Betrieb von Endlagern:

Wahl, A., Gegenüberstellung von Endlagerkonzepten in Salz und Hartgestein

Raitz von Frenzt, R., Endlagersicherheit in der Betriebsphase

Forschungszentrum Jülich, Programmgruppe Technologiefolgenforschung:

Richter, B., Safeguards-Konzept für die Direkte Endlagerung abgebrannter

Brennelemente in Hartgestein

Forschungszentrum Karlsruhe, Institut für Nukleare Entsorgungstechnik:

Grambow, B., Klenze, R., Geochemische Aspekte der Endlagersicherheit

Forschungszentrum Karlsruhe, Projektträger Entsorgung:

Closs, K.-D., Kritikalitätsfragen bei der Direkten Endlagerung

Gesellschaft für Nuklear-Behälter:

Knopp, U., Endlagerbehälter für Hartgestein

Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit:

Noseck, U., Gegenüberstellung einiger Langzeitsicherheitsanalysen für Endlager in

Granit- und Salzformationen

NUKEM, FZK-INE:

Botzem, W., Luthardt, G., Smailos, E., Materialien für Endlagerbehälter

Technische Universität Bergakademie Freiberg, Institut für Bergbau:

Gruner, M., Sitz, P., Puffer- und Verfüllmaterialien im Nahfeld eines Endlagers für

hochradioaktive Abfälle

Der Autor dankt Frau K. Köhler für die sorgfältige Erstellung des Manuskripts.



# INHALTSVERZEICHNIS

	Seite
1 EINLEITUNG.....	1-1
2 ASPEKTE DER STANDORTERKUNDUNG.....	2-1
2.1 Eignung von Steinsalz und Hartgestein als Endlagermedium .....	2-1
2.2 Standortkriterien .....	2-3
2.3 Standorterkundung .....	2-7
2.3.1 Hartgestein allgemein .....	2-7
2.3.2 Hartgestein in Deutschland.....	2-10
2.3.3 Salzlagerstätten in Deutschland .....	2-14
2.4 Tiefengrundwässer und Laugen .....	2-16
2.4.1 Tiefengrundwässer.....	2-16
2.4.2 Lösungen in marinen Evaporiten .....	2-19
3 VERFÜLL- UND PUFFERMATERIAL IM NAHFELD .....	3-1
3.1 Geotechnische Barriere in Hartgestein.....	3-1
3.1.1 Anforderungen an das Verfüll- und Puffermaterial.....	3-2
3.1.1.1 Materialparameter erster Ordnung.....	3-3
3.1.1.2 Materialparameter zweiter Ordnung.....	3-5
3.1.2 Eigenschaften von Bentonit .....	3-7
3.1.3 Empfehlung für ein VP-Material bei GEISHA.....	3-12
3.2 Verfüllung bei Endlagerung im Salinar .....	3-13
4 ENDLAGERBEHÄLTER.....	4-1
4.1 Werkstoffe für Endlagerbehälter.....	4-1
4.1.1 Korrosionsbeständige metallische Werkstoffe.....	4-1
4.1.2 Korrosion zulassende Werkstoffe .....	4-3
4.2 Endlagerbehälter für Hartgestein.....	4-4
5 ENDLAGER .....	5-1
5.1 Endlager in Hartgestein .....	5-1
5.1.1 Planung des Grubengebäudes .....	5-1
5.1.2 Innerbetrieblicher Transport und Einlagerung .....	5-6
5.1.3 Sicherheit in der Betriebsphase .....	5-9
5.2 Endlager in Steinsalz.....	5-10
5.3 Kostenvergleich .....	5-12
5.4 Kernmaterialüberwachung .....	5-15
5.4.1 Safeguards-Konzept für Hartgestein.....	5-16
5.4.2 Safeguardsvergleich Granit-Salz .....	5-21
5.5 Kritikalität .....	5-21

6	<b>GEOTECHNISCHER SICHERHEITSNACHWEIS</b> .....	6-1
6.1	Geotechnischer Nachweis als Teil des Gesamtsicherheitsnachweises .....	6-1
6.2	Konzept des geotechnischen Sicherheitsnachweises .....	6-5
6.3.	Nachweise der geotechnischen Sicherheit .....	6-9
6.3.1	Einzelnachweise .....	6-9
6.3.2	Nachweiskriterien bzw. -indikatoren .....	6-10
6.4	Geotechnischer Nachweis bei Hartgestein und Salz im Vergleich .....	6-12
7	<b>GEGENÜBERSTELLUNG VON LANGZEITSICHERHEITSANALYSEN FÜR ENDLAGER IN GRANIT- UND SALZFORMATIONEN</b> .....	7-1
7.1	Einleitung .....	7-1
7.2	Beschreibung der Modellendlager .....	7-2
7.2.1	Modellendlager Projekt Gewähr .....	7-2
7.2.2	Modellendlager Kristallin-I .....	7-2
7.2.3	Modellendlager Project-90 .....	7-3
7.2.4	Modellendlager PAGIS .....	7-3
7.2.5	Modellendlager SAM .....	7-4
7.3	Szenarien .....	7-4
7.3.1	Szenarien Projekt Gewähr .....	7-4
7.3.2	Szenarien Kristallin-I .....	7-6
7.3.3	Szenarien Project-90 .....	7-7
7.3.4	Szenarien PAGIS .....	7-8
7.3.5	Szenarien SAM .....	7-10
7.4	Modelle und Parameter .....	7-11
7.4.1	Modelle und Parameter im Nahbereich .....	7-11
7.4.1.1	Nahbereich Projekt Gewähr .....	7-11
7.4.1.2	Nahbereich Kristallin-I .....	7-13
7.4.1.3	Nahbereich PAGIS .....	7-14
7.4.1.4	Nahbereich Project-90 .....	7-15
7.4.1.5	Nahbereich SAM .....	7-17
7.4.2	Modelle und Parameter im Fernfeld .....	7-19
7.4.2.1	Fernfeld Projekt Gewähr .....	7-19
7.4.2.2	Fernfeld Kristallin-I .....	7-20
7.4.2.3	Fernfeld PAGIS .....	7-21
7.4.2.4	Fernfeld Project-90 .....	7-21
7.4.2.5	Fernfeld SAM .....	7-22
7.4.3	Modelle und Parameter in der Biosphäre .....	7-23
7.5	Freisetzung aus dem Endlager .....	7-24
7.5.1	Endlager für HAW .....	7-24
7.5.2	Endlager mit abgebranntem Brennstoff .....	7-26
7.6	Dosisbelastung in der Biosphäre .....	7-28
7.7	Vergleichende Gegenüberstellung und Schlußfolgerung .....	7-29
7.7.1	Zusammenfassung für Projekt Gewähr, Kristallin-I und PAGIS .....	7-29
7.7.2	Zusammenfassung für Project-90 und SAM .....	7-32
7.7.3	Schlußfolgerung .....	7-35

8	GEOCHEMIE .....	8-1
8.1	Einleitung .....	8-1
8.2	Grundwasserzusammensetzung und geochemische Bedingungen in der ungestörten Gesteinsformation.....	8-5
8.2.1	Grundwasserzusammensetzung in Granit.....	8-5
8.2.2	Laugen im Salinar .....	8-6
8.2.3	Grundwässer in der Sedimentabdeckung .....	8-8
8.3	Technische Barrieren.....	8-13
8.3.1	Behälterkorrosion.....	8-13
8.3.2	Barrierenwirkung von Endlagergebinden mit abgebranntem Brennstoff.....	8-16
8.3.2.1	Verteilung der Radionuklide im Brennstoff.....	8-16
8.3.2.2	Auslaugung von abgebranntem Brennstoff.....	8-17
8.3.3	Bewertung des Endlagergebindes als geochemische Barriere....	8-26
8.4	Geotechnische Barriere .....	8-29
8.4.1	Wechselwirkung von Granitgrundwasser mit Bentonit.....	8-29
8.4.2	Porenwasserchemie in Bentonit.....	8-30
8.4.3	Radionuklidtransport in Bentonit.....	8-31
8.5	Geologische Barriere .....	8-33
8.5.1	Radionuklidlöslichkeit in natürlichen aquatischen Systemen.....	8-33
8.5.2	Redoxreaktionen .....	8-34
8.5.3	Hydrolyse- und Komplexbildungsreaktionen .....	8-37
8.5.4	Kolloideinfluß .....	8-39
8.5.5	Radionuklidrückhaltung durch Sorption .....	8-41
8.6	Vergleichende Gegenüberstellung .....	8-43
9	ZUSAMMENFASSUNG UND OFFENE FRAGEN .....	9-1

## LITERATURVERZEICHNIS

## ERKLÄRUNGEN

## ABKÜRZUNGSVERZEICHNIS



## 1 EINLEITUNG

Seit mehr als 25 Jahren werden FuE-Arbeiten zur Tieflagerung radioaktiver Abfälle in geologischen Formationen durchgeführt. Sie sind darauf ausgerichtet, Verfahren für die Endlagerung zu entwickeln und nachzuweisen, daß das mit der Endlagerung verfolgte Schutzziel, die Strahlenexposition von Personen unterhalb der in der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) festgelegten Grenzwerte so gering wie möglich zu halten, erreicht werden kann. Diese Arbeiten konzentrierten sich in Deutschland von Anfang an auf Salz als Endlagermedium. Bereits in einem Bericht der Amerikanischen Akademie der Wissenschaften aus dem Jahr 1957 wurden Salzformationen wegen des Fehlens von Wasser als besonders geeignet für die Endlagerung radioaktiver Abfälle bezeichnet. Im Zweiten Deutschen Atomprogramm wurde 1963 eine Empfehlung für Salz ausgesprochen, ebenso in einem Gutachten der Bundesanstalt für Bodenforschung, der Vorgängerorganisation der jetzigen Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR). Alle bisherigen Untersuchungen führten zu dem Ergebnis, daß Salz als Endlagermedium grundsätzlich geeignet ist. Dabei spielen die günstigen Eigenschaften von Steinsalz, vor allem die hohe Plastizität und Wärmeleitfähigkeit, die extrem geringe Durchlässigkeit für Wasserzuflüsse von außen und die leichte Erstellbarkeit von Hohlraum eine entscheidende Rolle. Seit Mitte der 60er Jahre stand das Salzbergwerk Asse als Versuchsendlager zur Verfügung. Bereits in der ersten Hälfte der 70er Jahre wurden mehrere Standorte nach einem umfangreichen Kriterienkatalog auf ihre prinzipielle Eignung, ein Endlager für radioaktive Abfälle aufzunehmen, untersucht. 1977 wurde beschlossen, ein Erkundungsprogramm nur noch für den Salzstock am Standort Gorleben durchzuführen.

Angesichts der bald nach der Auswahl einsetzenden Diskussion untersuchte die BGR an Alternativen zu Gorleben auch Standorte im Kristallin. Die Ergebnisse dieser Untersuchung, die 1982 vorlagen, wiesen erkundungswürdige Standortregionen aus. Diese Untersuchung wurde 1991 auf die Neuen Bundesländer ausgedehnt. Um den Kenntnisstand hinsichtlich der Eignung von Granit für die Endlagerung zu verbessern, beschloß das Bundesministerium für Forschung und Technologie (BMFT) 1982, sich an dem wissenschaftlich-technischen Programm der schweizer Endlagersgesellschaft NAGRA im Felslabor Grimsel zu beteiligen. Darüber hinaus besteht seit 1995 eine Beteiligung an den Forschungsarbeiten im schwedischen Untertage-labor Äspö.

Zur Beurteilung von Standsicherheit und Ausbreitungswegen über lange Zeiträume sind eingehende Kenntnisse der Eigenschaften und Strukturen des Wirtsgesteins unerlässlich. Um diese ermitteln zu können, wurden im Felslabor Grimsel zunächst

Meßmethoden und -geräte getestet und entsprechend den jeweiligen Anforderungen weiterentwickelt, so daß ein ausgereiftes Instrumentarium zur Erfassung von endlagerrelevanten Daten zur Verfügung steht. In einem weiteren Schritt wurden unter Einbeziehung der ermittelten Daten für geophysikalische, hydrogeologische, felshydraulische, felsmechanische und geochemische Fragestellungen sowie Fragestellungen zum Radionuklid- und Stofftransport, Teilmodelle entwickelt und im Zusammenspiel mit den Meßdaten auf Plausibilität, d.h. auf Übereinstimmung von Modell und Realität, überprüft.

Durch diese über zehn Jahre andauernden Untersuchungen wurde das Verständnis der Grundzusammenhänge und der Wechselwirkungen zwischen dem mechanischen Verhalten des Gebirges und den hydrogeologischen bzw. felshydraulischen Verhältnissen deutlich verbessert. Die erzielten Ergebnisse liefern damit entscheidende Fortschritte im Hinblick auf eine realistische Beschreibung, Berechnung und Beurteilung von Ausbreitungsvorgängen im Rahmen einer Langzeitsicherheitsanalyse eines Endlagers in Granit. Eine abschließende umfassende Wertung der Forschungsergebnisse im Kristallin kann jedoch erst nach Beendigung der Arbeiten in den Felslabors Grimsel und Äspö erfolgen.

Als Hartgestein wird elastisches Gestein mit hoher Festigkeit und weitgehend vernachlässigbarem plastischem Verhalten bezeichnet. Dazu zählen vor allem Granit und Basalt, aber auch Tuff und Gneis, nicht jedoch Ton und Steinsalz. Eine Gegenüberstellung von Hartgestein und Steinsalz als Endlagermedien hat seinen Schwerpunkt naturgemäß beim Endlager. Sie darf sich jedoch nicht darauf beschränken, sondern muß weitere Teilbereiche der nuklearen Entsorgung, zumindest die (Brennelement-) Konditionierung, einschließen. Eine wichtige Funktion übernehmen bei Hartgestein der Endlagerbehälter und das ihn umgebende Verfüll- und Puffermaterial, weil auf Hartgestein nicht die bei Salz typischen trockenen Verhältnisse zutreffen und den technischen Barrieren im Endlager-Nahbereich somit eine höhere Bedeutung zukommt als bei Salz. Im Hartgestein nehmen hydrogeologisch bedeutsame Gesteinsdiskontinuitäten wie Risse und Klüfte zwar mit der Teufe ab, jedoch muß der Zutritt von Grundwasser in den Nahbereich der eingelagerten Gebinde schon im Normalfall unterstellt werden. Andererseits ist nicht mit ähnlich aggressiven Laugen zu rechnen wie bei den für Salz diskutierten Störfallszenarien, so daß bei Hartgestein wieder Behältermaterialien in Betracht kommen, die beim Endlagermedium Salz als Kandidaten für den Korrosionsschutz ausgeschlossen sind. Darüber hinaus ist für die mechanische Auslegung des Behälters nun nicht mehr der volle Gebirgsdruck bestimmend, sondern nur der hydrostatische Druck, vermehrt um den Schwelldruck des Puffermaterials. All dies führt dazu, daß, anders als bei

Steinsalz, der Erkundung des Fernfeldes eine geringere Bedeutung zukommt als der Erkundung und Auslegung des Nahfeldes. Vor allem für die technischen Barrieren im Nahfeld ist nun der Nachweis zu erbringen, daß sie über lange Zeit stabil sind.

Auch hinsichtlich der thermischen Belastbarkeit liegen zwischen Hartgestein und Steinsalz wesentliche Unterschiede vor. Während bei Steinsalz eine Auslegung auf 200°C möglich ist, wird die höchste Temperatur an der Gebindeoberfläche in einem Granit-Endlager durch das Verfüll- und Puffermaterial (Bentonit) bestimmt und beträgt ungefähr 100°C. Daraus wiederum ergeben sich Änderungen in Hinblick auf die Kühlzeit der radioaktiven Abfälle sowie die Auslegung der Endlagerbehälter und des Endlagers. Die beiden Endlagermedien unterscheiden sich noch in einer Vielzahl weiterer thermischer und mechanischer Kenngrößen: Beispielsweise ist die Wärmeleitfähigkeit von Steinsalz relativ hoch, nimmt jedoch mit zunehmender Temperatur ab, hingegen ist die von Granit niedriger, jedoch temperaturunabhängig. Bei Salz in steiler Lagerung tritt das Phänomen der Konvergenz auf, d.h. des Verschließens von Hohlräumen durch plastische Verformung. Insgesamt ergibt sich somit ein sehr heterogenes Bild.

Schon diese einleitende Aufzählung läßt erkennen, daß beim Übergang vom einen Endlagermedium auf das andere bei einer Reihe von Effekten sich geänderte funktionelle Zusammenhänge ergeben. Eine höhere Temperatur beispielsweise begünstigt bei Salz die Kompaktierung des Verfüllmaterials Salzgrus, während sie die Eigenschaften von Bentonit verschlechtert. Daraus ist zu schließen, daß zumindest in Teilbereichen der Erkundung, der Planung, des Baus und des Betriebs eines Endlagers einerseits, beim Langzeitsicherheitsnachweis andererseits, wesentlich andersartige Anforderungen vorliegen.

Ziel von GEISHA ist es, Unterschiede zwischen den Endlagermedien Salz und Hartgestein, die die für Deutschland typischen Eigenschaften aufweisen, herauszuarbeiten und zu bewerten. Ob schließlich die mit dem Übergang vom einen Endlagermedium zum anderen einhergehende Modifikation der Endlagertechnik eine Vereinfachung, verbunden mit wirtschaftlichen Vorteilen, mit sich bringt oder ob dieser Übergang einen Sicherheitsgewinn zur Folge hat, läßt sich nicht ohne eine detaillierte Analyse beurteilen, soll jedoch nach Möglichkeit mitbehandelt werden.

Das im Rahmen von GEISHA entwickelte Endlagerungskonzept ist nicht optimiert. Aufgrund der Knappheit an Zeit und Mitteln war man in einzelnen Bereichen gezwungen, auf ausländische Daten und Ergebnisse zu verweisen. In den nächsten Abschnitten werden die als wesentlich erachteten Ergebnisse aus Studien zu

GEISHA vorgestellt. Diese wurden im Zeitraum 1994 - 1996 auf Anregung des Forschungszentrums Karlsruhe (FZK) erstellt, von FZK-PTE koordiniert und zum größten Teil vom Forschungszentrum Karlsruhe finanziert. Für die Beiträge „Behälterentwicklung“ und „Kernmaterialüberwachung“ stellte GNS/GNB Mittel zur Verfügung.

## 2 ASPEKTE DER STANDORTERKUNDUNG

### 2.1 Eignung von Steinsalz und Hartgestein als Endlagermedium

Um das mit der Endlagerung in tiefen geologischen Schichten verfolgte Ziel, Schutz vor schädlicher radioaktiver Strahlung, zu erreichen, ist international das Multibarrierenkonzept vorgesehen. Es umfaßt parallel oder redundant wirkende natürliche, geotechnische und technische Barrieren, denen unterschiedliche Aufgaben zukommen. Aus geowissenschaftlicher Sicht sind dabei die geologischen und die geotechnischen Barrieren von besonderer Bedeutung.

Die geotechnischen Barrieren bestehen aus natürlichen und künstlichen Materialien, mit denen Bohrlöcher, Strecken und Schächte verfüllt und versiegelt werden und die in Dammbauwerken verwendet werden. Aufgabe der geotechnischen Barrieren ist es in erster Linie, Lösungsvorgänge auf ein Minimum zu reduzieren, chemische Reaktionen zwischen Abfall und Wirtsgestein zu verhindern, sowie die Freisetzung von Schadstoffen zu verzögern. Damit soll auch eine Beeinträchtigung der geologischen Barriere vermieden werden.

Die natürliche Barriere besteht aus der Wirtsgesteinsformation und dem geologischen Umfeld. Das Wirtsgestein muß sicherstellen, daß der Zufluß von wäßrigen Lösungen und der Austritt von kontaminierten Fluiden in die Biosphäre entweder unmöglich ist oder unter Berücksichtigung der geohydraulischen und geochemischen Verhältnisse in akzeptablen Grenzen gehalten wird. Man muß berücksichtigen, daß die Barrierenwirkung des Wirtsgesteins nur bis zu einem bestimmten Ausmaß verbessert werden kann. Dies bedeutet, daß bei sehr unterschiedlichen Wirtsgesteinsformationen, wie z.B. Salz und Granit, auch verschiedenartige Barriersysteme entwickelt werden müssen.

Hinsichtlich der Wirtsgesteinseigenschaften von kompaktem Steinsalz gilt, daß dessen Langzeitdichtigkeit durch den sicheren Einschluß von Gasen und Fluiden über sehr lange Zeiträume nachgewiesen ist. Salz als natürliche geologische Barriere kann zudem durch das plastische und „rißheilende“ Verhalten als dichtes Medium eingeschätzt werden, das im Barriersystem die wesentliche Rolle einnimmt. Weitere Vorteile des intakten Salzgesteins bestehen in der Standsicherheit von großen Hohlräumen über längere Zeiträume und in der relativ großen Wärmeleitfähigkeit, die eine rasche Ableitung der vom Abfall produzierten Wärme gewährleistet. Die Wärmeleitfähigkeit nimmt jedoch bei zunehmender Temperatur ab. Eine wichtige geotechnische Barriere ist der Schachtverschluß, der eine Versiegelung der punktuell beeinträchtigten geologischen Barriere darstellt.

Bei der Untersuchung eines Salzstockes auf seine Eignung als Endlager darf die geologische Barriere nicht wesentlich durch über- und untertägige Erkundungstätigkeiten beeinträchtigt werden. Eigenschaften eines bestimmten Homogenbereichs können meist aufgrund der Gleichförmigkeit von Salzformationen auf andere Bereiche übertragen werden. Auf diese Weise und auch durch den Einsatz zerstörungsfreier Methoden wird eine Reduzierung von Erkundungsbohrungen und Pilotstrecken möglich. Die Hauptaufgabe der geologischen Erkundung im Salinar, wie sie beispielsweise am Standort Gorleben in der Zechstein-2-Formation durchgeführt wird, liegt in der Identifizierung und Charakterisierung von Inhomogenitäten im Salzkörper. Dabei muß sichergestellt werden, daß bei der Endlagerung Sicherheitsabstände zu Hauptanhydrit- und Carnallitschichten eingehalten werden, da in diesen die Ausbreitung von Laugen erfolgen kann.

Im Gegensatz zum dichten Medium Steinsalz sind kristalline Gesteine in der Regel geklüftet. Sie können als einzelne Barriere den endgelagerten Abfall nicht über längere Zeit gegen Wasser abschirmen. In Kristallinkomplexen existieren jedoch meist Blöcke mit ausreichend geringer Wasserdurchlässigkeit, die zusammen mit dem zu errichtenden Barrierensystem hinreichende Sicherheit gewährleisten können. Die technischen und die geotechnischen Barrieren - der Endlagerbehälter und das Puffermaterial - müssen einen wesentlich größeren Beitrag zur Gesamtsicherheit erbringen als bei Salz. Sie schaffen einen Ausgleich für die natürlichen Defizite an Barrierenwirksamkeit von kristallinem Gestein.

Günstig für die Endlagerung in granitischen Gesteinen ist, daß sie eine hohe Stabilität und sehr geringe Löslichkeit besitzen. Die Wärmeleitfähigkeit ist nicht so hoch wie die von Steinsalz, dafür aber ziemlich temperaturunabhängig. Der Wärmeausdehnungskoeffizient von kristallinen Gesteinen ist geringer als der von Salzgesteinen und damit günstiger in bezug auf thermisch induzierte Spannungen.

Bei der Standortsuche geht es darum, die natürlichen Bedingungen zu erkunden und darauf das Endlagerkonzept mitsamt seinen Barrieren abzustimmen. Anders als in Steinsalz leisten in Kristallin die technischen und die geotechnischen Barrieren den Hauptbeitrag zur Gesamtsicherheit. Sie müssen der regionalen und lokalen geologischen Situation angepaßt werden. Oberste Ziele des Erkundungsprogramms in geklüfteten Kristallinkomplexen sind, erstens, die Identifikation und Charakterisierung der potentiellen Fließwege und, zweitens, das Auffinden der von ihnen eingeschlossenen Gebirgsblöcke geringer Durchlässigkeit.

## 2.2 Standortkriterien

Die Endlagerung radioaktiver Abfälle soll Mensch und Umwelt über lange Zeit vor den Auswirkungen ionisierender Strahlung schützen. Um die Einhaltung dieses Schutzzieles zu gewährleisten, werden Kriterien formuliert, die für Bau und Betrieb des Endlagers maßgebend sind. In Deutschland hat das Bundesministerium des Innern (BMI) nach Beratung durch die Reaktorsicherheits- und die Strahlenschutzkommission /RSK 83/ 1983 Sicherheitskriterien für die Endlagerung radioaktiver Abfälle in einem Bergwerk veröffentlicht.

Grundvoraussetzung für die Erbringung des Sicherheitsnachweises ist die Auswahl eines geeigneten Endlagerstandortes. Die Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR) hat in einer Studie die im folgenden aufgeführten wesentlichen Aspekte, die bei der Standortauswahl zu berücksichtigen sind, zusammengestellt. Sie sind ihrem Wesen nach Standortkriterien und zum größten Teil sowohl auf Salz als auch Hartgestein anwendbar /BRÄ 94/.

### ***Geographie:***

Die geographischen Verhältnisse in einem anthropogen nicht beeinflussten Gebiet spiegeln das Ergebnis vorangegangener und im besonderen Maße der rezenter<sup>1</sup> geologischen Vorgänge sichtbar wider. Deren Studium kann daher Prognosen für zukünftige geologische Prozesse erleichtern. Bei der Anlage eines Endlagers muß in diesem Zusammenhang darauf geachtet werden, daß sich die morphologischen Verhältnisse wie z.B. Hangneigungen und Zerschneidungsgrad des Reliefs nicht geodynamisch oder bergtechnisch ungünstig auf das Endlagerbergwerk auswirken können. Die gewählte Standortregion muß aus diesen Gründen eine ausreichende Flexibilität bei der Wahl der Einlagerungstiefe gewährleisten.

Weiterhin sind die hydrographischen Verhältnisse (Wasserscheiden, Vorfluter, Quellen usw.) zu berücksichtigen, da sie Aufschluß über Wassertransportwege geben. Die Besiedlungsdichte in der Endlagerregion ist bei der Standortplanung ebenfalls zu beachten.

### ***Regionalgeologische Verhältnisse:***

Aus regionalgeologischer Sicht sollte das Endlager in einem annähernd homogenen und wenig gestörten Gesteinskomplex liegen. Das Wirtsgestein muß eine ausreichende Mächtigkeit und lateral eine hinreichende Erstreckung aufweisen, um die Lokation und Konfiguration des Endlagers auch im Hinblick auf die Langzeitsicherheit flexibel zu gestalten. Die Mindesteinlagerungstiefe muß dabei so gewählt wer-

<sup>1</sup> die mit Zahlen markierten Fachbegriffe sind am Ende des Bandes unter „Erklärungen“ erläutert

den, daß die Wirkung der geologischen Barriere nicht durch Erosionsvorgänge beeinträchtigt werden kann. Untersuchungen der regionalgeologischen Verhältnisse umfassen daher Aussagen zur Beschaffenheit des Deckgebirges als ein die geologische Barriere unter Umständen positiv beeinflussender Faktor - wobei das Deckgebirge bei den in Deutschland untersuchungswürdigen Granitregionen meist entfällt -, sowie die Beurteilung des Wirtsgesteinskomplexes selbst und seiner Nebengesteine im Rahmen seiner paläogeographischen Entwicklung. Aus diesen Faktoren können Rückschlüsse auf die geologischen Strukturen und das Langzeitverhalten des betrachteten Komplexes gezogen werden. Es sollte bei der Festlegung der Einlagerungstiefe zusätzlich berücksichtigt werden, daß Deckgebirgsformationen von einer Mächtigkeit bis 200 m von anthropogenen Einflüssen betroffen sein können.

### ***Tektonik:***

Der Endlagerstandort sollte in einer geologisch stabilen Region außerhalb einer potentiell aktiven Störungszone liegen. Dies setzt bei der Auswahl eine Betrachtung der regionalen tektonischen Aktivitäten während der paläogeographischen Entwicklung voraus und umfaßt sowohl die Bewertung von Faltungen, Tiefenbrüchen, Hebungen, Senkungen usw. als auch die Untersuchung des strukturellen Inventars wie z.B. Klüftung, Schieferung und Schichtung.

Die Geometrie eines Endlagers in kristallinen Gesteinen wird im wesentlichen durch den Verlauf von signifikanten, auslegungsbestimmenden Diskontinuitäten (Störungen, Klüftzonen, geschieferte Zonen etc.) vorgegeben. Prinzipiell sollten dabei die Einlagerungsstrecken im Wirtsgestein frei von Störungs- und größeren Klüftzonen sein, da diese Bereiche eine erhöhte Wasserwegsamkeit darstellen. Vor dem Auffahren der untertägigen Hohlräume ist es daher erforderlich, das Wirtsgestein im geplanten Streckenbereich sowohl mit Hilfe zerstörungsfreier geophysikalischer Methoden als auch durch gezielt angesetzte Bohrungen auf größere Heterogenitäten und Einzelklüfte zu untersuchen. Dabei ist jedoch sicherzustellen, daß die Wirksamkeit der geologischen Barriere durch diese Untersuchungen nicht unzulässig beeinträchtigt wird.

### ***Hydrogeologie:***

Die hydrogeologischen Betrachtungen haben in erster Linie die Ermittlung und Bewertung der Oberflächen- und Grundwasserverhältnisse in der Endlagerregion und in deren Umfeld zum Ziel. Sie können nur nach umfangreichen und detaillierten Standortuntersuchungen an Ort und Stelle hinreichend genau eingeschätzt werden. Generell sollte das Wirtsgestein des Endlagers allseitig niedrige Gradienten des

regionalen hydraulischen Drucks aufweisen. Die Durchlässigkeit des Wirtsgesteins sollte gering sein, so daß von günstigen Rückhalteeigenschaften in bezug auf migrierende Radionuklide ausgegangen werden kann. Auch die das Wirtsgestein umgebenden Nebengesteine sollten nur geringe Fließgeschwindigkeiten des Grundwassers aufweisen. Die für die Erstellung eines Grundwasserfließmodells erforderlichen Messungen sollten weit über die Endlagerregion hinausgehende Zu- und Abflußgebiete erfassen.

Stratigraphische und strukturgeologische Besonderheiten wie z.B. Gänge, Störungen, Falten u.ä., die sich ungünstig auf die Rückhalteeigenschaften der Gesteine und des Gebirges auswirken können, sind bei der Modellierung und Bewertung des Grundwasserfließsystems zu berücksichtigen. Auch dürfen mögliche Rutschungen, Senkungen etc. nicht zu einer wesentlichen Veränderung des Grundwasserfließsystems führen.

Zwischen dem Endlager und der zu schützenden Umgebung dürfen keine Trinkwasserentnahmestellen liegen. Bei der Einrichtung des Endlagerstandortes sind die vom Gesetzgeber geforderten Entfernungen von Einzugsgebieten von Wasserfassungen und Quellen zu beachten.

Speziell bei kristallinen Wirtsgesteinen sind die hydrogeochemischen Eigenschaften der Tiefenwässer ein wesentlicher Faktor. Ihre Bedeutung, besonders in bezug auf die Materialwahl für die Endlagerbehälter und die zu berücksichtigenden physikochemischen Eigenschaften des Versatzmaterials, kann nur durch detaillierte In-situ-Messungen im Rahmen von Standortuntersuchungen abgeschätzt werden (vgl. Kap. 2.4).

#### ***Wirtsgesteinseigenschaften:***

Die mechanischen und physikalischen, insbesondere die thermomechanischen Eigenschaften des Wirtsgesteins bestimmen in großem Maße dessen Eignung als Endlagermedium. Das Wirtsgestein muß möglichst homogen ausgebildet sein und Felseigenschaften besitzen, die für den Bau, Betrieb und Verschuß eines unterirdischen Endlagers geeignet sind. Das heißt, daß durch die Erstellung der unterirdischen Strecken die Wirkung der geologischen Barriere nicht wesentlich verschlechtert werden darf. Die gebirgs- und felsmechanischen Eigenschaften müssen außerdem ein kontinuierliches Beschicken und Verfüllen der Hohlräume erlauben.

Die thermische Leitfähigkeit des Wirtsgesteins soll die schadlose Ableitung der Nachzerfallswärme der radioaktiven Abfälle ermöglichen. Die maximal zulässige Gebirgstemperatur im geplanten Endlagerniveau sollte vor Einlagerung auf etwa

55°C begrenzt bleiben, da andernfalls der Aufwand für die Lüftungstechnik unverhältnismäßig hoch werden würde. Das bedeutet, daß der vom Abfall produzierte und zur lokalen Gebirgstemperatur hinzukommende Wärmeeintrag selbst bei einem ungünstigen Zusammenwirken geomechanischer, hydrogeologischer und thermischer Eigenschaften des Wirtsgesteins dessen Isolationsfähigkeit nicht herabsetzen darf. Thermisch induzierte Klüfte, Mineralumwandlungen oder physikalische Vorgänge, die zum Austritt von Radionukliden aus dem Endlagerbereich führen können, sollten ausgeschlossen sein.

Die geochemischen Eigenschaften des Wirtsgesteins haben besonders bei der Einschätzung der Langzeitsicherheit eines Endlagers einen Einfluß. So wird das Rückhaltevermögen des Wirtsgesteins bezüglich freigesetzter Radionuklide nach der Einlagerung wesentlich von dessen geochemischem Verhalten beeinflusst. Eine Änderung der geochemischen Eigenschaften darf weder zur Verschlechterung der Gesteinseigenschaften führen noch die eingebrachten künstlichen Barrieren beeinträchtigen.

#### ***Seismizität:***

Das Endlager sollte in Regionen mit möglichst geringer seismischer Aktivität angelegt werden. Die Auswirkungen des größtmöglichen Erdbebens in dem betroffenen Areal sollten auf der Basis historischer Erhebungen und unter Einbeziehung der Untersuchung des tektonischen Umfeldes abgeschätzt werden. Dies betrifft besonders die möglichen Änderungen der Durchlässigkeiten im geklüfteten Gebirge nach seismischen Ereignissen.

#### ***Rohstoffvorkommen, Bergbau und Infrastruktur:***

Die anthropogene Veränderung und Belastung eines Gebietes ist bei der Wahl eines geeigneten Endlagerstandortes von großer Bedeutung. Dazu gehören in erster Linie untertägiger Altbergbau, Stauhaltungen und infrastrukturelle Merkmale wie Bevölkerungsdichte, Straßen- und Eisenbahnnetz sowie Gebiete mit Rohstoffvorkommen und Vorkommen von Tiefbohrungen für andere Zwecke als für die Endlagerstandorterkundung.

Um eine spätere Beeinflussung des Endlagers durch Explorationsarbeiten zu verhindern, muß sichergestellt sein, daß keine außergewöhnlichen Bodenschätze sowie Rohstoffvorkommen, die von nationalem Interesse sein könnten und deren Ausbeutung in absehbarer Zukunft möglich erscheint, in der Standortregion vorhanden sind. Dies trifft besonders auf Vorkommen von Rohstoffen zu, deren Wert den Durchschnittswert anderer, gleich großer Gebiete in ähnlich strukturierten Formationen übersteigt und gilt dabei gleichermaßen für regionale Grundwasservorräte.

Aus den allgemeinen Standortkriterien lassen sich für die Prüfung der Untersuchungswürdigkeit drei Gruppen von Faktoren - ausschließende, limitierende und positive - formulieren. Die beiden letzten werden erst nach Vorauswahl potentiell geeigneter Gesteinsvorkommen angewendet, während die Vorauswahl anhand der ausschließenden Faktoren erfolgt. Diese **ausschließenden** Faktoren können dreifach untergliedert werden:

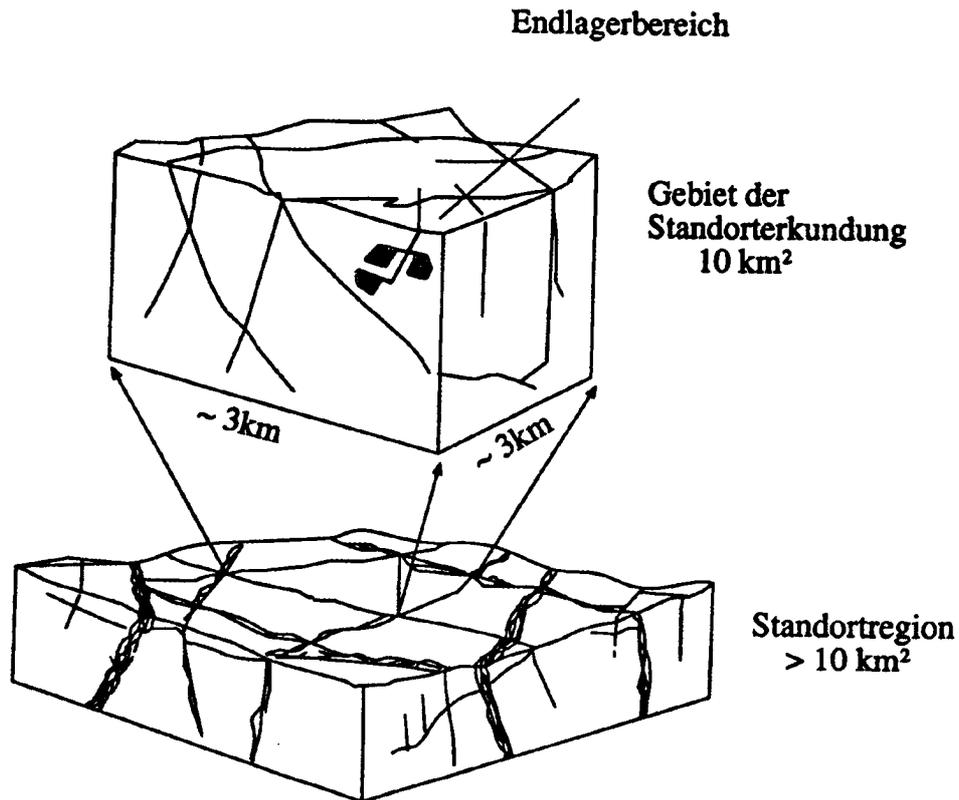
- *Ökologische Faktoren*: Schutzgebiete, Ballungszentren, großflächige Stauhaltungen, ungünstige Grundwasserverhältnisse.
- *Geogene Faktoren*: Tektonisch und seismisch aktive Zonen, hohe Verwerfungsdichte, starke Vertikal- und Horizontalbewegungen, intensiver Magmatismus.
- *Geotechnische, ingenieurgeologische Faktoren*: Größe des Kristallinkomplexes (Fläche etwa 10 km<sup>2</sup>, Mindestbreite 3 km), Bergbau, Wechsel der Gesteinseigenschaften.

## 2.3 Standorterkundung

### 2.3.1 Hartgestein allgemein

Radionuklide, die aus einem Endlager im Hartgestein freigesetzt werden, können nur durch Transport im Grundwasser in die Biosphäre gelangen. Fließwege sind vor allem geologische Diskontinuitäten wie Klüfte und Scherzonen. Die Fließvorgänge in der Gesteinsmatrix sind dagegen wegen der geringen effektiven Porosität und Durchlässigkeit äußerst gering. Die Erkundung eines Granitkörpers ist daher in erster Linie auf die Identifizierung und Charakterisierung der potentiellen Fließwege und von hinreichend großen Kristallinblöcken geringer Durchlässigkeit ausgerichtet. Die Analyse von Bohrkernen in Verbindung mit Strukturinformationen aus einer Region, die weit über den Bereich des eigentlichen Endlagerstandorts hinausgeht, erlaubt es, als Teil des geologischen Modells ein Grundwasserfließmodell zu erstellen. Die Sicherheitsanalyse im weiteren Verlauf der Standortbeurteilung stützt sich auf eine Modellkette, wobei der Grundwasserfluß im Endlagerbereich und auf den Fließwegen ein wichtiger Bestandteil des zu verwendenden Datensatzes ist.

Die Standorterkundung hat ihren Ausgang in der Standortregion, in der ein Gebiet von etwa 10 km<sup>2</sup> für die genauere Untersuchung ausgewählt wird. Innerhalb dieses Gebietes liegt der eigentliche Endlagerbereich (Bild 2-1).



**Bild 2-1: Standortregion und Endlagerbereich im Kristallin**

Im Rahmen des Erkundungsprogramms soll mindestens ein ungestörter Kristallinblock mit einer Größe gefunden werden, die für die Aufnahme des Endlagers ausreicht. Dazu wird der Endlagerstandort in zwei Phasen, einer übertägigen und einer untertägigen, erkundet. Ausgehend von den Ergebnissen des regionalen Untersuchungsprogramms, zielt die detaillierte **übertägige** Standorterkundung auf folgendes ab /GAU 95/:

- Lokalisierung größerer wasserführender Störungszonen, die den gering durchlässigen Gebirgsbereich in einzelne Blöcke zerlegen,
- Identifikation von Gebirgsblöcken mit geringer Durchlässigkeit und von ausreichendem Volumen,
- Bestätigung der Machbarkeit der Endlagerstrecken im Einlagerungsniveau und Ermittlung möglicher Schachtansatzpunkte.

Die dazu von der Oberfläche aus durchzuführenden reflexionsseismischen Messungen vermitteln einen ersten Überblick über den Verlauf größerer wasserführender Störungszonen. Mit ersten vertikalen Tiefbohrungen wird versucht, gering durchlässige Blöcke mit ausreichender Mächtigkeit auf dem vorgesehenen Endlagerniveau nachzuweisen. Diese Homogenbereiche im Kristallin und größere

wasserführende Störungszonen werden im weiteren Verlauf mit Schrägbohrungen und hydrogeologischen Bohrlochtests charakterisiert.

Nachdem aus den Ergebnissen der übertägigen Erkundung ein Zielgebiet und ein Schachtansatzpunkt ermittelt sind, beginnt der **untertägige** Teil des Erkundungsprogramms. Dieser ist kleinräumiger angelegt und hat folgende Ziele:

- Detaillierte Charakterisierung der lokalen Gebirgs- und Gesteinsverhältnisse,
- Lokalisierung und Charakterisierung aller größeren wasserführenden Störungen,
- Ermittlung und Erkundung der für die Endlagerstrecken geeigneten Gebirgsblöcke.

Während des Schachtabteufens müssen die hydrogeologischen, geochemischen und geologischen Gebirgs- und Gesteinseigenschaften erfaßt werden. Ein Untertage-Felslabor im oberen Endlagerbereich sollte anschließend die Möglichkeit von In-situ-Untersuchungen bieten.

Nach Erreichen des Endlagerniveaus werden Horizontalbohrungen gezielt in Richtung der späteren Einlagerungsstrecken angebracht. In diesen Bohrungen müssen hydraulische Tests und zerstörungsfreie geophysikalische Messungen (seismische Tomographie) durchgeführt werden, um sämtliche größeren wasserführenden Zonen zu lokalisieren und zu charakterisieren. Ein erster Pilotstollen sollte zusätzlich zur Ermittlung von geeigneten Gebirgsbereichen in die Richtung einer späteren Einlagerungsstrecke vorgetrieben werden. Je nach Lage des Schachtes (außerhalb oder innerhalb des Einlagerungsfeldes) könnten zusätzliche Verbindungs- und Zugangsstrecken notwendig werden.

Die bis dahin erzielten Untersuchungsergebnisse werden schließlich durch Beobachtungen und Messungen an weiteren Pilotbohrungen und -strecken sowie bei der Streckenauffahrung überprüft und gegebenenfalls ergänzt. Auch tragen diese Untersuchungen dazu bei, die genaue Lage der Bohrlöcher für die Abfallbehälter festlegen zu können. Die Untersuchungen im Untertagelabor ermöglichen zusätzlich eine Abschätzung der Gebirgs- und Gesteinseigenschaften im Endlagerbereich und liefern Daten, die einerseits für Stabilitätsaussagen für die Betriebsphase benötigt werden, andererseits in die Langzeitsicherheitsanalyse eingehen.

Nach Abschluß der Erkundung sollten geeignet ausgebildete Gebirgsbereiche ausgewählt sein. Die Voraussetzungen für die Konzeption des Endlagers wären damit gegeben und die Einlagerungsstrecken könnten aufgefahren werden.

Da in keinem der die Kernenergie nutzenden Länder die Endlagerprojekte für wärmeerzeugende Abfälle abgeschlossen sind, liegen nur wenige Ergebnisse aus untertägiger Erkundung vor, mit denen die aus obertägiger Erkundung stammenden Voraussagen zur Eignung eines Endlagerstandortes überprüft werden können. Bei Hartgestein besteht diese Vergleichsmöglichkeit fast nur beim Untertagelabor Äspö. Im Zeitraum 1986-1990 wurde dort von über Tage aus erkundet, ab 1990 die Rampe bis in eine Teufe von annähernd 500 m aufgefahren und 1995 das Untertagelabor fertiggestellt. Ein Hauptziel der Arbeiten besteht in der Überprüfung der obertägigen Erkundungsergebnisse. Das heißt, es soll geprüft werden, ob durch Erkundung von der Erdoberfläche und von Bohrlöchern aus genügend Datenmaterial zu wichtigen sicherheitsbezogenen Gesteinseigenschaften gewonnen werden kann /SKB 96/. Wichtig im Hinblick auf Auslegung und Sicherheitsbewertung ist dabei, Existenz, Geometrie und Eigenschaften der wasserleitenden Zonen zu bestimmen.

In Äspö konnten alle größeren Klufzonen gefunden werden. Die vorliegenden Ergebnisse, die von einer Strecke aus gewonnen wurden, lassen erkennen, daß Geometrie und Eigenschaften großer (>5 m) subvertikaler Klufzonen von über Tage aus gut vorhergesagt werden können. Für kleine (<5 m) Klufzonen ist die Vorhersagegenauigkeit im Hinblick auf deren Existenz und hydraulische Eigenschaften ausreichend, nicht gut genug jedoch hinsichtlich ihrer Erstreckung und Struktur. Die hydraulischen Eigenschaften des Gebirges und der Klufzonen konnten insgesamt gut vorhergesagt werden.

Neben Äspö bietet noch das kanadische Untertagelabor URL in Whiteshell die Möglichkeit, die Verlässlichkeit von an der Oberfläche gewonnenen Eignungsaussagen zu bewerten. Nach /WHI 94/ hätten die Arbeiten im Rahmen von URL den Nachweis erbracht, daß die Zuverlässigkeit der obertägig eingesetzten Verfahren ausreicht, um Grundwasserströmung und Lösungsmitteltransport zu charakterisieren und zu modellieren.

### 2.3.2 Hartgestein in Deutschland

Anders als die zum Baltischen Schild gehörenden, an der Oberfläche aufgeschlossenen<sup>2</sup>, 1,2 bis 3 Milliarden Jahre alten Kristallinvorkommen in Schweden und Finnland, gehören die meisten deutschen Kristallvorkommen dem wesentlich jüngeren,

ca. 300 Millionen Jahre alten, varistischen<sup>3</sup> Gebirge an. Aus dem geringeren geologischen Alter der deutschen Granite darf jedoch in diesem Fall nicht auf eine geringere Häufigkeit und Intensität der geologisch-tektonischen Beanspruchung der Gesteine geschlossen werden, da die deutschen Granitgebiete in einer geologisch wesentlich unruhigeren Region liegen als die skandinavischen Kristalline. Sie sind somit intensiver geklüftet, gestört und teilweise auch deformiert. Besonders die Klüftung, die in einigen Kristallinkomplexen als zusammenhängende Klüftzonen teilweise noch in großer Tiefe zu finden ist, hat Auswirkungen auf den Grundwasserfluß und damit auch auf einen denkbaren Radionuklidtransport.

Auch hinsichtlich der Grundwasserbeschaffenheit sind Unterschiede zwischen skandinavischen und deutschen Kristallinkomplexen festzustellen. Die Tiefenwässer in Skandinavien haben besonders in küstennahen Regionen häufig salinen Charakter. Hingegen wird in deutschen Grundgebirgseinheiten im Einlagerungsniveau eher geringer mineralisiertes Wasser anzutreffen sein.

Die Granitkomplexe Kanadas sind nach geowissenschaftlichen Gesichtspunkten ähnlich aufgebaut wie die skandinavischen. Sie sind meist älter als 2 Milliarden Jahre und waren seit mehr als 600 Millionen Jahren geologisch stabil. Die Granite des Kanadischen Schildes sind durch die topographischen Gegebenheiten und die fehlende Hebungstendenz noch weniger Erosionsvorgängen ausgesetzt als die des Baltischen Schildes. Kanada besitzt auch wesentlich weiträumigere Kristallinkomplexe als Deutschland. Die Auswahl von geeigneten Standortmöglichkeiten ist daher dort erheblich erleichtert. Keine ins Gewicht fallenden Unterschiede zu deutschen Graniten bestehen in der petrographischen Zusammensetzung, im mechanischen Verhalten und in den hydraulischen Verhältnissen. Die geochemische Zusammensetzung der Tiefengrundwässer des Kanadischen Schildes schwankt wie in Skandinavien zwischen wenig mineralisiert und salin.

Das für Endlagerstandorte in Frage kommende kristalline Grundgebirge der Nordschweiz besitzt Gemeinsamkeiten mit deutschen Granitgebieten. Sie sind beide Bestandteil der zahlreichen, varistisch aufgestiegenen, mitteleuropäischen Granitkomplexe, die als ca. 500 km breiter Faltengürtel vom französischen Zentralmassiv bis zur Elbe und weiter nach Polen ziehen. Ein direkter Zusammenhang zwischen den Südschwarzwälder Graniten und dem tiefgelegenen kristallinen Untergrund der Nordschweiz ist offensichtlich. Die dort gewonnenen Erkenntnisse sind zum großen Teil auf weite Bereiche der Schwarzwälder Granitgebiete übertragbar. Bei dem Vergleich mit anderen deutschen Granitkomplexen ist zu berücksichtigen, daß das nordschweizer Grundgebirge unter einer Sedimentbedeckung mit einer Mindest-

mächtigkeit von etwa 500 m liegt. Dies hat besondere Auswirkungen auf die Einschätzung der hydrogeologischen Verhältnisse und die Prognostizierbarkeit der geologischen Bedingungen über längere Zeiträume. Bei der Abschätzung der hydrogeochemischen Verhältnisse können die im Süßwasserbereich gelegenen Referenzanalysen der nordschweizer Tiefengrundwässer eher auf deutsche Kristallinkomplexe übertragen werden als die Werte von stark salinen Wässern. Zu beachten ist jedoch dabei immer der mögliche Einfluß des lokalen und des regionalen geologischen Umfelds.

Auf dem Gebiet der **Alten Bundesländer** finden sich, an der Oberfläche aufgeschlossen, granitische Intrusionen größeren Ausmaßes, die für die Endlagerung in Erwägung gezogen werden können, nur innerhalb der varistischen Schollen. Die davon flächenmäßig größten liegen im Bayerischen und im Oberpfälzer Wald sowie im Schwarzwald. Weitere Granitkomplexe dürften unter mesozoischer Bedeckung sich etwa in 500 - 1.000 m Tiefe befinden.

Werden die ausschließenden Parameter gemäß Kapitel 2.2 zur Bewertung herangezogen, so erweisen sich Odenwald, Spessart und Harz als ungeeignete Regionen. Unter den verbleibenden untersuchungswürdigen Standortregionen in den Alten Bundesländern seien beispielhaft die folgenden genannt.

#### ***Fichtelgebirge:***

Die Fichtelgebirgsgranite sind jünger als die Hauptfaltungsphase der varistischen Gebirgsbildung. Sie wurden lediglich durch spätvaristische Schollenbewegungen gestört. Bewegungen an den Störungszonen führten nur zu begrenzten Gefüge- und Mineralumwandlungen. Während einer späten Mineralisationsphase wurden im Fichtelgebirge Zinn-, Uran- und Eisenerze gebildet. Aussagen zur Teufenerstreckung der Fichtelgebirgsgranite sind nur sehr ungenau möglich, die Platznahme der Granite ist nicht vollständig geklärt. Es herrschen zwei Hauptklufsysteme vor, deren Ausrichtung durch zahlreiche Klufmessungen belegt ist.

Das Fichtelgebirge ist zwar aufgrund seiner geologisch-tektonischen Lage für die weitere Standortauswahl geeignet, jedoch ist diese Eignung in einigen Bereichen wegen der Existenz beliebter Erholungsgebiete stark eingeschränkt.

#### ***Schwarzwald:***

Unter den Schwarzwaldgraniten sind an dieser Stelle der Bühlertalgranit im Norden und der Malsburggranit im Südschwarzwälder Kristallinkomplex erwähnenswert.

Der Bühlertalgranit ist ein relativ einheitlich aufgebautes Gestein. Er grenzt im Norden teils mit tektonischem Kontakt an die paläozoischen Gesteine der Senke von Baden-Baden, im Westen wird er durch die Schwarzwaldrandverwerfung des Oberrheingrabens abgeschnitten. Neben dieser steil nach Westen abfallenden Hauptrandverwerfung treten weitere Verwerfungen auf, die mit Rutschflächen und Quetschzonen in Verbindung stehen, die wiederum völlig zerriebene und zersetzte Gesteinsmassen (mylonitisierte<sup>4</sup> Zonen) aufweisen. Die Hauptkluftrichtungen sind bekannt. Insgesamt ist der Bühlertalgranit als Standortregion nur bedingt geeignet. Die Nähe zur Randverwerfung des Oberrheingrabens erfordert eine intensive Erkundung der tektonischen Verhältnisse und eine genaue Lokalisierung der Nebenstörungen.

Der Malsburggranit in der Südwestecke des Schwarzwälder Kristallinkomplexes nimmt ein Gebiet von ungefähr 100 km<sup>2</sup> ein. Wiederum sind die Nähe zum Oberrheingraben und die Existenz von Hauptstörungszonen ausschlaggebend dafür, daß der Malsburggranit zu großen Teilen als Standortregion ungeeignet ist.

Auch auf dem Gebiet der **Neuen Bundesländer** wurden bisher keine speziellen Untersuchungen über Standortmöglichkeiten zur Endlagerung radioaktiver Abfälle in nichtsalinaren Formationen durchgeführt. Dem internationalen Trend folgend, hatten sich die verantwortlichen Behörden der DDR in den 60er Jahren ausschließlich für das Wirtsgestein Salz entschieden. Ende der 70er Jahre, als durch die „Ölkrise“ die Speicherung von flüssigen Kohlenwasserstoffen in nichtsalinaren Festgesteinen in Skandinavien ihren Höhepunkt erreichte, wurde auch für das Gebiet der DDR eine Studie zu dieser Thematik in Auftrag gegeben. Darüber hinaus erfolgte aber keine weitere Bearbeitung.

Die Suche nach potentiellen Standorten in kristallinen Gesteinen in den Neuen Bundesländern sollte sich u.a. auf folgende, im Südteil aufgeschlossenen Grundgebirgseinheiten konzentrieren: Elbezone, Erzgebirge/Vogtländisches Schiefergebirge, Lausitzer Scholle und Thüringer Wald.

#### ***Elbezone:***

Wegen ihrer flächen- und tiefenmäßig großen Verbreitung sind die Granitoide des Meißener Massivs von Bedeutung. Einige Bereiche kommen für eine weitere Standortsuche in Frage. Ungünstig ist die Lage in einer Erdbebenzone und der Verlauf der Elbe im Zentrum, ebenso die Nähe zu den Städten Dresden und Meißen.

#### ***Erzgebirge/Vogtländer Schiefergebirge:***

Kristalline Gesteine haben einen großen Anteil an der Gesamtfläche des Erzgebir-

ges und des Vogtländer Schiefergebirges. Jedoch ist das Erzgebirge ein tektonisch dynamischer und, durch die Auffahrung zahlreicher Abbaustrecken, anthropogen stark beanspruchter Bereich. Dies hat vor allem auf mögliche Wasserwegsamkeiten im Gebirge ungünstige Auswirkungen. Zusätzlich stellt sich noch das Altlastenproblem durch den Wismut-Bergbau. Das Erzgebirge ist daher eine wenig geeignete Standortregion. Zu prüfen bleiben die granitoiden Kristallinbereiche der süd-vogtländisch-erzgebirgischen Querzone und der vogtländischen Mulde.

***Lausitzer Scholle:***

Der Lausitzer Granodioritkomplex ist das größte zusammenhängende Kristallingebiet Mitteleuropas. Durch seine Lage in einem relativ stabilen Block bieten sich größere Regionen zur Standortsuche an. Dabei kommt vor allem der nördliche Teil des Komplexes in Frage.

***Thüringer Wald:***

Im Untersuchungsgebiet des Thüringer Waldes spielen kristalline Gesteine eine geringe Rolle. Außerdem kam es zu mehrfacher Gesteinsaufarbeitung, so daß das Gestein von „Gangschwärmen“ durchsetzt ist. Bei etwaiger weiterer Planung ist zu beachten, daß der gesamte Thüringer Wald Landschaftsschutzgebiet ist.

### 2.3.3 Salzlagerstätten in Deutschland

Wie bereits erwähnt, finden sich in Deutschland nur wenige, an der Oberfläche aufgeschlossene Kristallingebiete größeren Ausmaßes, die für die Endlagerung in Frage kommen. In den anderen Kristallingebieten könnte die Erkundung der genauen Tiefenlage und der Ausbreitung nur mit aufwendigen Tiefbohrungen durchgeführt werden.

Hingegen sind in Deutschland die Salzlagerstätten des nord- und mitteldeutschen Zechsteingebiets schon früh, teils durch Aufschlüsse an der Erdoberfläche, teils durch Tiefbohrungen und Bergwerke, bekannt geworden. Generell ist eine hinreichende Differenzierung der Eigenschaften der geologischen Schichten eine günstige Voraussetzung für deren Erkundung. Dafür sind gerade Salzlagerstätten mit ihrem unterschiedlichen Nebengestein ein gutes Beispiel. Durch geophysikalische Aufschlußmethoden wurde die Entdeckung der Salzvorkommen weltweit - im wesentlichen nur die nördliche Halbkugel besitzt Salzvorkommen - gefördert, so daß bergmännische Aufschlußverfahren meist erst gar nicht eingesetzt werden mußten, um die Mächtigkeit und Ausdehnung der Lagerstätten abzugrenzen /DRE 74/. Jedoch entstehen komplizierte tektonische Strukturen immer dann, wenn Steinsalz am

Schichtenaufbau beteiligt ist. Detailkenntnisse darüber können nur mit großem Erkundungsaufwand gewonnen werden.

Das Steinsalz in Norddeutschland hat seinen Ursprung im Zechsteinmeer, dem Vorläufer der heutigen Nordsee. Vor 250 Millionen Jahren wurden in einer ausgedehnten warmen Phase durch Eindunstung des Meerwassers mehrere Schichten sogenannter mariner Evaporite gebildet. In mehreren Ablagerungszyklen wurden Serien aus Steinsalz, Kalisalzen, Anhydrit u.a. gebildet, mit Steinsalz als Hauptbestandteil. Dieser Formation des Zechsteins überlagerten sich im weiteren Verlauf der Erdgeschichte bis in die Erdneuzeit Schichten aus Sand und Ton.

Aufgrund seiner Kristallgitterstruktur verformt sich Steinsalz schon bei geringer Druckbelastung plastisch, es kriecht. Da es sich dabei kaum zusammenpressen läßt, behält es seine geringe Dichte ( $2,2 \text{ g/cm}^3$ ) bei. Die Überdeckung aus Sedimenten verdichtete sich hingegen zu Sand- und Tonstein, im Fall der erdneuzeitlichen Sedimente über den Zechsteinschichten bis zu einer Dichte von  $2,6 \text{ g/cm}^3$ . Diese inverse Dichteschichtung, bei der schweres Gestein über spezifisch leichterem zu liegen kam, war gravitativ instabil. Die Sedimentdecke begann einzusinken und drückte das Salz nach oben (Halokinese). Unter dem Einfluß des Auftriebs suchte das Salz sich einen Weg durch Risse im Deckgebirge und bildete Intrusionen, die bekannten Salzstöcke (Diapire).

Während des Aufstiegs wurde das Salz oft stark verfaltet. Aus der ursprünglichen Schichtfolge der Salzablagerung gelangte die Schicht des Älteren Steinsalzes ins Zentrum der Salzstöcke. Diese durch Faltung entstandene komplizierte Struktur bringt es mit sich, daß ausreichend große Salzpartien in hinreichender Entfernung von Heterogenitäten wie Anhydrit- und Carnallitschichten nur durch intensive Erkundung gefunden werden können.

In ihren wesentlichen Teilen sind die Erkundungsprogramme in Salz und Hartgestein gleich: Die übertägige Erkundung mit hydrogeologischen und geophysikalischen Untersuchungen, die Tiefbohrungen sowie die Ermittlung des Schachtan-satzpunktes, das Schachtabteufen und schließlich die untertägige Erkundung. Jedoch müssen in Salz die Schächte schon während der Erkundung ihren Endausbau aufweisen und die Erkundungsstrecken die Gesamtheit des späteren Endlagerbereichs erfassen. Dies wiederum ist notwendig, weil eine erst später erfolgende Erweiterung der Schächte im wasserführenden Deckgebirge auf ihre endgültige Dimension mit nahezu unüberwindbaren Schwierigkeiten bei der Schachtabdichtung verbunden wäre. Würde das umgebende Deckgebirge wiederholt einem Gefrier-Tau-Zyklus unterworfen werden, so wäre ein Zufluß von Grundwasser nicht zu ver-

hindern /VEN 88/. Weiter werden Erkundungsstrecken im gesamten späteren Einlagerungsbereich dazu benötigt, um dessen Lokalisierung im Älteren Steinsalz in Gebieten frei von Lösungseinschlüssen zu gewährleisten.

Zum Schluß seien noch einmal folgende **wesentliche Aspekte der Standortsuche** in Hartgestein und Salz unter deutschen Randbedingungen hervorgehoben: Hartgestein als geologische Barriere erbringt über lange Zeiten mechanisch und geochemisch stabile Verhältnisse. Darin eingebettet sind die technischen, vor allem aber die geotechnischen Barrieren für die durch Langzeitsicherheitsanalyse zu belegenden Sicherheit verantwortlich. Erkundungsziel ist die Lokalisierung genügend großer, gering durchlässiger Gebirgsblöcke. Letzteres dürfte für ein relativ großes Kernenergieprogramm wie das deutsche nicht ohne weiteres zu leisten sein.

Hingegen sind die Salzlagerstätten des norddeutschen Zechsteingebietes häufig an der Erdoberfläche aufgeschlossen und durch Tiefbohrungen früh bekannt geworden. Beim Aufstieg des Salzes ergaben sich zwar komplizierte Strukturen, doch ist die Wahrscheinlichkeit groß, in diesen zahlreichen Salzstöcken ausreichend große Partien im Älteren Steinsalz frei von Lösungseinschlüssen und in genügender Entfernung von Heterogenitäten zu finden. Die geologische Barriere ist im Salinar die Hauptbarriere.

Die geologische untertägige Erkundung des Salzstocks Gorleben hat keine Erkenntnisse erbracht, die dessen Eignung in Frage stellen /BOR 97/.

## 2.4 Tiefengrundwässer und Laugen

### 2.4.1 Tiefengrundwässer

Für die Beurteilung eines Endlagerstandortes in Hartgestein muß die chemische Zusammensetzung des im Einlagerungsniveau zu vermutenden Wassers in vertretbaren Bandbreiten abgeschätzt werden, um die Reaktion mit der geotechnischen und der technischen Barriere sowie mit dem Abfall selbst einschätzen zu können. Der Wassertransport im kristallinen Grundgebirge erfolgt im wesentlichen entlang geologischer Diskontinuitäten (Klüfte, Scherzonen, Gänge, Kontaktbereiche). Fließvorgänge in der Matrix sind dagegen wegen der minimalen effektiven Porosität und Durchlässigkeit äußerst gering.

Kristalline Gesteine bestehen aus silikatischen Mineralen. Die Grundwässer in kristallinen Gesteinen enthalten aufgrund der langsam erfolgenden Silikatverwitterung nur wenige gelöste Bestandteile. Speziell im Oberflächenbereich, der aufgrund seiner höheren Kluftdichte größere Wasserwegsamkeiten für die Wasserzufuhr in das tiefere Kristallin aufweist, sind nur leicht saure Wässer zu erwarten, da die Verweildauer des Wassers hier relativ gering ist. Bei den Tiefengrundwässern im Kristallin ist dagegen eine stärkere Abhängigkeit vom geologischen Umfeld zu beobachten. Hier, wo die Fließwege nicht mehr so ausgeprägt auftreten, das Kluftnetzwerk weiter gefächert und die Fließgeschwindigkeit im allgemeinen geringer ist, wird der Einfluß der regionalen geologischen Verhältnisse auf die chemische Zusammensetzung der Grundwässer stärker. Entscheidend für die chemischen Eigenschaften des tieferen Grundwassers ist die räumliche Lage im Grundgebirge. Einflußfaktor ist hierbei zunächst die Nähe, Mächtigkeit und Beschaffenheit der Sedimentbedeckung. Durch Zufuhr von Grundwasser aus sedimentären Formationen kann der chemische Charakter der Tiefengrundwässer stark verändert werden. Damit verbunden sind Einflüsse durch Lösungen aus diagenetischen<sup>5</sup> Veränderungen, Auslaugung von Salinaren, Ausfällung, Sorption, Ionenaustausch, mikrobielle Umsetzung etc. Im Grundgebirgskörper selber wirken sich insbesondere Übergänge zu anderen Kristallingesteinen - z.B. Metamorphite<sup>6</sup> oder Störungszonen, verbunden mit mylonitischen<sup>4</sup> Bereichen, hydrothermal überprägte Zonen, brekziöses<sup>7</sup>, stark zerschertes Gestein, Erz- und Mineralgänge etc. - auf die Grundwasserbeschaffenheit aus.

Tiefengrundwässer in Kristallinkomplexen wurden in Deutschland und den angrenzenden Gebieten bisher nur punktuell untersucht. Die Messungen erfolgten meist in Zusammenhang mit Tiefbohrungen für unterschiedliche Vorhaben:

- Forschungsbohrungen (Kontinentale Tiefbohrung, KTB, Geothermie-Exploration, *Hot-Dry-Rock-Projekt* Urach)
- Erforschung von Endlagerstandorten (Nagra/Schweiz)
- Thermal-, Mineral- und Heilwasserbohrungen.

Die Ansatzpunkte der Bohrungen liegen im wesentlichen im süddeutschen und nordschweizer Raum. Dabei wurden granitische Intrusionen varistischen Alters durchteuft, die z.T. in paläozoische Sedimentfolgen des Varistikums oder in ältere Gneiskomplexe intrudierten. Die Thermal- und Mineralbohrungen sind meist nicht tiefer als 300 Meter und liegen aufgrund ihrer spezifischen Anforderungen überwiegend in stark wasserführenden Störungszonen.

Ein Versuch einer prinzipiellen teufenabhängigen Zonierung der Tiefenwässer sieht folgende Hauptzonen vor:

- *oberflächenbeeinflusstes Wasser*  
Süßwasser, weniger mineralisiert, Ca-Na-(Mg)- oder Na-Ca-HCO<sub>3</sub>-(SO<sub>4</sub>)-Typus,
- *Mischzone zwischen Oberflächen- und Tiefenwässern*  
lokal höher mineralisiert,
- *Tiefenwasser <2.000 m Tiefe*  
salin, Na-Ca-SO<sub>4</sub>-HCO<sub>3</sub>, geringer Austausch, Alter i.d.R. >10.000 a,
- *Tiefenwasser >2.000 m*  
salin.

Ein Vergleich von Grundgebirgswässern und, damit verbunden, eine Bewertung der ermittelten Analysedaten kann nur bei bekannten Probennahme- und Analysebedingungen zu befriedigenden Ergebnissen führen. Von den wichtigsten der dabei zu berücksichtigenden Faktoren seien hier zwei erwähnt, der pH-Wert und das Redoxpotential. Stärker auf Details wird in Kap. 8, Geochemie, eingegangen.

#### ***pH-Wert:***

Der in Tiefbohrungen in-situ gemessene pH-Wert variiert teils sehr stark. In dem für die Einlagerungsstrecken eines Endlagers in Frage kommenden Bereich zwischen 500 und etwa 1.000 Meter Tiefe sind Werte zwischen 6 und geringfügig über 8 zu erwarten. Die ermittelten Meßergebnisse sind oft einer Beeinflussung durch regionale geochemische Provinzen im geologischen Umfeld unterworfen (z.B. Lagerstätten). Auch treten saure Wässer häufiger im Bereich von Störungszonen auf. Bei der Probennahme können steigende pH-Werte infolge CO<sub>2</sub>-Entgasung gemessen werden.

#### ***Eh-Wert, Redoxpotential:***

Die In-situ-Messung der Eh-Werte gestaltet sich meist problematisch. Es liegen in der Regel mehrere Redoxpaare vor, und es ist eine starke Reaktion auf Änderungen der Wasserchemie zu beobachten. Die Beeinflussung durch Kontamination und Probennahme sowie die Abhängigkeit der Werte von der geochemischen Provinz (Lagerstätten, Störungszonen) ist sehr deutlich.

Generell gilt, daß die Eh-Werte in der für die Endlagerung in Betracht gezogenen Teufe meist im reduzierenden Bereich liegen und im allgemeinen mit der Tiefe noch abnehmen. Weiterhin muß bei der Auswertung und beim Vergleich von Werten aus unterschiedlichen Lokationen der Analyseort (in-situ/Labor) beachtet werden.

Für die hier angestellten Betrachtungen wird zwischen zwei Referenzwassergruppen unterschieden. Dies sind zum einen saline Wässer, zum anderen Wässer aus dem Süßwasserbereich. Der Vergleich der für die Behältermaterial- und Versatzmaterialkonzentration wichtigen Parameter von Kristallingrundwässern aus geologisch unterschiedlich strukturierten Regionen ist in Tabelle 2-1 dargestellt. Für die Anwendung auf deutsche Kristallingebiete erscheinen die für den westlichen und östlichen Teil der Nordschweiz angegebenen Referenzanalysenwerte von Süßwässern geeigneter als die salinen Wässer des skandinavischen Bereichs und des kanadischen Schields.

Referenzgrundwässer im Kristallin									
Teufe		Schweiz		Deutschland	Schweden	Finnland *			Kanad.Schild
		> 200m	> 200m	3800m	> 200m	169m	140m	613m	> 600m
pH		7 - 9	5,5 - 8	8,3 - 11,5	7,3 - 8,5	7,8	8,1	8,9	n.n.
Eh	mV	50 - -310		-230 - -580	-240 - -300	-350	-270	-300	n.n.
Natrium (Na <sup>+</sup> )	mg/l	150 - 350	1600 - 2800	> 4000	400 - 3050	9,5	570	3900	1400
Magnesium (Mg <sup>2+</sup> )	mg/l	0,001 - 2	19 - 30	n.n.	6,6 - 219	5,4	37	49	70 - 100
Calcium (Ca <sup>2+</sup> )	mg/l	7 - 16	80 - 500	n.n.	95 - 4400	22	110	3300	500
Fluorid (F <sup>-</sup> )	mg/l	7 - 16	2 - 9	n.n.	1,3 - 4,0	2,3	0,55	1,1	n.n.
Chlorid (Cl <sup>-</sup> )	mg/l	14 - 180	2400 - 3700	> 40000	530 - 12300	1,5	910	13000	1400
Sulfat (SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> )	mg/l	120 - 600	700 - 2100	> 30000	31 - 720	0,05	200	0,14	2300
Hydrogenkarbonat (HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> )	mg/l	180 - 450	850 - 950	n.n.	7,1 - 215	82 - 159	13 - 347	n.n.	16
Karbonat (CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> )	mg/l	3 - 30	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
Borat (B(OH) <sub>3</sub> )	mg/l	0,45 - 1,8	48 - 64	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
freier Sauerstoff (O <sub>2</sub> )	mg/l	0,008 - 5,85	n.n.	n.n.	n.n.	0 - 0,4	n.n.	n.n.	n.n.
Referenzort		Nagra Tiefbohrungen		KTB	Aspö	Kivetty KR1	Oikiluoto KR1		
Qualität		korr. Daten	korr. Daten	?	korr. Daten	korr. Daten	korr. Daten	korr. Daten	unkorr.
Bemerkungen		Süßwasser	salin	salin	salin	Süßwasser	brackisch	salin	meist salin
				sehr tief					
Quelle		NTB	NTB	KTB	SKB	TVÖ			Fritz et. al.

\* Grundwasser weist eine Tiefenzonierung mit zunehmender Mineralisation auf

**Tabelle 2-1: Vergleich von Referenzgrundwässern in verschiedenen Kristallingebieten**

#### 2.4.2 Lösungen in marinen Evaporiten

Die folgenden Ausführungen sind zum Großteil der Publikation /BOR 93/ entnommen.

Zum Stoffbestand der als Folge der Eindunstung von Meerwasser in der geologischen Vergangenheit entstandenen Evaporitablagerungen gehören feste, flüssige und gasförmige Bestandteile. Während der Kristallisation der Minerale aus dem Meerwasser und bei der Umbildung des Mineralbestandes der Salzgesteine durch Metamorphoseprozesse sind unterschiedlich große Mengen an Lösungsresten als „Gebirgslösungen“ (ml bis ~ 1.000 m<sup>3</sup>) sowie als „Lösungseinschlüsse“ (*fluid inclusi-*

ons, Durchmesser bis 100 µm) gespeichert worden. Für Aussagen zu Entstehung und Herkunft der salinaren Lösungen und zur Beurteilung der Langzeitsicherheit von Endlagern ist der Stoffbestand der Lösungseinschlüsse in Salzmineralen ebenso von Bedeutung wie die Zusammensetzung der Gebirgslösungen. Aus dem Stoffbestand der Lösungseinschlüsse läßt sich beispielsweise feststellen, ob in einem als Endlager vorgesehenen Bereich in der geologischen Vergangenheit bereits einmal Lösungen und Stofftransporte wirksam waren.

Gebirgslösungen haben ihren Ursprung sowohl in der natürlichen geologischen und mineralogischen Situation des Evaporitkörpers als auch in anthropogener Aktivität. Sie können auf Klufflächen, Schnitten und in kavernen Hohlräumen in nahezu allen Evaporitgesteinen (Anhydrit, Gips, Salzton, Steinsalz) gespeichert sein. Für jeden Kali- und Steinsalzlagerstättenbezirk in Nord- und Mitteldeutschland existieren bevorzugte Lösungsspeicher (Buntsandstein, Salzspiegel<sup>8</sup>, Gips<sup>9</sup>- und Kainit<sup>10</sup>, Salzhang usw.). Die gegenwärtigen Speichergesteine der Gebirgslösungen sind, im Gegensatz zu den Lösungseinschlüssen, normalerweise nicht mit dem Ort ihrer Entstehung und Herkunft identisch.

Über geologisch bedingte Wegsamkeiten können Oberflächen-, Grund- und Formationswässer aus dem Neben- und Deckgebirge in den Evaporitkörper eindringen und dort Auflösungs- und Metamorphoseprozesse (Lösungsmetamorphose) einleiten. Dabei kommt es zu teilweise großräumigen Umbildungen im Mineralbestand der Salzgesteine. Als Reste von Umbildungsprozessen liegen Metamorphoselösungen teils in abgeschlossenen Reservoirs vor, teils haben sie über Wegsamkeiten den Salzkörper wieder verlassen. Chemische Zusammensetzung und Konzentration der Metamorphoselösungen weichen völlig von denen der Oberflächenwässer und normalerweise von denen der im Nebengestein vorkommenden Formationswasser ab /HER 83/.

Auch bei der Erkundung des Salzstocks Gorleben von unter Tage durch Streckenauffahrungen und der zugehörigen Vorbohrungen sowie durch Erkundungsbohrungen kam es bisher erwartungsgemäß vereinzelt zu Zutritten von salinaren Lösungen und Gasen. Diese waren in unregelmäßig geformten Klüften und ihrer unmittelbaren Umgebung gespeichert. Bei den Zutritten handelte es sich um Tropfstellen in Strecken sowie um Zuläufe in Bohrungen, meist in der Größenordnung von Litern, jedoch auch bis zu einigen Kubikmetern salinärer Lösung. Durch die Untersuchung der ausgetretenen Lösungen wurde nachgewiesen, daß sie keine Verbindung zu Grundwässern in Gesteinen haben, die den Salzstock umgeben. Diese Lösungen

wurden in der geologischen Vergangenheit, vor Millionen Jahren, in den Salzgesteinen eingeschlossen und waren seitdem hierin isoliert /BFS 96/.

Charakteristisch für alle im Salzstock Gorleben aufgetretenen Gebirgslösungen sind die hohen  $MgCl_2$ -Anteile. Die heutigen Speichergesteine der Lösungen (Leine-Anhydrit, Staßfurt-Steinsalz) haben mit deren Entstehung und Herkunft nichts gemeinsam, denn der  $MgCl_2$ -Anteil ist nicht durch die Auflösung von Anhydrit ( $Ca SO_4$ ) oder Steinsalz ( $NaCl$ ) erklärbar. Nach bisheriger Kenntnis gibt es nur ein Gestein, aus welchem durch Reaktion mit ungesättigten wäßrigen Lösungen  $MgCl_2$  entstehen konnte, nämlich Carnallit aus dem Kaliflöz Staßfurt.

Die Analyse der Lösungseinschlüsse (*fluid inclusions*) ist nicht nur für die Grundlagenforschung von Bedeutung. Durch die Bestimmung ihres Stoffbestandes läßt sich auch prüfen, ob die für ein Endlager vorgesehenen Bereiche seit der Bildung der Salzablagerung nochmals mit wäßrigen Lösungen in Berührung gekommen sind. Lösungseinschlüsse können entweder wenig oder stark verändertes Meerwasser enthalten oder aus Restlösungen von Lösungsmetamorphoseprozessen bestehen.

Bei den bisher untersuchten Lösungseinschlüssen aus dem Salzstock Gorleben /HER 95/ hat sich erstens gezeigt, daß die mit der eiszeitlichen Subrosion (Ablaugung) zusammenhängenden Lösungsvorgänge bis ungefähr 80 m unter dem Salzspiegel wirksam waren. Die Lösungseinschlüsse in diesem Bereich sind das Ergebnis von Reaktionen mit ungesättigten wäßrigen Lösungen. Weiter zeigte sich aus den Lösungseinschlüssen im Halit in 800- bis 1.600 m Tiefe, daß deren Stoffbestand seit 250 Millionen Jahren nicht durch wäßrige Lösungen aus dem Deckgebirge und dem Nebengestein verändert worden ist. Während der Halokinese hat somit nach heutiger Kenntnis eine nachträgliche stoffliche Veränderung durch wäßrige, salzstockfremde Lösungen in großen Teilen der Steinsalzschiefer nicht stattgefunden. Damit ist für den Salzstock Gorleben nachgewiesen, daß die für das geplante Endlager wichtigste Barriere in einem weiten Bereich um den untersuchten Einlagerungshorizont seit 250 Millionen Jahren ihre Funktion trotz Auffaltung des Salzstocks erfüllt hat.



### 3 VERFÜLL- UND PUFFERMATERIAL IM NAHFELD

Aus den bei der Erkundung eines Endlagerstandortes erfaßten rezenten<sup>1</sup> geologischen Vorgängen läßt sich das weitere Verhalten der geologischen Barriere hinreichend zuverlässig prognostizieren. Für ein Endlager in einer geologisch stabilen Region sind gleichbleibende Eigenschaften dieser Barriere über lange Zeiträume zu erwarten. Die geologische Barriere verleiht dem Endlager mechanische Stabilität in einem zeitlich weitgehend unveränderten geohydraulischen und geochemischen Milieu.

#### 3.1 Geotechnische Barriere in Hartgestein

Den technischen und den geotechnischen Barrieren in einem Endlager fallen folgende fünf Aufgaben zu:

1. Beschränkung und Verzögerung des Wasserzutritts zum Einlagerungsbereich und zum Abfall.
2. Begrenzung der Freisetzungen von Radioaktivität aus dem Abfall in das angreifende Wasser.
3. Behinderung bzw. Verlangsamung der Radionuklid Ausbreitung im kontaminierten Wasser vom Einlagerungsbereich bis in die Biosphäre.
4. Zurückhaltung von radioaktiven Stoffen aus dem kontaminierten Wasser auf dem Transportweg vom Endlagerbereich bis in die Biosphäre.
5. Schaffung günstiger chemischer Bedingungen, damit die aufgeführten Aufgaben optimal erfüllt werden können.

Diese Aufgaben stellen keine absoluten Forderungen - wie beispielsweise „kein Wasserzutritt“ - dar. Die einzelnen, hintereinander angeordneten Sicherheitsbarrieren wirken gemeinsam. Sie werden je nach den vorhandenen Ausgangsbedingungen bemessen, um das Sicherheitsziel zusammen mit der geologischen Barriere zu erreichen. Damit ist eine gute Anpassung an die stets unterschiedlichen Randbedingungen, wie sie durch die geologische Barriere gegeben sind, möglich. Da die Gesamtwirkung für das Sicherheitsziel entscheidend ist, werden in der Regel keine formellen quantitativen Forderungen an die einzelnen Barrieren gestellt.

Für die weiteren Überlegungen zum Verfüll- und Puffermaterial kann die Betrachtung auf das Nahfeld beschränkt bleiben. Den technischen Barrieren fallen nur Einzelaufgaben zu. So zielt beispielsweise die Abfallbehandlung auf eine Begrenzung der Auslaugung ab (2. Aufgabe); der Behälter andererseits verzögert den Wasserzutritt (1. Aufgabe), da er für einen gewissen Zeitraum einen vollständigen Ein-

schluß gewährleistet und danach selbst bzw. durch seine Korrosionsprodukte für ein günstiges chemisches Milieu sorgt (5. Aufgabe). Dagegen trägt die geotechnische Barriere „Verfüll- und Puffermaterial“ (VP-Material) zur Erfüllung aller fünf Aufgaben einer Sicherheitsbarriere bei. Das VP-Material

- umhüllt allseitig den Abfallbehälter und begrenzt und verzögert somit den Wasserzutritt zum Abfall (1. Aufgabe)
- behindert und verlangsamt nach Freisetzung der Radionuklide den Transport des kontaminierten Wassers vom Abfall in Richtung Wirtsgestein (3. Aufgabe)
- hält gelöste Schadstoffe während ihres Transports vom Abfall zum Wirtsgestein z.B. durch Sorption zurück (4. Aufgabe)
- begrenzt die Freisetzungsrates durch gute chemische Nahfeldbedingungen (2. und 5. Aufgabe).

Um diese Hauptaufgaben erfüllen zu können, muß außerdem

- der Abfallbehälter über lange Zeit sicher im VP-Material positioniert werden und
- das VP-Material den auftretenden Gebirgsbewegungen bruchfrei folgen.

Des Weiteren sollen eventuell auftretende ungleichförmige Belastungen - etwa durch ungleichförmigen Gebirgsgrundspannungszustand, anisotrope Gebirgseigenschaften, Einbaufehler, ungleichmäßiges Wasserangebot durch das Gebirge - durch das VP-Material vergleichmäßig werden. Ihm fällt weiterhin die Aufgabe zu, die Durchlässigkeit des für den Nuklidtransport maßgebenden ausbruchsnahen Gebirgsbereichs zu begrenzen. Dies kann dadurch erfolgen, daß das VP-Material einen Stützdruck auf das Gebirge ausübt und außerdem in die Risse, Spalten und Klüfte im aufgelockerten, ausbruchsnahen Bereich eindringt und diese verschließt.

### 3.1.1 Anforderungen an das Verfüll- und Puffermaterial

Aus den skizzierten Aufgaben lassen sich Anforderungen an die einzusetzenden Materialien ableiten. Dabei ist es zweckmäßig, zwischen zwei Anforderungsgruppen zu unterscheiden, nämlich Anforderungen erster und zweiter Ordnung. Aus diesen Anforderungen lassen sich in einem weiteren Schritt meßbare Größen, nämlich Materialparameter erster und zweiter Ordnung, ableiten.

### 3.1.1.1 Materialparameter erster Ordnung

**Anforderungen erster Ordnung** beziehen sich auf die Wirksamkeit der Barriere im Hinblick auf Begrenzung des Schadstofftransports. Da die Forderung Flüssigkeitsdichtheit nicht dauerhaft erfüllt werden kann, sind Rückhaltevermögen und Langzeitbeständigkeit entscheidend für die Begrenzung des Schadstofftransports:

#### **Rückhaltevermögen**

Dies ist eine komplexe Größe, die die Forderung nach minimalem Schadstofftransport durch Flüssigkeiten und Gase beinhaltet. Dieser Transport kann nur im Porenraum der Barriere stattfinden. Selbst bei hohem Druckgefälle zwischen dem Übergang zum Gebirge und der Behälteroberfläche soll die wäßrige Lösung möglichst langsam vordringen. Nach Einsetzen der Behälterkorrosion soll das Gas ohne großen Druckaufbau nach außen entweichen können, um einen Fracriß zu verhindern.

Gleichzeitig ist eine höchstmögliche Immobilisierung der Radionuklide erforderlich. Diese kann durch Adsorption, Ionenaustausch oder Bildung einer schwer löslichen chemischen Verbindung erfolgen.

#### **Langzeitbeständigkeit**

Darunter versteht man weitgehende Konstanz der Materialeigenschaften im Rahmen der möglichen Elementarlasten (Druck, Temperatur, chemisches Umfeld einschließlich radioaktiver Strahlung).

Die folgenden fünf **Materialparameter** charakterisieren die Anforderung erster Ordnung, also das Rückhaltevermögen, während die Langzeitbeständigkeit im wesentlichen über Analogien bewertet werden kann.

- *Hydraulische Leitfähigkeit:* Wegen der Wechselwirkung zwischen Flüssigkeit und Feststoff ist die Charakterisierung des Stofftransports durch die Permeabilität als Eigenschaft des Feststoffs nicht exakt. Der Stofftransport wird daher durch die komplexe Größe der hydraulischen Leitfähigkeit beschrieben. Sie soll sowohl für alle denkbaren Grubenwässer und die in Gegenrichtung strömenden kontaminierten Lösungen möglichst gering bzw. so gering sein, daß die Diffusion als Transportmechanismus verbleibt.
- *Gaspermeabilität:* Die Permeabilität für gasförmige Korrosions- und Radiolyseprodukte muß bei minimaler hydraulischer Leitfähigkeit hinreichend groß sein, um zu gewährleisten, daß ein festzulegender Gasdruck im Abfallbereich nicht überschritten wird. Meist wird dieser Gasdruck durch den Fracdruck des unter dem jeweiligen Spannungszustand stehenden Ver-

füllmaterials bzw. des anstehenden Gebirges begrenzt. Die Gaspermeabilität kann unter gewissen Bedingungen bei bestimmten Verfüllmaterialien von untergeordneter Bedeutung sein. In erster Linie betrifft das Bentonite und unter Umständen auch andere Tone, die bei bestimmten Gasdrücken schlagartig aufreißen, aber sofort nach Gasdruckabbau wieder die Ausgangsmaterialeigenschaften annehmen.

- *Verteilungskoeffizient*: Der Verteilungskoeffizient beschreibt die Verteilung eines Radionuklids zwischen der festen und der flüssigen Phase unter Gleichgewichtsbedingungen und muß für das jeweilige VP-Material im realen geochemischen Milieu für die einzelnen Radionuklide bestimmt werden. Dabei sind hohe Verteilungskoeffizienten gleichbedeutend mit einer bevorzugten Bindung eines Radionuklids an das VP-Material. Diese Bindung ist nicht auf einen bestimmten Rückhalte Mechanismus begrenzt. Der Verteilungskoeffizient beschreibt die Gesamtwirkung mehrerer Immobilisierungsmechanismen.
- *Sorptionskapazität*: Die Sorptions- bzw. Ionenaustauschkapazität beschreibt das quantitative Vermögen des VP-Materials zur spezifischen Aufnahme von Radionukliden (bevorzugt als Kationen). Dieser Prozeß ist reversibel und in realen Mehrstoffsystemen außerordentlich kompliziert, so daß die Sorptionskapazität nur ein Anhaltswert für die generelle Eignung eines Materiales ist.
- *Löslichkeit von Fällprodukten*: Die Bildung schwer löslicher Verbindungen der Schadstoffe durch Fällungsreaktionen im geochemischen Milieu des Verfüllmaterials ist ein wirksamer Mechanismus der Rückhaltung bzw. Immobilisierung von Schadstoffen mit wesentlich geringerer Umkehrbarkeit als die Sorption. Die Restlöslichkeit dieser Fällungsprodukte ist ein meßbarer Parameter, der auf die chemischen Eigenschaften (z.B. den pH-Wert) des jeweiligen VP-Materials schließen läßt.

Die Wirksamkeit dieses Prozesses wird durch die Art der sekundär ausgefällten Verbindung und deren Löslichkeit im konkreten geochemischen Milieu (Löslichkeitsprodukt, von pH und Redoxpotential abhängige Gleichgewichte) bestimmt. Fällungsreaktionen können auch andere wesentliche Materialeigenschaften beeinflussen. So ist denkbar, daß durch die im durchströmten Porenraum des Verfüllmaterials neugebildeten Phasen eine Verringerung der hydraulischen Leitfähigkeit erfolgt.

Zur Bewertung der Langzeitbeständigkeit sind Kenntnisse zu erwartender Änderungen der Materialeigenschaften und deren Reversibilität erforderlich. Informationen darüber können bei Hartgesteinskonzepten durch experimentelle Untersuchungen bei standortabhängigen Randbedingungen - als Maximalwerte gelten Dauerdruckbelastungen von 30 MPa und Temperaturen bis 120°C -, gewonnen werden. Allerdings wird es schwieriger sein, die über lange Zeiträume ablaufenden, komplizierten Vorgänge in ihrer Gesamtheit durch Einzelexperimente und Modellrechnungen, die die Änderungen der Materialparameter berücksichtigen, umfassend zu beschreiben. Es bieten sich zur Erfassung des Faktors Zeit als Hilfsmittel archäologische und geologische Analoga an. Dabei ist vorausgesetzt, daß die zum Vergleich herangezogenen Materialien den Nachweis ihrer Stabilität über den Zeitraum ihrer Existenz erbracht haben und ihre Umgebung sowie deren zeitliche Variation der im Endlager zu erwartenden entspricht.

### 3.1.1.2 Materialparameter zweiter Ordnung

**Anforderungen zweiter Ordnung** zielen auf die Beibehaltung der Barrierenintegrität ab. Neben den Größen, die die Integrität im eigentlichen Sinn betreffen - Tragverhalten, Stützwirkung und Verformung -, zählt auch der Wärmetransport zu den Anforderungen zweiter Ordnung:

#### **Wärmetransport**

Bei wärmeerzeugenden Abfällen ist eine gesteuerte Abführung der Wärme erforderlich, wobei Temperaturgrenzen, insbesondere im VP-Material selbst und im Gebirge, zu beachten sind. Der Wärmetransport wird vor allem von der Einbaudichte, der Wärmeleitfähigkeit und der spezifischen Wärme bestimmt.

#### **Tragverhalten, Stützwirkung, Verformung**

Dabei sind die vier möglichen Verformungen - die elastische, das Kriechen, das Quellen und die temperaturbedingte - zu berücksichtigen. Das Tragverhalten betrifft die Lastabtragung über die Verfüllung ins Gebirge, wobei die Sinkbewegungen des Behälters möglichst gering sein soll. Die Stützwirkung bezieht sich auf die Fähigkeit, Gebirgsdruck schnell aufzunehmen und z.B. durch Aufbau eines Quelldrucks stabilisierend auf das Gebirge einzuwirken. Damit werden Gebirgsbewegungen begrenzt, die Auflockerungszone stabilisiert und Gebirgsdruckbelastungen ver gleichmäßig.

Aus diesen Anforderungen an das VP-Material lassen sich wiederum meßbare Größen ableiten, die **Materialparameter zweiter Ordnung**, wovon folgende Beispiele genannt seien:

- *Wärmeleitfähigkeit*: Für die Wärmeabfuhr ist die Wärmeleitung von Bedeutung, Strahlung und Konvektion können hingegen vernachlässigt werden. Geometrie und Dichte des eingebauten VP-Materials und damit Wärmeleitfähigkeit und spezifische Wärme müssen so aufeinander abgestimmt sein, daß weder im Gebinde noch im VP-Material Grenztemperaturen überschritten werden. Hohe Wärmeleitfähigkeit ist anzustreben, um einen schnellen Abtransport der Wärme zu gewährleisten.
- *Lastabhängige, zeitunabhängige Verformung*: Zeitunabhängiges, elastisches Materialverhalten garantiert ein über lange Zeit gleichmäßiges Tragverhalten und verhindert Absenkbewegungen der Behälter im Verfüllmaterial. Eine Homogenisierung des Spannungsfeldes bei ungleichmäßigem Gebirgsspannungszustand ist bei elastischem Materialverhalten nicht gegeben. Zeitunabhängiges plastisches Verhalten führt dagegen zur Ausbildung eines homogenen Spannungszustandes.
- *Zeitabhängige, lastunabhängige Verformung*: Innerkristalline Wasseraufnahme führt bei bestimmten Tonen bei behinderter Ausdehnung zum Aufbau eines Quelldrucks, der wiederum von der Einbaudichte des VP-Materials sowie von Druck- und Zusammensetzung der zutretenden Lösung abhängt.

Aus einer Reihe von Materialien wie z.B. Kunststoffen, Filteraschen, Metallen, Ausbruchmaterialien, Zementen, Bitumen und Tonen, deren Einsatz als VP-Material möglich erscheint, verbleiben schon nach oberflächlicher Überprüfung anhand der **Materialparameter erster Ordnung** - wobei die Forderungen nach minimaler hydraulischer Leitfähigkeit und einem durch Analoga belegten Langzeitverhalten höchste Priorität haben - nur Tone, Bitumen und Zemente übrig. Bei weiterer Prüfung, auch anhand der Parameter zweiter Ordnung, stellt sich für die beiden letzten folgendes heraus:

**Zementstein** weist eine relativ hohe hydraulische Leitfähigkeit auf und hat keine Fähigkeit zum Ionenaustausch. Durch seine chemische Zusammensetzung, die über lange Zeiträume ein gleichbleibend stark alkalisches Milieu garantiert, werden zutretende Radionuklide durch Ausfällung immobilisiert. Zement/Beton ist bei An-

passung seiner Festigkeitsparameter durchaus in der Lage, die Anforderungen hinsichtlich Tragverhalten und Stützwirkung zu erfüllen.

**Bitumen** ist für wäßrige Medien praktisch undurchlässig. Deswegen müssen keine Anforderungen hinsichtlich Sorptionsverhalten und Ausfällung von Radionukliden erfüllt werden. Bitumen/Asphalt sind als alleinige Komponenten für die Puffer- und Verfüllzone nicht geeignet, da sie Flüssigkeitseigenschaften und daher praktisch keine Festigkeit besitzen, die Bedingungen hinsichtlich Wärmeabführung nicht erfüllen und weiterhin sehr stark temperaturabhängige Eigenschaften aufweisen. In Verbindung mit anderen Materialien können jedoch Bitumen, Asphalt, Gußasphalt einen wesentlichen Beitrag für die Nahfeldbarriere Verfüllung leisten.

Insgesamt erweisen sich bei Zementstein die relativ hohe hydraulische Leitfähigkeit und die geringe Fähigkeit zum Ionenaustausch als problematisch. Bitumen ist wegen schlechter Festigkeitseigenschaften als VP-Material nur in Kombination mit anderen Materialien denkbar.

### 3.1.2 Eigenschaften von Bentonit

Tone sind ein klastisches<sup>11</sup> Lockergestein mit Korndurchmessern unter 0,02 mm. Tone mit einem Anteil von mindestens 50 Prozent an besonders quellfähigem Montmorillonit (der Familie der Smektite angehörig) bezeichnet man als Bentonit. Bentonit hat geringe hydraulische Leitfähigkeit und hohe Kationenaustauschkapazität. Nach der Art des Zwischenschichtkations unterscheidet man zwischen Na- und Ca-Bentoniten. Europäische Vorkommen sind ausschließlich Ca-Bentonit. Für Hartgesteinkonzepte wurden Ca-Bentonit (Calcigel, Montigel) und Na-Bentonit (MX-80) aus Wyoming untersucht. Spezielle Fragen der Geochemie von Bentonit werden in Kap. 8, insbesondere in Kap. 8.4, behandelt.

#### **Hydraulische Leitfähigkeit**

Sie hängt stark von der Porenzahl ab. Porenzahl und Porosität wiederum werden von der Trockenrohddichte und der Korngrößenverteilung bestimmt. Mit Verkleinerung der Porenzahl, also mit Zunahme der Trockendichte, nimmt die hydraulische Leitfähigkeit ab. Na-Bentonit hat bei gegebener Porenzahl die geringste hydraulische Leitfähigkeit aller Tone, bei hoher Kompaktierung wird sie jedoch von der des Ca-Bentonits erreicht. Einbaudichten (Trockendichten) bis 2.000 kg/m<sup>3</sup> werden in der Literatur zitiert.

Ist der Bentonit mit Wasser gesättigt, so ergeben sich nach Aussage der schweizer Kristallin-I-Studie /NAG 94/ Leitfähigkeitswerte, die unter der Nachweisgrenze ( $10^{-16}$  m/s) liegen können. Das heißt, Bentonit ist praktisch wasserundurchlässig, sobald Sättigung erreicht ist, und Lösungstransport kann nur über Diffusion erfolgen.

Wichtig ist der Zeitpunkt, zu dem die Bentonitbarriere mit Wasser gesättigt ist, relativ zum Verlauf der Temperatur mit der Zeit. Bei der in GEISHA gewählten Anordnung von vertikalen Bohrlöchern mit Endlagerbehältern an den Ecken eines Rechtecks (10 und 25 Meter Kantenlänge), stellt sich das Temperaturmaximum von 100°C am Übergang Behälter-Bentonit nach ca. 20 Jahren ein (vgl. Kap 5.1.1). Im Abschlußbericht über die französischen Arbeiten zur Direkten Endlagerung /RAY 96/ wird als Zeitpunkt, zu dem sich Sättigung ergibt, 2.900 Jahre genannt. Das heißt, die Maximaltemperatur tritt lange vor Erreichen der Sättigung ein. Durch die sich ergebende Dehydrierung des Bentonits können zwar Schrumpfungsrisse entstehen, jedoch ist dieser Vorgang in diesem Temperaturbereich reversibel. Nur bei einem größeren Angebot an Kaliumionen würden Temperaturen über 100°C irreversible Schäden verursachen. Jedoch kann ein entsprechend großes Angebot an Kalium ausgeschlossen werden.

Bei Zumischung von Sand oder - kostengünstiger - Ausbruchsmaterial verschlechtert sich die hydraulische Leitfähigkeit. Letzteres wird beispielsweise beim französischen Konzept erwogen, jedoch über eine Erhöhung der hydraulischen Leitfähigkeit um drei Größenordnungen bei einem Anteil von 65 Prozent Granit-Ausbruchsmaterial berichtet.

### ***Gaspermeabilität***

Bei Verwendung von Stahl als Behältermaterial kann durch Behälterkorrosion Wasserstoff entstehen. Dieser kann nur durch Verdrängung des Porenwassers entweichen, was erst oberhalb eines kritischen Gasdrucks eintritt. Dabei werden die Bentoniteigenschaften nicht negativ beeinflusst, insbesondere kommt es zu keiner Fracrißbildung. Dieser kritische Druck ist proportional zur Einbaudichte des Bentonits und liegt bei 20 bis 90 Prozent des Quelldruckes, d.h. im Bereich zwischen 1 und 10 MPa.

### ***Chemisches Verhalten***

Im Kontakt mit Wasser existiert für Bentonite ein optimaler pH-Bereich, in dem Bentonit stabil ist und seine Eigenschaften kaum ändert ( $8 < \text{pH} < 10$ ). Durch die Fähigkeit zum Ionenaustausch des Zwischenschichtkations sind Bentonite und einige Tone in der Lage, äußerlich aufgetragene pH-Änderungen auszugleichen

(Pufferkapazität). Allerdings wird der Gleichgewichts-pH-Wert des Systems Ton-Wasser noch durch Lösereaktionen mit den im Ton enthaltenen Begleitmineralen (z.B. Karbonate, Pyrit) beeinflusst: insbesondere durch Pyrit (auch durch mikrobielle Zersetzung) in saure Richtung, durch Karbonate in basische Richtung. Quantitative Angaben zur Pufferkapazität von Bentonit sind bisher nicht bekannt.

Die Zusammensetzung des Porenwassers einer Bentonitverfüllung in einem Hartgesteinendlager stellt sich als Resultat der langsam ablaufenden Wechselwirkungen zwischen dem Bentonit, dem durch Konvektion zutretenden Grubenwasser und schließlich auch den Korrosionsprodukten des Abfallgebundes ein. Bei realistischem Bentonit-Wasser-Verhältnis (entsprechend dem Sättigungswassergehalt von ca. 20%) wird die Zusammensetzung der Porenwässer immer weniger durch die Ausgangszusammensetzung des jeweiligen Grundwassers bestimmt. Durch die Pufferwirkung des Bentonits wird sich eine annähernd gleichartige Zusammensetzung der Porenwässer bei einem pH-Wert von 8 bis 10 einstellen. Der weitere Austausch der Porenwässer erfolgt sehr langsam. Auf Basis der erforderlichen Wasseraustauschzyklen ergeben sich Zeiträume von fast 2 Mio. Jahren, bis das Porenwasser die Zusammensetzung des umgebenden Grundwassers angenommen hat. Dabei wird allerdings unterstellt, daß sich dessen Zusammensetzung in diesem Zeitraum nicht ändert.

Unter den möglichen Veränderungen des Montmorillonits, die das Langzeitverhalten beeinflussen, sei als wesentliches Beispiel die Illitisierung genannt. Die Beschreibung der geochemischen Vorgänge bei der Wechselwirkung zwischen Grundwasser und Bentonit, von der Porenwasserchemie bis hin zur Bildung von Magnetit - letzteres ein Produkt der Behälterkorrosion, das durch Volumenverdoppelung bei der Bildung aus Eisen die Möglichkeit einer Druckerhöhung in sich birgt -, erfolgt in Kap. 8; in Kap. 8.4 werden auch die Grenzen der Erkenntnis auf dem Gebiet der Porenwasserchemie erwähnt.

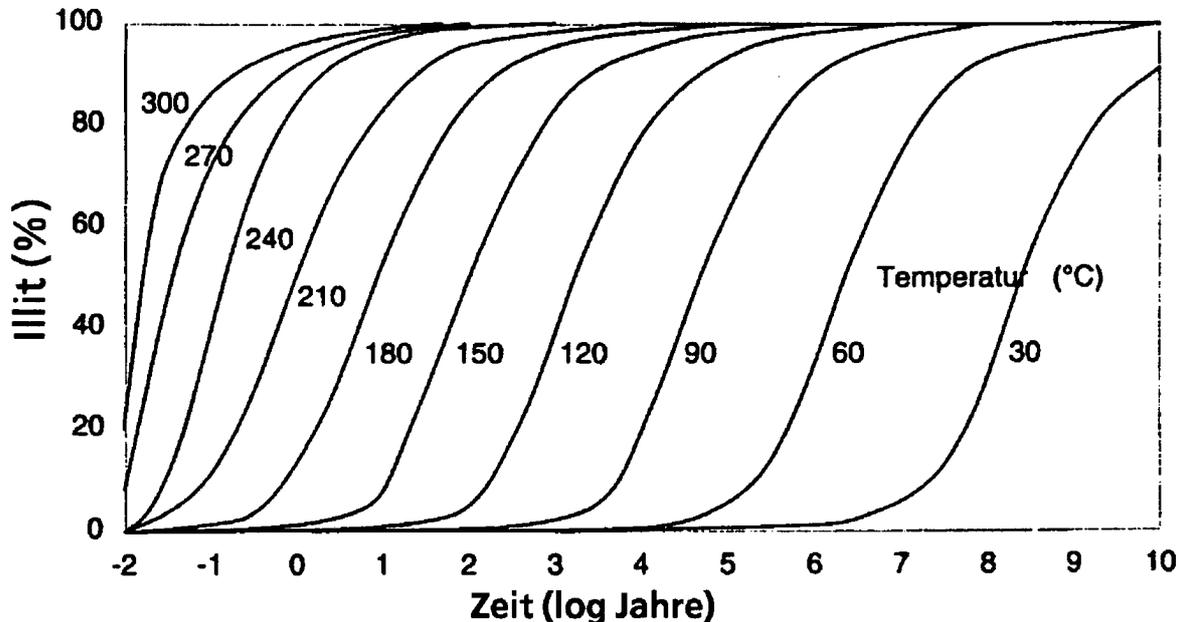
### ***Illitisierung***

Bei Anwesenheit von  $K^+$ - und  $Al^{3+}$ -Ionen im Wasser erfolgt die Umwandlung des Montmorillonits in zwei Stufen:

- Austausch von Silizium gegen Aluminium,
- Einbau von Kalium in die Zwischenschicht.

Diese Umwandlung von Smektiten in Illite führt zu einer Verschlechterung der Eigenschaften (Verringerung oder Verlust der Quellfähigkeit, Erhöhung der hydraulischen Leitfähigkeit etc.). Ca-Bentonit ist gegen Illitisierung resistenter als Na-

Bentonit. Die Umwandlung der Smektite in Illite wird stark von der Temperatur beeinflusst. Bild 3-1 stellt Ergebnisse von Modellrechnungen zur Umwandlungsgeschwindigkeit dar. Demnach setzt bei 100°C die Umwandlung nach ca. 1.000 Jahren ein.



**Bild 3-1: Berechnete Umwandlungsgeschwindigkeit von Smektit**

#### **Tragverhalten:**

Die Kriecheigenschaften von verdichtetem Bentonit führen zu einer homogenen Spannungsverteilung im Verfüllmaterial und z.T. auch im Gebirge, d.h. örtliche Spannungsspitzen werden abgebaut.

Bei Kriechraten von  $10^{-6} \text{ s}^{-1}$  wurden unter ungünstigsten Bedingungen - geringer Quelldruck um 0,1 MPa - für einen Zeitraum von 10.000 Jahren maximale Behälterabsenkungen von 1,2 mm durch das Eigengewicht vorhergesagt. Beim schweizer Streckenlagerungskonzept ergeben sich Absinkbeträge der Behälter von <1 mm in 10.000 Jahren. Im schwedischen Endlagerkonzept schließlich (senkrechte Bohrlöcher) üben die Behälter einen Druck von 0,4 MPa aus; dafür wurde ein Absinken von maximal 10 mm in  $10^6$  Jahren berechnet.

Bentonit in hochverdichteter Form erfüllt somit voll die Anforderungen hinsichtlich Tragverhalten.

#### **Quelldruck**

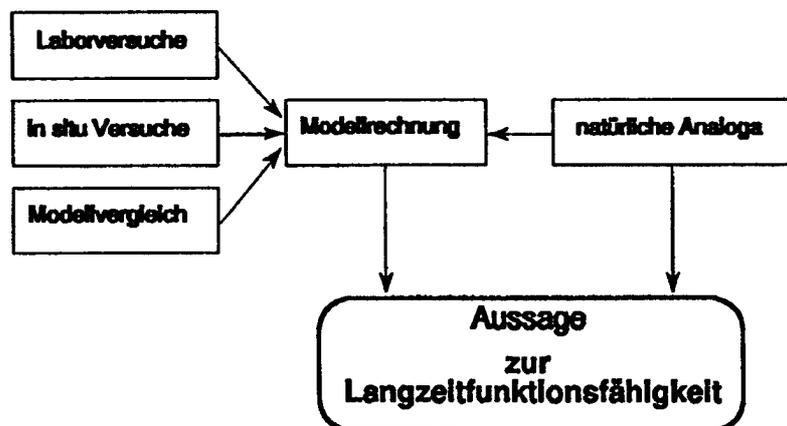
Bentonit kann innerkristallin durch Anlagerung an die Zwischenschichtkationen Wasser aufnehmen. Durch die Wasseraufnahme erfolgt eine Volumenexpansion

und damit ein Ausfüllen des freien Volumens im Nahfeld. Die sich dabei einstellende Dichte wird reduzierte Trockendichte bezeichnet. Ist der Bentonit nun noch weiter wasseraufnahmefähig, d.h. ist er bei der vorliegenden reduzierten Dichte noch im ungesättigten Zustand, so bildet sich bei weiterer Wasseraufnahme ein Quelldruck aus.

Für Trockendichten von 1,5 bis 1,9 g/cm<sup>3</sup> werden Quelldrücke von 1 MPa bzw. 30 MPa genannt /RAY 96/. Für praktische Belange kann es wegen der Gefahr eines Gebirgsfracs erforderlich werden, eine Quelldruckbegrenzung vorzunehmen.

### **Langzeitbeständigkeit**

Der Nachweis der Langzeitfunktionsfähigkeit einzelner Barrieren und des Endlagers insgesamt wird durch das Zusammenspiel von Modellrechnungen, Labor- und In-situ-Experimenten sowie das Studium natürlicher Analoga geführt. Nur letzteres liefert die Aussagekraft echter Langzeitversuche, da die Analoga über Zeiträume wirksam waren, die für die Endlagerung maßgebend sind. In Bild 3-2 ist skizziert, auf welche Weise natürliche Analoga herangezogen werden können, um den Nachweis der Langzeitfunktionsfähigkeit zu führen.



**Bild 3-2: Natürliche Analoga im Rahmen des Nachweises der Langzeitfunktionsfähigkeit**

Untersuchungen von Tonlagerstätten können nun dazu benützt werden, die rechnerisch und in Kurzzeit-Laboruntersuchungen ermittelte Barrierenwirksamkeit von Bentonit zu überprüfen. Drei Beispiele seien hier genannt: Bentonite in Kinnekulle (Schweden) und Montana (USA) sowie oberhalb der Uranerzlagerstätte Cigar Lake in Kanada.

Der Kinnekulle-Bentonit war durch eine Basaltintrusion über einige hundert Jahre Temperaturen von ca. 100°C ausgesetzt. Trotz eines Alters von 450 Millionen Jah-

ren ist die Illitisierung noch nicht abgeschlossen. Der Kaliumgehalt dieser Bentonit-Linse nimmt nach innen zu ab, d.h. die Transportgeschwindigkeiten des Kaliums waren sehr gering. Das Gemisch aus Illit und Smektit ist noch quellfähig, der Quelldruck liegt jedoch nur noch bei rund 25% des Quelldrucks von reinem Bentonit.

Der in Montana vor 110 Millionen Jahren entstandene Kaliumbentonit war sehr hohem Druck und hoher Temperatur (bis 200°C) ausgesetzt. Dieser Bentonit ist außerdem von kaliumreichen Tonschiefern umgeben, so daß die Bedingungen für eine Illitisierung günstig waren. Aus diesem Grund weist er eine wesentlich höhere Illitisierung auf als der viel ältere schwedische Bentonit.

Unter dem kanadischen Cigar Lake schließlich liegt ein riesiges Uranerzvorkommen (11 Prozent der gesamten bekannten Uranerzreserven). Über dem Erzlager befindet sich eine Tonschicht, die vorwiegend aus Illit besteht. Trotzdem erweist sich diese Tonschicht als wirksame Barriere gegen den Wasserstrom und als Schutz des 1,3 Mrd. Jahre alten Uranerzlagers.

### 3.1.3 Empfehlung für ein VP-Material bei GEISHA

Aus der Fülle möglicher Materialien und Materialkombinationen wird der Einsatz hochverdichteter Bentonitblöcke vorgeschlagen. Als Ausgangsmaterial kommen nur naturbelassene Bentonite in Frage. International werden zwei Sorten favorisiert, Na-Bentonit aus den USA (MX-80) und Ca-Bentonit aus bayrischen Vorkommen (Calcigel bzw. Montigel).

Ca-Bentonit besitzt gegenüber Na-Bentonit folgende Vorteile:

- In hochverdichtetem Zustand ( $1.800 \text{ kg/m}^3$ ) hat Ca-Bentonit eine ausreichend niedrige ( $10^{-14} \text{ m/s}$ ) bzw. keine höhere hydraulische Leitfähigkeit als Na-Bentonit, da sich die Eigenschaften beider Bentonitsorten mit zunehmender Dichte angleichen.
- Ca-Bentonit ist unter den geochemischen Bedingungen im Hartgestein die langzeitstabilere Form, da bei Grundwasserzutritt der Bentonit nur geringen Änderungen unterworfen wird.
- Durch den im Hauptmineral Montmorillonit bevorzugten Ionenaustausch von Na gegen  $\text{K} < \text{Mg} < \text{Ca}$  erfolgt eine langfristige Umwandlung eines eingebauten Na-Bentonits in Ca-Bentonit, wogegen sich ein eingebauter Ca-Bentonit

praktisch nicht verändert (nur bei großem Na-Überschuß gegenüber Ca ist eine Gleichgewichtsverschiebung in Richtung Na-Bentonit möglich).

- Ca-Bentonit besitzt eine höhere Resistenz gegen Illitisierung und gegen andere chemische Änderungen als Na-Bentonit.
- Hochverdichteter Ca-Bentonit ermöglicht bei gleicher Einbautrockendichte höhere Quelldrücke. In der Tabelle sind für zwei Trockenrohdichten (1.600 und 1.800 kg/m<sup>3</sup>) und zwei Wasserdrücke (0,6 und 10 MPa) die Quelldrücke (MPa) von Ca- und Na-Bentonit angegeben:

kg/m <sup>3</sup>	Quelldruck Ca-Bent.		Quelldruck MX-80	
	0,6	10	0,6	10
1.600	7	10-15	5	10-15
1.800	20	27	10-15	20

- Bei der Extrusion in Spalten und Klüfte ist der Substanzverlust durch Dispergierung geringer.
- Der international untersuchte Ca-Bentonit ist ein einheimisches Produkt.

Trotz des fortgeschrittenen Standes der Untersuchungen zu hochverdichteten Bentonitblöcken als Puffer- und Verfüllmaterial für Hochaktiv-Endlager in Schweden und der Schweiz wurde in diesen Ländern keine endgültige Entscheidung zwischen Na- und Ca-Bentonit getroffen. Es fällt daher schwer, diese Entscheidung für ein gedachtes deutsches Endlager an einem nicht festgelegten Standort zu fällen. Unter Beachtung der oben dargestellten Vorteile von Ca-Bentonit gegenüber Na-Bentonit wird jedoch im Rahmen des GEISHA-Vorhabens als Vorzugsvariante für ein VP-Material der Ca-Bentonit Calcigel bzw. Montigel vorgeschlagen.

### 3.2 Verfüllung bei Endlagerung im Salinar

Auch bei Endlagerung im Salinar ist der Versatz eine wichtige Komponente des Mehrbarrierensystems. Salzgrus ist wegen seiner Verträglichkeit mit dem Wirtsgestein und seiner Verfügbarkeit das bevorzugte Versatzmaterial. Er wird parallel zur oder nach der Einlagerung der Abfälle in Bohrlöcher und/oder Strecken eingebracht. Während die technischen Barrieren in der Betriebsphase den sicheren Einschluß gewährleisten, übernimmt der Versatz durch seine zeitabhängige Kompaktion infolge der Gebirgskonvergenz diese Aufgabe vor allem in der Nachbetriebsphase.

Versatz wird fast überall im Endlager benötigt, wobei die notwendigen Funktionen in den verschiedenen Endlagerbereichen unterschiedlich sind. Die Funktionen des Versatzes in Einlagerungsstrecken sind:

- Mechanische Stabilisierung der geologischen Barriere
- Beherrschung von Gasen
- Schadstoffrückhaltung und Abdichtung gegen Laugen
- Ableitung der Wärme aus den Abfällen.

Hinsichtlich der mechanischen Stabilisierung wurde im Salzbergwerk Asse durch Versetzen von Kammern Erfahrung gewonnen. Diese erprobte Technik findet in angepaßter Form bei der Verfüllung der Asse-Südflanke (2,5 Mio. m<sup>3</sup> Hohlraum) eine großtechnische Anwendung.

Infolge der Gebirgskonvergenz ergibt sich durch Kompaktion eine steigende Festigkeit des Versatzes mit zwei unmittelbaren Konsequenzen: der Verringerung der Durchlässigkeit des Versatzes und der Konvergenzgeschwindigkeit des Gebirges. Aus diesem Grunde kommt der Entwicklung eines Prognosemodells, mit dem das Versatzverhalten berechnet werden kann, eine grundlegende Bedeutung zu. Die konkrete Entwicklung eines derartigen Modells erfolgt parallel zu dem in der Asse durchgeführten TSS-Versuch /ROT 96/, bei dem das Verhalten von Salzgrus, mit dem sechs elektrisch beheizte Behälterattrappen versetzt sind, untersucht wird.

Um die Korrosion des Abfallgebindes und die damit verbundene Wasserstoffbildung - die zu hohen Drücken führen würde - so gering wie möglich zu halten, wird in unmittelbarer Nähe der Abfallgebände nur trockener Versatz eingebracht. Salzgrus eignet sich insbesondere zum Verschließen von Endlagerbereichen, in denen Gasentwicklung zu erwarten ist. Als Schüttgut besitzt er zunächst hohe Porosität und damit auch Permeabilität, wodurch das Korrosionsgas (Wasserstoff) anfänglich aus dem Endlager abströmen kann und die Bildung hohen Druckes vermieden wird. Durch die Abnahme der Versatzporosität und -permeabilität auf kleine Werte - unter Temperatureinfluß bis hin zu denen des „unverritzten“ Gebirges - wird in der Nachbetriebsphase eine hohe Dichtwirkung gegen Schadstoffaustrag erzielt.

Bei Laugenzutritt soll der Versatz dazu beitragen, die Freisetzung von radioaktiven Stoffen zu verhindern. Bei der bisher ausschließlich rechnerischen Behandlung dieses Störfallszenariums wurde bislang die Durchlässigkeit von Salzgrus aus den Gasuntersuchungen herangezogen. Dieses Vorgehen ist nur mit Einschränkungen zulässig, jedoch werden Ergebnisse zur Laugendurchlässigkeit aus Laboruntersuchungen in absehbarer Zeit vorliegen.

Ebenso laufen Untersuchungen zur Erhöhung der Rückhaltewirkung durch geeignete Zuschlagstoffe. Hydroxylapatit hat sich bisher als aussichtsreicher Kandidat erwiesen. Beim Endlager WIPP (Waste Isolation Pilot Plant) in den USA wird die Zugabe von 30 Prozent Bentonit zum Salzgrus in Einlagerungsräumen empfohlen, um die Laugendurchlässigkeit durch Erhöhung der Sorptionsfähigkeit zu verringern /BUT 91/.

Schließlich soll noch die Wärmeabfuhr vom Gebinde ans Gebirge erwähnt werden. Auch diesbezüglich wurden beim TSS-Versuch Rechen- und Meßergebnisse miteinander verglichen. Es ergab sich eine gute Übereinstimmung für Dichten zwischen 1.650 und 1.850 kg/m<sup>3</sup>.

Zusammenfassend läßt sich feststellen, daß ein **Vergleich der Barrieren** bei Endlagerung in unterschiedlichem Wirtsgestein zwar schwierig ist, jedoch die folgenden Fakten unbestritten sind: Im Nahbereich eines Hartgestein-Endlagers ist Tiefen Grundwasser bei Normalbetrieb vorhanden, das Endlager im Salinar ist dagegen trocken. Weiter ist im Salinar die geologische Barriere die Hauptbarriere; bei der Erkundung eines Salzstocks hat das Hauptaugenmerk auf den Nachweis der Integrität dieser Barriere zu liegen.

Hingegen sorgt Hartgestein zwar als geologische Barriere über lange Zeit für mechanisch und geochemisch stabile Verhältnisse /RÖT 95/. Genaue Kenntnis der komplexen Zusammenhänge im klüftigen Gebirge ist jedoch, wenn überhaupt, nur mit extremem Aufwand zu gewinnen. Daher kommt hier der geotechnischen und technischen Barrieren im Nahfeld das Hauptaugenmerk zu (vgl. Kap. 6). Vergleicht man schließlich die Robustheit der Barrieren, so hat der Bentonit zusammen mit der technischen Barriere - beide in Summe im Meterbereich liegend - die gleiche Wirksamkeit zu erbringen wie hunderte Meter Salz.



## 4 ENDLAGERBEHÄLTER

### 4.1 Werkstoffe für Endlagerbehälter

Ein Endlagerbehälter muß eine Reihe von Aufgaben erfüllen, wovon die folgenden am wichtigsten sind:

- Sowohl der Behältergrundwerkstoff als auch die Behälterverschlußstelle müssen sowohl beim Normalbetrieb als auch unter realistischen Störfallbedingungen korrosionsresistent über die geforderte Behälterstandzeit sein.
- Die Werkstoffe müssen stabil gegen radioaktive Strahlung sein und möglichst große Abschirmwirkung haben.
- Die Materialien müssen in ausreichenden Mengen und zu vertretbaren Kosten verfügbar sein.
- Die Behälter müssen so konstruiert sein, daß die Handhabungslasten, insbesondere die mechanische Langzeitbeanspruchung im Endlager, aufgenommen werden können. Dabei muß sichergestellt sein, daß Zugspannungen nicht auftreten oder sehr klein sind.
- Die Konstruktion aus den verwendeten Materialien muß technisch sicher herstellbar und die Qualität kontrollierbar sein. Besondere Beachtung gilt der Verschlußtechnik der Endlagerbehälter, da das Verschließen bei manchen Konzepten fernbedient erfolgen muß.

Unter diesen Anforderungen werden metallische und nichtmetallische Materialien/Schichten als mögliche Behälterwerkstoffe beurteilt.

In den Ländern mit einander ähnlicher Problemstellung wurden nur metallische Werkstoffe für die Referenzkonzepte ausgewählt. Der Grund hierfür liegt in Werkstoffeigenschaften wie Festigkeit, Fügbarkeit (z.B. Schweißen) und Strahlenbeständigkeit. Weiter sind die Eigenschaften und Herstellverfahren dieser Werkstoffe in international anerkannten Normen festgelegt, so daß sie stets in reproduzierbarer Qualität bezogen werden können.

Die metallischen Behälterwerkstoffe sind in zwei Gruppen einteilbar, korrosionsbeständige und Korrosion zulassende (*corrosion allowance*) Werkstoffe.

#### 4.1.1 Korrosionsbeständige metallische Werkstoffe

Es handelt sich hierbei um Materialien mit geringer Korrosionsrate wie Titan und seine Legierungen, Nickelbasislegierungen, hochlegierte (Chrom >13%, Nickel

>8%) Stähle sowie Kupfer und Kupferlegierungen. Diese Werkstoffe erhalten ihre Korrosionsbeständigkeit durch stabile oxidische Schichten. Allerdings können die Schutzschichten zerstört werden, was zur Lokal- oder Spannungsrißkorrosion führen kann. Ihr Einsatz als Behälterwerkstoff ist nur dann vertretbar, wenn Loch-/Spaltkorrosion und insbesondere Spannungsrißkorrosion ausgeschlossen werden können. Auslösend für ein Aufbrechen der Deckschicht ist in den meisten Fällen ein hoher Chloridgehalt in Laugen und Wässern. Mit steigender Temperatur sind bereits geringe Chloridgehalte wirksam. Bei Stählen und Nickelbasislegierungen erhöhen steigende Chrom-, Nickel- und Molybdängehalte die Stabilität gegen Lochkorrosion.

Die hochlegierten Stähle sind sowohl in konzentrierten Salzlösungen als auch granitischen Wässern mit hoher Chloridionenkonzentration anfällig gegen Lokal- und Spannungsrißkorrosion. Selbst die Nickelbasislegierung Inconel 625 (21,8% Cr, 8,5% Mo in Ni) zeigt bei hoher Temperatur Anfälligkeit gegen Spaltkorrosion.

Relativ gut schneidet die Nickelbasislegierung Hastelloy C4 (19,4% Cr, 13,8% Mo in Ni) ab. Sie war Korrosionsschutz für den Referenz-Endlagerbehälter beim Entsorgungsvergleich Anfang der 80er Jahre /CLO 84/, und zwar in Form aufgeschweißter Bleche oder als Auftragsschweißung. Im Verlauf der weiteren FuE-Arbeiten zur Direkten Endlagerung bildete Hastelloy C4 in Form einer Auftragsschweißung den Korrosionsschutz beim Behälterkonzept POLLUX /BEC 89/.

Ausführliche Untersuchungen der Korrosionsbeständigkeit von Hastelloy C4 wurden am Forschungszentrum Karlsruhe durchgeführt /SMA 93/. Versuche in NaCl-reicher Salzlauge (26% NaCl) bei 150°C ergaben äußerst niedrige Abtragsraten der Größenordnung 0,1 µm/Jahr. In MgCl<sub>2</sub>-reicher Lauge (30% MgCl<sub>2</sub>) wurden deutlich höhere Abtragsraten beobachtet (5 µm/Jahr). Zusätzlich trat lokal Lochkorrosion auf; es wurden maximale Angriffstiefen von 900 µm nach 18 Monaten Versuchszeit gemessen. Ein ähnlicher lokaler Korrosionsangriff zeigte sich auch bei den Versuchen mit NaCl-reicher Lauge bei gleichzeitiger Anwesenheit von Sulfiden.

Insofern hängt die Verwendbarkeit von Hastelloy C4 stark von den Gegebenheiten eines Standortes ab.

Als möglicher Ausweg bietet sich die Verwendung von Titan und seiner Legierungen an, insbesondere Ti 99,8-Pd. Unter allen Prüfbedingungen zeigt es sowohl in Salzlösungen als auch Granitwässern geringe Flächenkorrosion (<1 µm pro Jahr) und Beständigkeit gegen Lochkorrosion und Spannungsrißkorrosion. Für den endgültigen Nachweis der Eignung von Titan und seiner Legierungen als Behälterwerkstoff

sind jedoch weitergehende Untersuchungen erforderlich, die die Prüfung der Beständigkeit gegen Spaltkorrosion, die Wirkung von Verunreinigungen (z.B. Sulfide) des Korrosionsmediums und die Versprödung durch Wasserstoffaufnahme umfassen.

Kupfer und seine gebräuchlichen Legierungen befinden sich in der elektrochemischen Spannungsreihe in der Nähe der edleren Metalle. In sauerstofffreien Wässern ist Kupfer thermodynamisch stabil. In Gegenwart von gelöstem Sauerstoff und anderen Oxidantien (z.B.  $H_2O_2$ ), wie sie bei der Gamma-Radiolyse des Wassers entstehen, kann Lokalkorrosion auftreten, die auch in Gegenwart von Chloridionen befürchtet werden muß. Stärkere Flächenkorrosion wird nicht beobachtet. So zeigen sauerstofffreies Kupfer und Kupfer-Nickel-Legierungen in sauerstofffreien  $MgCl_2$ -Laugen mit ca.  $0,1 \mu m/Jahr$  recht niedrige Korrosionsraten. Kupfer kann durch Sulfide, die in Wässern enthalten sind, oder die durch mikrobielle Aktivitäten aus Sulfat gebildet werden, angegriffen werden.

Die angeführten Gründe und auch der im Vergleich zu Stählen relativ hohe Preis sind Argumente dafür, Kupferwerkstoffe erst nach weiteren Untersuchungen als Behälterwerkstoff auszuweisen.

#### 4.1.2 Korrosion zulassende Werkstoffe

Unter diesem Begriff sind unlegierte und niedrig legierte Stähle zu verstehen. Ergebnisse von Korrosionsuntersuchungen an niedrig legierten Stählen - TStE460 (0,51% Nickel, 0,15% Vanadium) und 15 MnNi 6.3 (0,79% Nickel) - werden wiederum in /SMA 93/ beschrieben. Danach tritt sowohl in NaCl-reicher als auch  $MgCl_2$ -reicher Lauge ein gleichmäßiger Flächenabtrag auf, der maximal  $200 \mu m$  pro Jahr erreicht. In keinem der untersuchten Fälle wurde Lokalkorrosion festgestellt, ebensowenig bei Anwesenheit von Sulfiden.

Lineare Extrapolation der Korrosionsraten ergibt, daß eine Standzeit der Endlagerbehälter von 500 Jahren in NaCl-reicher Lösung durch einen Korrosionszuschlag von, je nach Stahlsorte, 30-35 mm erreicht werden kann, in  $MgCl_2$ -reicher Lösung durch 60-100 mm.

## 4.2 Endlagerbehälter für Hartgestein

Die Verhältnisse in Granitformationen sind im Hinblick auf Korrosion als wesentlich milder einzuschätzen als in Steinsalz. Das liegt zum einen an den Temperaturen an der Behälteroberfläche ( $\leq 100^\circ\text{C}$ ), zum anderen am geringen Korrosionspotential der Wässer. Daraus läßt sich der Schluß ziehen, daß Werkstoffe, die als geeignete Behältermaterialien in Salz ausgewählt wurden, auch im Kristallin eingesetzt werden können. Unter diesen Bedingungen können auch Hastelloy C4 und andere Nickelbasislegierungen wieder in den Kreis der Kandidaten aufgenommen werden. Der korrosionsbedingte Materialabtrag wird geringer sein als in Salz. Die erforderliche Wandstärke des Behälter-Grundkörpers wird vor allem durch die mechanischen Beanspruchungen und die Anforderungen des Strahlenschutzes bestimmt.

In Kapitel 2 wurde festgelegt, im Rahmen von GEISHA sich auf schweizer Kristallin zu beziehen. Durch Untersuchungen der NAGRA liegen fundierte Analysen für Wässer im grenznahen Bereich zu Deutschland vor. Eine Auswertung der Analyse-daten zeigt, daß

- die pH-Werte überwiegend im schwach alkalischen Bereich liegen
- die Eh-Werte ein reduzierendes, allenfalls schwach oxidierendes Milieu charakterisieren
- Sauerstoffgehalte niedrig sind, häufig ist Sauerstoff nicht nachweisbar
- Chloridgehalte vergleichsweise niedrig sind
- Sulfidionen nicht nachgewiesen werden können.

Daraus ist ableitbar, daß diese Wässer eine geringe Korrosivität aufweisen, so daß selbst beim Einsatz von Korrosion zulassenden Werkstoffen mit nur geringen Abtragsraten gerechnet zu werden braucht. Unter Berücksichtigung der einfachen und reproduzierbaren Herstellbarkeit von Behältern, der Schweißbarkeit und der Qualitätssicherung werden **als Materialien für langzeitbeständige Behälter unlegierte oder niedrig legierte Stähle empfohlen**. Dabei sind insbesondere die Stähle GS40, TStE355, 15MnNi6.3 und TStE460 zu nennen.

Der Werkstoff GS40 wurde von NAGRA in den gegebenen Medien intensiv untersucht. Die veröffentlichten Daten zeigen, daß ein Korrosionszuschlag von 50 mm auf die aus mechanischen Gründen erforderliche Wandstärke ausreicht, um bei Temperaturen  $\leq 100^\circ\text{C}$  die üblichen Lebensdaueranforderungen von 1.000 Jahren sicher zu gewährleisten. Die anderen drei Stähle wurden von FZK-INE untersucht; es ergab sich, daß für diese selbst in hochkonzentrierten NaCl-Lösungen bei  $150^\circ\text{C}$  ein Korrosionszuschlag von 40-70 mm pro 1.000 Jahren ausreichend ist. Die zu be-

trachtenden Granitwässer und die niedrige Temperatur lassen deutlich geringere Korrosionsraten bzw. Korrosionszuschläge erwarten. Sollten sich bei dem noch auszuwählenden konkreten Endlagerstandort korrosivere Bedingungen ergeben, besteht die Möglichkeit, die Stahlbehälter mit einem dünnen Mantel aus hochkorrosionsbeständigem Werkstoff, z.B. Titan oder Nickelbasislegierungen, zusätzlich zu schützen.

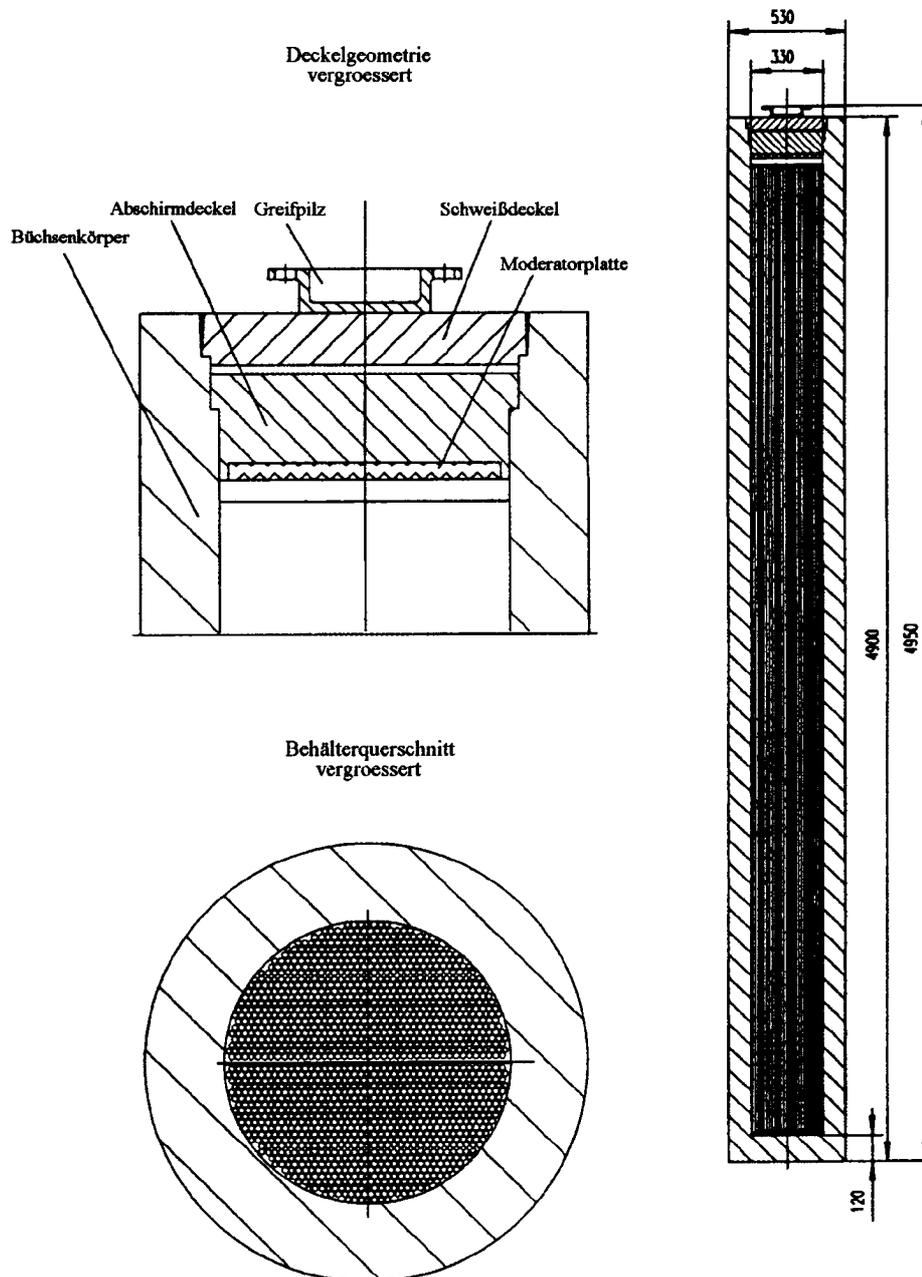
Während für die Werkstoffauswahl vor allem die Korrosionsbeständigkeit bestimmend ist, ist für das Fassungsvermögen des Endlagerbehälters und damit die Behälterauslegung insgesamt die zulässige Temperatur an der Behälteroberfläche entscheidend. In Steinsalz können in einem POLLUX-Behälter acht bis zehn Brennelemente nach ca. 30 Jahren Abkühlzeit endgelagert werden, ohne daß die Auslegungstemperatur von 200°C überschritten wird. Um hingegen mit DWR-Brennelementen von 45.000 MWd/t Entladeabbrand die Grenztemperatur von 100°C am Übergang Behälter-Bentonit einhalten zu können, darf der Endlagerbehälter nur mit drei Brennelementen, die 60 Jahre gekühlt sein müssen, beladen werden. Die drei Brennelemente werden auf Vorschlag der Gesellschaft für Nuklearbehälter (GNB) in ihre Brennstäbe zerlegt und anschließend in den Behälter eingebracht. Die verbleibenden Strukturteile von je acht Brennelementen werden kompaktiert und in einem Behälter gleichen Typs endgelagert.

Der Behälter setzt sich aus einem dickwandigen Rohr und einem angeschweißten Boden zusammen. Der Schachtraum wird verschlossen, indem zuerst ein Abschirmdeckel mit dem Behälterkörper verschraubt und dann ein Schweißdeckel gasdicht angeschweißt wird (Bild 4-1).

Der Behälterkörper und die beiden Deckel bestehen ebenfalls aus dem Feinkornbaustahl 15MnNi6.3. Als mantelseitiger Druck im Endlager werden 20 MPa angenommen. Für eine Wandstärke von 50 mm zeigen Rechnungen, daß bei einem Druck von ca. 60 MPa eine plastische Verformung des Behälters im Mantelbereich einsetzt, ohne daß jedoch die Gasdichtheit beeinträchtigt wird. Damit weist der Behälter den Sicherheitsfaktor 3 gegen den Auslegungsdruck von 20 MPa auf.

Im Hartgestein ist Korrosion durch Grundwasser zu unterstellen. Wie bereits erwähnt, zeigten Untersuchungen, daß 40 - 70 mm des Stahls 15MnNi6.3 in hochkonzentrierter NaCl-Lösung bei 150°C eine Lebensdauer von 1.000 Jahren ermöglichen. Es wurde für diesen Endlagerbehälter in Hartgestein ein Korrosionszuschlag von 50 mm auf die aus mechanischen Gründen gewählte Wandstärke von ebenfalls 50 mm festgelegt. Die gesamte Wandstärke ist somit 100 mm, der Außendurchmesser des Behälters beträgt 530 mm. Beladen wiegt er 7.950 kg. Bild 4-1 zeigt das

Endlagergebinde sowie Details des Doppeldeckelsystems. Für den Transport im Endlager wird zusätzlich ein 25 Tonnen schwerer, wiederverwendbarer Einzelabschirmbehälter aus Sphäroguß eingesetzt.



**Bild 4-1: 3-BE-Endlagergebinde für Hartgestein (Abmessungen in mm)**

Zur Beladung des Endlagerbehälters mit abgebranntem Brennstoff werden die in der Heißen Zelle einer Konditionierungsanlage aus den Brennelementen gezogenen Brennstäbe direkt in den Endlagerbehälter, der an die Heiße Zelle angedockt ist, eingebracht. Dazu sind folgende Handhabungsschritte erforderlich:

- Zerlegen des Brennelements und Ablegen der einzelnen Brennstäbe in einem Trog. Der Querschnitt des Troges entspricht dem halben Schachtquerschnitt des Endlagerbehälters. Der Trog kann die Brennstäbe von 1½ Brennelementen aufnehmen.
- Umsetzen des Troges vom Zerlegetisch auf die Befülleinrichtung.
- Einschieben des Troginhaltes mit einem Stempel in den Endlagerbehälter.

Damit ist der halbe Querschnitt des Endlagerbehälters befüllt. In der Mitte ist eine Trennwand eingeschweißt, die es ermöglicht, daß der Behälter nun um 180°C gedreht und der zweite Halbquerschnitt befüllt wird.

Nach der Befüllung wird der Abschirmdeckel eingeschraubt und der Behälter durch Aufschweißen des Schweißdeckels gasdicht verschlossen. Der geschlossene und geprüfte Endlagerbehälter wird zur weiteren Zwischenlagerung in einen Transport- und Lagerbehälter oder zum Transport in das Endlager in einen Transportbehälter geladen. In Tabelle 4-1 ist dieser Endlagerbehälter (Spalte Deutschland/Granit) zusammen mit den weltweit für die Direkte Endlagerung geplanten Endlagerbehältern aufgeführt. Die Tabelle zeigt die in der Regel geringen Uranmengen pro Endlagerbehälter für andere Endlagermedien als Steinsalz. Ausgenommen von dieser Regel sind ein kanadisches Konzept (geringer Abbrand und damit geringe Wärmeentwicklung des CANDU-Brennelements) und die Konzepte der USA. Bei letzteren wird für die Endlagerung in vulkanischem Tuffgestein nach dem jetzt gültigen Konzept über lange Zeit eine Temperatur über 100°C angestrebt, um das Umgebungswasser zum Verdampfen zu bringen.

Wichtig ist an dieser Stelle folgender Hinweis: Entwicklungsstand und Verwendungszweck der beiden deutschen Behältertypen sind nicht miteinander vergleichbar. Bei Granit kann der der Konzeptstudie GEISHA zugrunde gelegte Behälter ausnahmslos als Endlagerbehälter verwendet werden. Bei Salz handelt es sich um den POLLUX-Behälter, der mehrere Funktionen erfüllt: er ist selbstabschirmend und kann nicht nur als Endlagerbehälter verwendet werden, sondern ist zusätzlich als Zwischenlager- und Transportbehälter ausgelegt. Einer Weiterentwicklung des Behälterkonzepts könnte das Prinzip des amerikanischen MPC (Multi Purpose Canister) zugrunde gelegt werden, bei dem ein Innenbehälter mitsamt den Brennelementen von verschiedenen *overpacks* für die wechselnden Aufgaben versehen wird. Bei der sogenannten „Frühen Kapselung“, einer deutschen Neuentwicklung, wird ein ähnlicher Ansatz verfolgt /DAN 97/.

Behälter-Merkmale	Schweden KBS-3	Spanien		Kanada		USA		Deutschland	
		Granit	Salz <sup>2)</sup>	TWPP <sup>3)</sup>	Beton	Referenz	MPC <sup>4)</sup>	Granit <sup>1)</sup>	Salz <sup>2)</sup>
Länge (mm)	4.500	4.540	5.400	2.550	3.600	4.760	4.900	4.900	5.500
Durchmesser (mm)	800	830	1.660	630	x	660	1.530	530	1.500
Wandstärke (mm)	100	100	360	6	x	10	25	100	430
U-Masse (t)	2	1,4	3,2	1,4	7,3	3	11	1,6	4,3
Gesamtmasse (t)	20	13	70	3	63	7	x	8	65
Auslegungsdruck (MPa)	15	x	x	12,5	x	Atmosphärendruck		20	30
Temperatur an Behälteroberfläche (°C)	100	100	200	100	x	möglichst lange >100		100	200
Lebensdauer (a)	10 <sup>4</sup> -10 <sup>6</sup>	500 (Salz), 1.000 (Granit)		500 Jahre			x	500 Jahre (Salz), 1.000 Jahre (Granit)	
<sup>1)</sup> GEISHA		<sup>3)</sup> Thin Walled Packed Particulate					x	keine Angaben	
<sup>2)</sup> selbstabschirmend		<sup>4)</sup> Multi Purpose Canister							

Tabelle 4-1: Kenngrößen von Behältern der Direkten Endlagerung

## 5 ENDLAGER

### 5.1 Endlager in Hartgestein

In einer Reihe von Ländern liegen Konzeptplanungen für Endlager in Hartgestein vor. Den Konzepten gemeinsam ist der kompaktierte Bentonit als die geotechnische Barriere im Nahbereich und damit eine Maximaltemperatur von 100°C am Übergang Behälter-Bentonit, weiter die Verfüllung des erweiterten Nahbereichs mit einem Gemisch aus Sand und Bentonit. In jeder Planung wird der Langzeitsicherheit Vorrang vor allen anderen Zielgrößen eingeräumt.

Aktivitäten zu Hartgestein als Endlagermedium haben sich in Deutschland auf die eingangs beschriebene Bewertung von Standortregionen in den Alten und den Neuen Bundesländern sowie die Beteiligung an den wissenschaftlichen Arbeiten in den Untertagelabors Äspö und Grimsel beschränkt. Insofern beruht das im folgenden beschriebene Referenzkonzept für GEISHA auf ausländischen, insbesondere schwedischen Arbeiten (KBS-3-Konzept).

#### 5.1.1 Planung des Grubengebäudes

Um Vergleichbarkeit mit Salz zu wahren, wird das Endlager in Anlehnung an die Systemanalyse Mischkonzept /BEC 89/ geplant. Beispielsweise werden die Endlagergebäude im Endlager auf Schienen transportiert, obwohl allein aufgrund ihres Gewichts die Möglichkeit des gleislosen Transports bestünde. Das Grubengebäude ist in ca. 900 m Teufe angenommen und einsöhlig ausgelegt. Die Frage der Mehrsöhligkeit muß in Hartgestein noch geklärt werden, insbesondere weil, wie im Kapitel „Erkundung“ ausgeführt, die Lokalisierung eines genügend großen Bereichs geringer Durchlässigkeit im Hartgestein ein schwieriges Unterfangen ist.

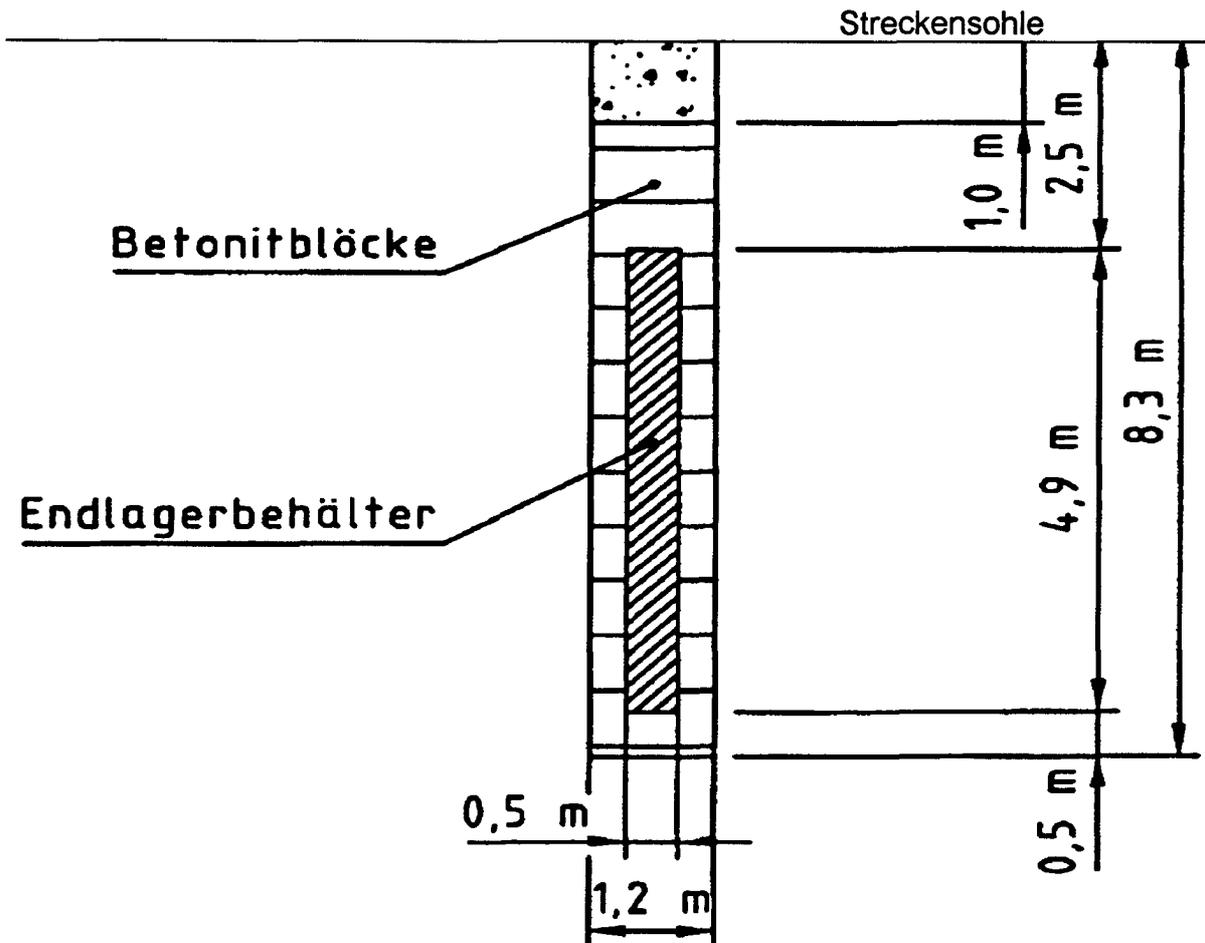
Das Endlager wird in einem an der Oberfläche aufgeschlossenen Kristallinvorkommen errichtet. Wegen der hohen Standfestigkeit des Gesteins ist beim Abteufen der Schächte kein Schachtausbau notwendig. Das Abteufen erfolgt konventionell mit Bohren und Sprengen. Es sind zwei Schächte vorgesehen, wobei im Frischwetter-schacht Personen und Material, im ausziehenden Wetterschacht die Gebinde transportiert werden. Falls man beim Vortrieb auf wasserführende Klüfte stößt, werden diese durch Injektionen abgedichtet. Nach Abteufen der beiden Schächte auf eine Teufe von ca. 900 m werden diese mit Hilfe eines Querschlag verbunden, um den Hauptwetterzug herzustellen. Nach Fertigstellung der Füllorte werden die Infrastrukturbereiche für die bergmännischen Arbeiten aufgefahren. Diese unterscheiden sich im wesentlichen nicht von denen im Salz.

Als nächstes erfolgt die Erkundung des Einlagerungsbereichs durch Umfahrung des für die Einlagerung vorgesehenen Bereichs, wobei der Querschnitt der Umfahungsstrecke geringer ist als der für den Betrieb vorgesehenen Strecken. Nach einem positiven Planfeststellungsbeschluss beginnt die Phase der Errichtung des Endlagers. Nach Erweiterung der Transportstrecken auf den für den Betrieb des Endlagers vorgesehenen Streckenquerschnitt wird das erste Einlagerungsfeld aufgefahren. Im Gegensatz zu Salz ist es in Granit wegen der hohen Standsicherheit möglich, Einlagerungsfelder komplett aufzufahren und anschließend die vertikalen Bohrlöcher abzuteufen. Die Einlagerungsstrecken sollen mit Hilfe von Vollschnittmaschinen erstellt werden. Der dabei entstehende runde Querschnitt der Einlagerungsstrecken muß durch geeignete Techniken auf das vorgesehene Profil gebracht werden.

Das Haufwerk wird wie beim Salzkonzzept von Schaufelladern zu Kippstellen und weiter von Muldenkippern größerer Kapazität zum Schacht transportiert. Dort wird es in Bunkern zwischengelagert, bevor es nach über Tage gebracht wird.

Nach dem Auffahren der Einlagerungsstrecken werden vom Streckenende her die vertikalen Einlagerungsbohrlöcher in die Sohle gebohrt. Eine Bohrlochmaschine zum Abteufen der Pilotbohrlöcher und Bohrgerät werden dazu in die Einlagerungsstrecke gebracht. Zunächst wird eine Kernbohrung von ungefähr 15 cm Durchmesser abgeteuft und anhand des Bohrkerns über die Eignung des Bohrlochs entschieden. Danach wird es zur Einlagerung erweitert. Es werden alle für die Einlagerung in einer Strecke benötigten Bohrlöcher gebohrt, die fertiggestellten Bohrlöcher provisorisch abgedeckt und gesichert. Erst wenn alle Bohrlöcher einer Einlagerungsstrecke fertig sind, werden die Bohrmaschine und das Bohrgerät in die folgende Strecke umgesetzt. Vor der Einlagerung wird das Bohrloch mit Bentonit ausgekleidet.

Nacheinander wird je ein Behälter in die Bohrlöcher einer Strecke abgelassen. Dabei wird ein mit Strukturteilen befülltes Gebinde nach je zwei Gebinden mit Brennelementen positioniert. Jedes Bohrloch wird nach der Befüllung sofort mit Bentonitblöcken verschlossen. Die Bohrlöcher haben eine Tiefe von 8,3 m und einen Durchmesser von 1,2 m. Sobald die Bohrlöcher einer Strecke befüllt und verschlossen sind, wird die Strecke mit einem Sand-Bentonitgemisch versetzt und abgeworfen. Bild 5-1 zeigt das Bohrloch.



**Bild 5-1: Bohrlochlagerung in Hartgestein**

Die Einlagerung beginnt von der Feldesgrenze her im Rückbau auf die Schächte zu, damit befüllte Strecken und Felder sofort nach Einlagerungsende versetzt und abgeworfen werden können. Sie brauchen dann nicht mehr bewettert zu werden. Bei der Bewetterung ist darauf zu achten, daß der kerntechnische und der bergtechnische Bereich getrennt bewettert werden müssen. Die Strecken werden durch Wetterbohrlöcher an die Abwetterstrecken angeschlossen. Die Abwetter werden durch Abwetterstrecken abgeführt, so daß sich Personen immer im Bereich von Frischwettern aufhalten. Es wird der konventionelle bergmännische Bereich vom Kontrollbereich durch Wetterverschlüsse und Wetterschleusen getrennt.

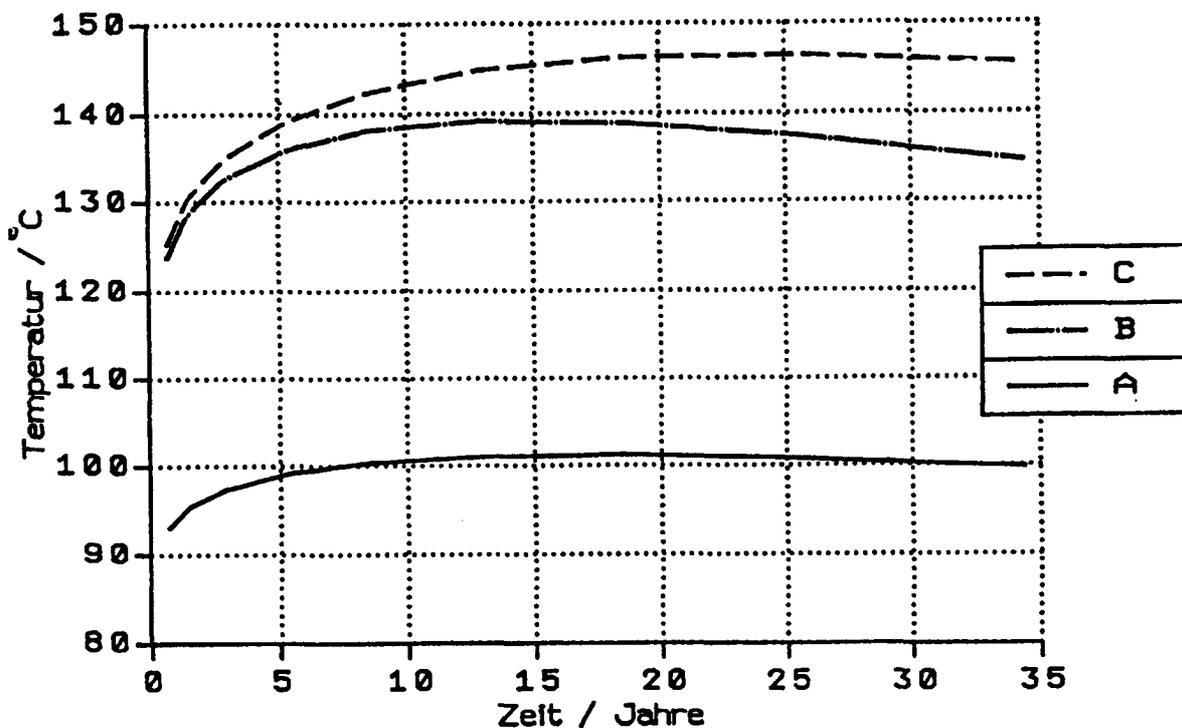
In einem Endlager in Granit müssen evtl. auftretende Grubenwässer nach über Tage abgepumpt werden. Durch eine leichte Neigung der Strecke kann erreicht werden, daß Grubenwässer in Richtung Schachtsumpf abfließen.

Für das nach schwedischem Vorbild (KBS-3) konzipierte Bohrloch wurden Temperaturrechnungen in drei Varianten für den Basisfall (Entladeabbrand 45.000 MWd/t) durchgeführt /KOR 94/, eine für eine maximale Temperatur von 100°C an der

Grenzfläche Behälter-Bentonit (Fall A), zwei für Temperaturen bis 150°C (Fälle B und C):

Fall A:	3 BE,	Kühlzeit 60 Jahre,	1.090 W,	10 m BL-Abstand
Fall B:	3 BE,	Kühlzeit 30 Jahre,	1.795 W,	8 m BL-Abstand
Fall C:	5 BE,	Kühlzeit 60 Jahre,	1.817 W,	8 m BL-Abstand.

Der Abstand zwischen den Einlagerungsstrecken beträgt einheitlich 25 m. Bild 5-2 zeigt den Verlauf der maximalen Bentonit-Temperatur über die Zeit. Bei Fall A wird die 100°C-Vorgabe voll ausgeschöpft, denn eine weitere Vergrößerung des BL-Abstandes würde keine nennenswerte Temperaturemniedrigung bewirken. Bei B und C wäre eine Verringerung des BL-Abstandes oder eine leichte Erhöhung der Gebindeleistung zulässig, um die 150°C-Grenze zu erreichen.



**Bild 5-2: Temperatur am Übergang Behälter-Bentonit**

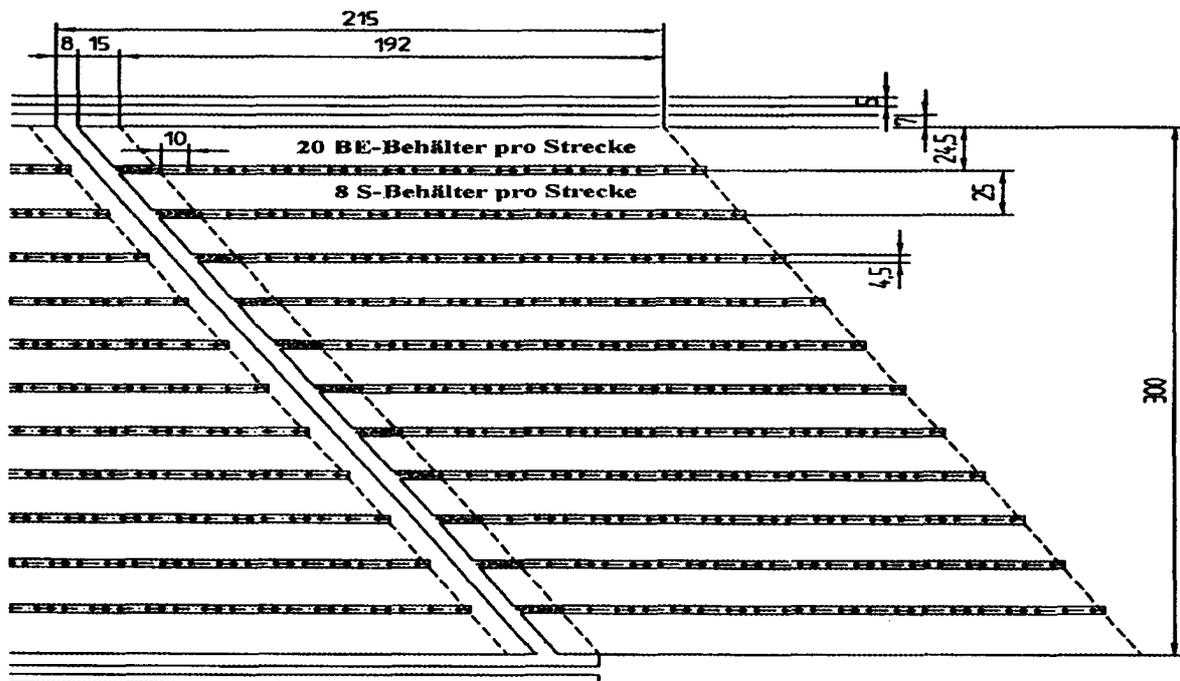
Eine Erhöhung des Entladeabbrandes der Brennelemente würde zu der folgenden Erhöhung der erforderlichen Kühlzeit vor Endlagerung führen: Von 60 Jahren bei 45.000 MWd/t auf etwa 70 Jahre bei 50.000 MWd/t und annähernd 90 Jahre bei 60.000 MWd/t. Für MOX-Brennstoff im gleichen Abbrandbereich würden Kühlzeiten von einigen hundert Jahren erforderlich sein, mit der Konsequenz, daß weniger als drei BE pro Endlagerbehälter eingelagert werden können, um zu einigermaßen akzeptablen Zwischenlagerzeiten zu kommen. Im Rahmen der „Systemanalyse

Endlagerkonzepte“ wurde die Endlagerung von MOX-BE in POLLUX-Behältern in Salz untersucht /PAP 94/. Für eine Teilbeladung von vier MOX-BE (Abbrand 45.000 MWd/t) pro POLLUX ist eine Einlagerung schon nach 20-30 Jahren möglich.

Aus den Abmessungen der Einheitszelle für Basis-Fall A (25 m x 10 m) lassen sich erste Angaben über den **Platzbedarf im Endlager** ableiten und mit Daten aus der Literatur (für Salz aus der Systemanalyse Mischkonzept /BEC 89/, für Yucca Mountain aus /DOE 95/) vergleichen:

- Fall A,	60 Jahre Kühlzeit	3-BE-Behälter:	6 kg SM/m <sup>2</sup>
- Salz,	30 Jahre Kühlzeit	8-BE-POLLUX:	30 kg SM/m <sup>2</sup>
- Salz,	60 Jahre Kühlzeit	8 BE-POLLUX:	50 kg SM/m <sup>2</sup>
- USA,	Yucca Mountain:	10 kg SM/m <sup>2</sup>	<Platzbedarf<20 kg SM/m <sup>2</sup> .

Die Strecken in einem Einlagerungsfeld sind in Bild 5-3 dargestellt. Zwecks Vergleichbarkeit hat das Einlagerungsfeld die gleichen Abmessungen wie in der Systemanalyse Mischkonzept. Ein Feld besteht aus 11 Einlagerungsstrecken, mit einem Streckenabstand von 25 m. Der Bohrlochabstand zwischen den mit Brennelementen befüllten Gebinden beträgt 10 m. Dazwischen sind die mit Strukturteilen befüllten Behälter untergebracht. Bei einer angenommenen Entsorgungsmenge von 500 t an abgebrannten Brennelementen sind pro Jahr 312 3-BE-Behälter endzulagern (~1 Behälter pro Tag).



**Bild 5-3: Prinzipskizze eines Einlagerungsfeldes im Granit**

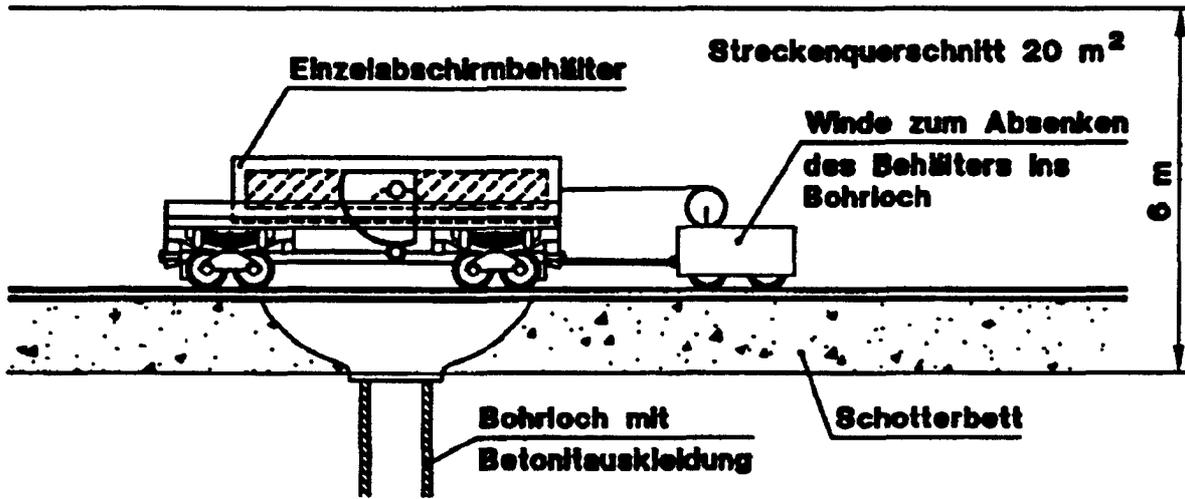
### 5.1.2 Innerbetrieblicher Transport und Einlagerung

Die im Einzelabschirmbehälter befindlichen Endlagerbehälter werden gleisgebunden auf einem Plateauwagen transportiert. Im Schacht kann nur ein beladener Plateauwagen nach unter Tage transportiert werden. Am Füllort werden die Plateauwagen durch eine Aufzieh- und Abschiebevorrichtung aus dem Förderkorb verfahren und über eine Querverschub auf das Bereitstellungsgleis für beladene Plateauwagen gestellt. Die zu einem Zugverband zusammengestellten Wagen werden von einer Grubenlokomotive in den Einlagerungsbereich gezogen und auf einem Ausweichgleis abgestellt. Hier übernimmt eine Rangierlokomotive jeweils einen beladenen Plateauwagen und schiebt ihn in die Einlagerungsstrecke.

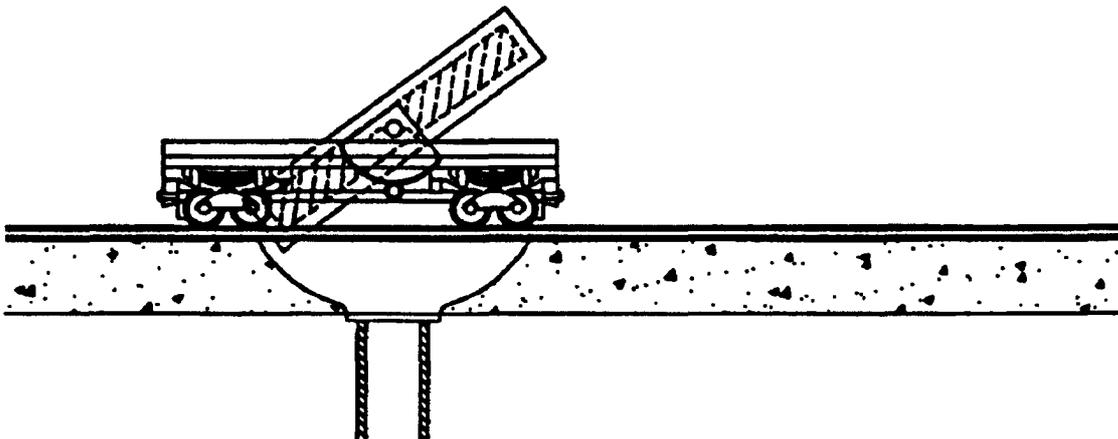
Der Plateauwagen ist mit einer Kippvorrichtung ausgerüstet. Von dem Plateauwagen aus wird der Kippvorgang in der Einlagerungsstrecke über dem vorbereiteten Bohrloch durchgeführt, wobei der Einzelabschirmbehälter (EAB) mit Endlagergebände in einer Halterungsgabel positioniert ist und die Gabel über einen radialen Zahnkranz mit einem Ritzel gedreht wird. Alternativ könnte die Gabel bereits im EAB integriert sein, was zu einer Verringerung der Baubreite des Einlagerungsfahrzeugs führen würde. Aus der vertikalen Position des EAB wird das Endlagergebände kontrolliert in das mit Bentonit ausgekleidete Bohrloch abgelassen. Dazu ist der EAB innen mit Führungsrollen für den Endlagerbehälter ausgerüstet.

Die gekippten Massen betragen etwa 33 t, wobei auf das Endlagergebände ca. 8 t, auf den Abschirmbehälter 25 t entfallen. Der EAB kann mit dem Plateauwagen als Spezialfahrzeug in einer Einheit kombiniert sein. Bei seiner Beladung mit dem Endlagergebände in der übertägigen Umladezelle ist eine Kontamination nicht zu befürchten, da eine kontaminationsfreie Anlieferung des Endlagergebändes in der übertägigen Umladeeinrichtung ein Annahmekriterium ist.

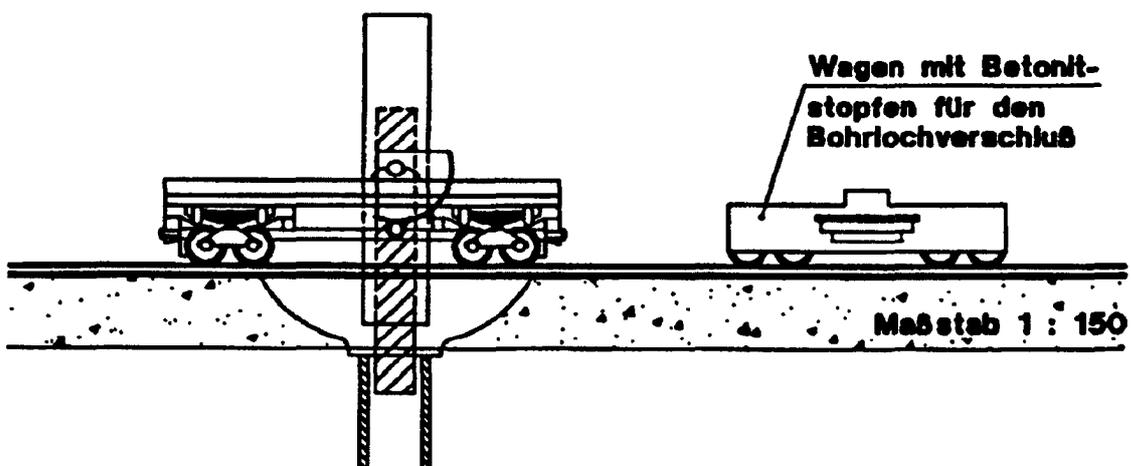
Der Plateauwagen mit integrierter Kippeinrichtung kann sowohl für Gleisbetrieb als auch für gleislosen Betrieb konzipiert werden, da die Einlagerungssohle im Granit sehr eben gehalten werden kann. Bei Gleisbetrieb ist wegen der Anordnung der Positionierungsgabel eine Breitspur notwendig, wobei das Bohrloch mittig zwischen den Gleisen angeordnet ist. Bei Integration der Positionierungsgabel in den EAB läßt sich auch die übliche Bahnspurbreite einsetzen. In Bild 5-4 ist der Anlieferungs- und Einlagerungsvorgang schematisch dargestellt.



a) Anlieferung am Bohrloch



b) Aufrichten des Einzelabschirmbehälters



c) Absenken ins Bohrloch

Bild 5-4: Einlagerungsschema

Das für die Einlagerung eines Endlagergebindes vorbereitete Bohrloch ist mit einer Stahlplatte mit Einführöffnung für das Endlagergebäude abgedeckt, wobei die Stahlplatte die notwendigen Führungselemente in genau definierter Position zur Aufnahme des EAB aufweist und damit eine geführte Einlagerung des Endlagerbehälters in das Bohrloch ermöglicht. Zum Zentrieren über dem Bohrloch ist die Position des EAB höhenverstellbar und seitlich ausrichtbar. Die Stahlplatte ist in der Streckensohle verankert und verbleibt auch nach Abschluß des Bohrlochs und Verschließen der Einlagerungsstrecke in der Sohle.

Die Absenktechnik für den Endlagerbehälter ist im EAB integriert, damit die Aufbauhöhe über dem Einlagerungsbohrloch bei aufgerichtetem EAB so niedrig wie möglich gehalten wird.

Um den EAB möglichst einfach auszubilden, wird dessen Boden zusammen mit dem Endlagerbehälter in das Bohrloch abgesenkt und verbleibt dort. Damit entfällt ein aufwendiger Schieberverschluß am Fuß des an die Bohrlochplatte angedockten EAB. Die Halterung des EAB-Bodens im EAB-Mantel während des Transports erfolgt durch eine Verriegelung.

Die Deckelabschirmung des Endlagerbehälters weist eine größere Wandstärke auf (Schraubdeckel, Schweißdeckel und Moderatorabschirmung), so daß die Deckelwandstärke des EAB lediglich 10-15 cm zu betragen braucht, um die erforderliche Abschirmung beim Transport zu gewährleisten. Absenkseile werden durch den Deckel des EAB hindurchgeführt, wobei mittels einer Klemmvorrichtung das Endlagergebäude am Greifpils gehalten wird. Eine Seilwinde ist entweder auf dem Plateauwagen montiert oder auf einem angekoppelten Fahrzeug angeordnet.

Durch die Gebindeauslegung wird auch beim Störfall „Absturz ins Bohrloch“ eine radioaktive Freisetzung verhindert. Wenn erforderlich, läßt sich mit einem Stoßdämpfer der quantitative Sicherheitsabstand zur Ribildung im Containment noch erhöhen, so daß in jedem Fall ein Bohrlochschieber überflüssig wird.

Das Verfüllkonzept für Bohrlöcher und Strecken wurde vom schwedischen KBS-3-Konzept übernommen. Vor der Einlagerung wird am Bohrlochboden Bentonitpulver aufgebracht. Die Wände werden mit Ringen aus kompaktiertem Bentonit ausgekleidet. Die Lücke zwischen den Bentonitblöcken und dem Gestein wird mit Bentonitpulver ausgefüllt.

Nach dem Absenken des Endlagerbehälters in das vorbereitete Bohrloch wird der restliche Hohlraum mit Bentonit verfüllt. Dies kann fernbedient mit einem Bento-

nitstopfen geschehen oder dadurch, daß Bentonit in das Bohrloch eingestampft wird. Durch die Abschirmwirkung des Bentonits wird kein Schieber benötigt. Die zum Versetzen des Bohrlochs mit Bentonit erforderliche Maschinenteknik ist in einem an den Plateauwagen gekoppelten Versatzfahrzeug untergebracht, das nach Abziehen des entladenen EAB über dem offenen Bohrloch positioniert wird. Die frühere Beladungsöffnung in der Stahlplatte wird nach der Auffüllung mit Bentonit durch eine aufgesetzte Stahlplatte verschlossen.

Der beschriebene Einlagerungsvorgang erlaubt es, den Querschnitt der Einlagerungsstrecken auf nur 20 m<sup>2</sup> zu begrenzen. Zur Herstellung der Einlagerungsstrecke wird der Firstbereich mit einer Vollschnittmaschine mit dem Durchmesser von 4 m aufgefahren und danach der Sohlenbereich vom Streckeneingang aus mit einer Teilschnittmaschine bis zu einer zusätzlichen Tiefe von 2 m nachgerissen, wobei zur Sohle hin eine Abrundung bzw. trapezförmige Einengung bis zu einer Sohlenbreite von 3,25 m erfolgt. Für das Aufstellen des Bohrgeräts zum Bohren des Einlagerungsbohrlochs ist in der Einlagerungsstrecke eine freie Höhe von 6 m ausreichend.

Das Endlagergebäude im Abschirmbehälter wird auf dem Plateauwagen liegend bis zur Bohrlochposition transportiert. Zum Aufrichten des EAB über dem Bohrloch steht genügend freie Höhe zur Verfügung.

In die der Kostenabschätzung (Kap. 5.3) zugrunde gelegten Ausbruchsvolumina gehen folgende Querschnitte ein:

Schacht:	44 m <sup>2</sup> (7,5 m <sup>∅</sup> )
Einlagerungsstrecke:	20 m <sup>2</sup>
Querschlag und Richtstrecke:	29,4 m <sup>2</sup>
Abwetterstrecke:	20 m <sup>2</sup> .

### 5.1.3 Sicherheit in der Betriebsphase

Aufgrund des gasdicht verschweißten Endlagerbehälters ist nur die Strahlenexposition durch äußere Strahlung zu betrachten. Für die Summe aus Gamma- und Neutronenstrahlung in einem Abstand von 1 m von der Behälteroberfläche wird eine Ortsdosisleistung von 10<sup>-4</sup> Sv/h angenommen. Dies gilt sowohl für den Typ B(U)-Transportbehälter in der obertägigen Umladehalle als auch den innerbetrieblichen Einzelabschirmbehälter. Für die Abhängigkeit der Ortsdosisleistung vom Abstand können die Werte der vom Forschungszentrum Karlsruhe koordinierten

„Systemstudie Endlagerkonzepte“ /ENG 92/ zugrunde gelegt werden, einschließlich der dort - für Salz - berücksichtigten Neutronenstreustrahlung.

Die Analyse des direkt mit der Einlagerung oder sonst im Strahlenfeld beschäftigten Personals ergibt Dosisbelastungen, die durchweg unter 15% des Grenzwertes nach §49 StrlSchV (50 mSv/a) liegen.

Denkbare Störfälle werden durch Analyse der betrieblichen Abläufe und Feststellung unerwünschter Ereignisse, d.h. betrieblich nicht vorgesehene Belastungen von Gebinden, erfaßt. Systematische Analyse der Betriebsabläufe bei der Endlagerung in Hartgestein zeigt, daß durch Auslegung die unerwünschten Ereignisse entweder selbst oder eine Freisetzung radioaktiver Stoffe vermieden werden können /ENG 92/.

Bei der Gegenüberstellung Salz- Hartgestein sind, unter der Voraussetzung identischer Entsorgungsmengen, Unterschiede der Stahlenexposition in erster Linie auf unterschiedliche Behälterzahlen, in geringerem Ausmaß auf unterschiedliche Betriebsabläufe zurückzuführen. Durch das höhere Fassungsvermögen der POLLUX-Behälter (vgl. Kap. 5.2) ist die Gebindezahl in Salz etwa nur 1/3 von der in Hartgestein. Bei beiden Behältertypen sind die Deckel gasdicht verschweißt und die mit der Direktstrahlung verbundene Dosis bleibt unter den Grenzwerten der StrlSchV. Unterschiede in der Störfallbetrachtung ergeben sich durch die Streckenlagerung der POLLUX-Behälter einerseits, die Bohrlochlagerung im Hartgestein andererseits. Allerdings ist die Fallhöhe beim Ablassen ins Bohrloch maximal 7 Meter, wobei der Behälter auf eine Bentonitschicht fallen würde. Es darf unterstellt werden, daß der Endlagerbehälter keine schlechteren Versagenseigenschaften als eine HAW-Kokille aufweist, die bei Stürzen bis aus 14 m Höhe ihre Dichtigkeit beibehält.

## 5.2 Endlager in Steinsalz

Basis der Betrachtung ist die Grubengebäudeplanung der Systemanalyse Mischkonzept /BEC 89/, bei der abgebrannte Brennelemente, anders als beim vorgestellten Referenzkonzept für Hartgestein, vorzugsweise in Strecken endgelagert werden. Das zugrunde gelegte Mengengerüst ist für beide Fälle gleich: 500 tSM/Jahr. Diese werden beim Salzkonzept in 117 POLLUX-Behältern endgelagert.

Für das Erkundungsbergwerk sind aus Gründen bergtechnischer Sicherheit zwei Schächte erforderlich. Das Deckgebirge ist wasserführend und ohne Ausbau nicht standfest. Deshalb muß es für die Zeit des Schachtabteufens an den Standorten der

beiden Schächte gefroren werden, so daß es verfestigt und wasserundurchlässig wird. Diese Vorbereitungsphase dauerte am Standort Gorleben knapp zwei Jahre. Nachdem der Frostmantel die notwendige Stärke erreicht hat, kann mit dem Abteufen der Schächte begonnen werden. Das Teufen erfolgt im Gefrierschachtteil durch Spitzarbeiten (Schräm-, Bohr- und Sprengarbeit). Das Haufwerk wird mit Kübeln nach über Tage gefördert. Ein vorläufiger Ausbau wird eingebracht; bei Erreichen einer Teufe von ca. 350 m erhalten die beiden Schächte einen wasserdichten, standfesten Innenausbau, der auf dem Fundament im Salz steht. Ist der wasserdichte Ausbau fertig, so hat der Frostmantel seine Aufgabe erfüllt, und die Gefrieranlagen werden abgeschaltet. Der Schachtteil im Salz benötigt keinen Ausbau. Mit der Beendigung des Abteufens in ca. 840 m Teufe beginnt der Einbau der Fördereinrichtung für Seilfahrt, Materialtransport und Salzförderung in Schacht 1. Danach erfolgt die Fertigstellung der Füllorte. Mit Fertigstellung der Schachtverbindungsstrecken beginnt unter Tage die durchgehende Wetterführung.

Die Auffahrung der Grubenräume eines Endlagerbergwerks soll grundsätzlich mit Hilfe gebirgsschonender Vortriebsverfahren durchgeführt werden. Nur in betrieblich unumgänglichen Fällen sollte die Bohr- und Sprengarbeit zur Erstellung von Grubenräumen eingesetzt werden. Maschinell, und damit gebirgsschonend, können Strecken mit Vollschnitt- oder Teilschnittmaschinen aufgefahren werden, wobei Teilschnittmaschinen Grubenräume mit unterschiedlichen Querschnitten profilgenau schneiden können. Aufgrund ihrer Mobilität und vielfältigen Einsatzmöglichkeiten sollen für die Auffahrung in der Erkundungsphase und danach nur Teilschnittmaschinen eingesetzt werden. Das Haufwerk wird in Schachtnähe und im Salzbunker zwischengelagert, bevor es nach über Tage transportiert wird. Bandanlagen können während der Erkundung nicht eingesetzt werden, weil diese eine geradlinige Streckenführung voraussetzen, die nicht immer gewährleistet werden kann.

Auf der Grundlage der bis zu diesem Zeitpunkt vorliegenden Erkundungsergebnisse sowie von Erkenntnissen aus erschlossenen Salzstöcken in Norddeutschland wird der Verlauf der Richtstrecken im Niveau der Erkundungssohle geplant. In östliche und westliche Richtung werden je zwei parallele Strecken mit 700 bis 900 m Abstand bis in eine Entfernung von 4.500 bis 5.000 m von den Schächten aufgefahren. Die Richtstrecken werden in bestimmten Abständen durch Querschläge verbunden. Die so allseitig umfahrenen Felder werden als Erkundungsbereiche bezeichnet. Vorbohrungen im unverritzten Feld werden zur Vorbereitung aller Richtstrecken und Querschläge gestoßen und im Hinblick auf eine betriebssichere Streckenauffahrung ausgewertet. Erst danach können Richtung und Länge der neuen Streckenabschnitte festgelegt werden.

Folgende Querschnitte für Strecken und Schächte ergeben sich, die wie im Fall von Hartgestein in die Ausbruchsvolumina und in die Kostenabschätzung eingehen:

Schacht:	44 m <sup>2</sup> (7,5 m <sup>2</sup> )
Einlagerungsstrecke:	16,7 m <sup>2</sup>
Querschlag und Richtstrecke:	29,4 m <sup>2</sup>
Abwetterstrecke:	20 m <sup>2</sup> .

Zusammenfassend unterscheidet sich somit **Salz von Granit aus bergmännischer Sicht** in den folgenden Punkten:

- *Schachtabteufen*: Im Salz ist für das Abteufen der Schächte das Gefrierverfahren notwendig, da in den oberen Schichten Sedimentgestein vorliegt und es zu einem Wasserzufluß kommt. Im Granit wird davon ausgegangen, daß dieser nicht von Sedimentgestein überlagert ist. Weiterhin ist im Granit kein Ausbau des Schachtes erforderlich.
- *Auffahrung*: Die Auffahrung im Salz erfolgt mit Teilschnittmaschinen. Im Granit sind aufgrund der größeren Gesteinshärte Vollschnittmaschinen erforderlich. Die Frage der Mehrsöhligkeit bedarf insbesondere im Granit einer Klärung.
- *Grubenwässer*: In den Grubenbauen in Granit ist mit Maßnahmen zur Wasserhaltung zu rechnen, d.h. es müssen maschinelle Einrichtungen vorhanden sein, um in die Grube eingedrungenes Wasser zu sammeln, zu klären und zu Tage zu fördern. Diese Maßnahmen sind im Salz nicht erforderlich.
- *Verfüllung*: Die Verfüllung im Granit erfolgt mit Bentonit, d.h. das bei der Auffahrung anfallende Material kann nicht wieder verwendet werden. Im Salz hingegen wird das Grubengebäude mit dem aus der Auffahrung stammenden Salzgrus verfüllt.

### 5.3 Kostenvergleich

Nachfolgend werden die Kosten der Errichtung und des Betriebs der beschriebenen Endlager in Hartgestein und in Salz abgeschätzt und einander gegenübergestellt. Nicht enthalten sind die Erkundungskosten. Für beide Endlager werden dieselben Randbedingungen gewählt:

- 500 t abgebrannte Brennelemente pro Jahr, kein HAW und MAW
- Entladeabbrand 45.000 MWd/tSM
- Betriebszeit des Endlagers 50 a.

Anders als in der Systemanalyse Mischkonzept, bei der die zu unterschiedlichen Zeiten getätigten Zahlungen durch Barwertbildung miteinander vergleichbar gemacht wurden, werden hier die undiskontierten Ausgaben für Bau und Betrieb des Endlagers aufsummiert. Dazu werden Schritt für Schritt die Kosten für die einzelnen Investitionsgruppen (Investitionsgruppe Tagesanlage, Investitionsgruppe Grubengebäude) ermittelt. Planungs-, Genehmigungs- und Qualitätssicherungskosten werden durch einen Zuschlag von 27,5% auf die Investitionskosten berücksichtigt, nicht erfaßte Positionen durch einen weiteren Zuschlag von 20% auf die Kosten der Anlagentechnik. In die Betriebskosten gehen neben den Personalkosten die Kosten für Wartung, Reparatur und Betriebsstoffe ein, die pauschal durch einen Zuschlag von 20% der Investitionskosten erfaßt werden. Durch diesen Zuschlag ergibt sich für die Betriebskosten eine - geringe - Abhängigkeit von den Investitionskosten.

Ein wesentlicher Kostenfaktor ist der zu erstellende Hohlraum. Für Hartgestein wurde ein Ausbruchsvolumen von 5,8 Mio. m<sup>3</sup> ermittelt, für Salz 1,9 Mio. m<sup>3</sup>. Beiträge dazu sind in Tabelle 5-1 aufgeführt.

	Schacht	Richtstrecken	Einlag. Strecken	Querschläge	Bohrlöcher
Hartgestein	40.000	885.000	3.220.000	726.000	180.000
Salz	40.000	203.000	1.179.000	174.000	-

**Tabelle 5-1: Ausbruchsvolumina der Grubengebäude (m<sup>3</sup>)**

Für Hohlraumerstellungskosten wurden überschlägig 600 DM/m<sup>3</sup> (Hartgestein) und 300 DM/m<sup>3</sup> (Salz) angesetzt. Bentonit wurde mit 3.000 DM/m<sup>3</sup> veranschlagt, wobei Einlagerungsstrecken und Querschläge mit einem Bentonit-Sand-Gemisch (90% Sand) verfüllt werden. Für das Endlager in Hartgestein wurden 220 Personen Betriebspersonal abgeschätzt, für Salz 206 Personen, für das Verschließen der Grubengebäude bei Betriebsende 40 Mio. DM. In Tabelle 5-2 sind die wesentlichen Beiträge zu den Gesamtkosten für beide Endlager zusammengestellt (Kostenbasis 1995).

	Hartgestein	Salz
Ausbau unter Tage	3.624	781
Schachtförderanlage 1	78	78
Schachtförderanlage 2	78	85
Maschinentechnik unter Tage, elektrische Einrichtung, Infrastruktur, Nukleartechnik	49	37
Verfüllung Bentonit	1.764	-
<b>Summe Invest. Grubengebäude</b>	<b>5.593</b>	<b>981</b>
Zuschläge für nicht erfaßte Positionen, für Planung, Genehmigung, QS	1.579	310
<b>Summe Grubengebäude</b>	<b>7.172</b>	<b>1.291</b>
Investition über Tage	83	63
Strahlenschutz	7	7
<b>Betriebskosten</b>	<b>1.197</b>	<b>1.123</b>
<b>Gesamtsumme</b>	<b>8.459</b>	<b>2.484</b>

**Tabelle 5-2: Kostenschätzung Endlager (Mio. DM)**

Die Hauptursache für den Kostenunterschied liegt im untertägigen Bereich, insbesondere im „Ausbau unter Tage“. Die höheren Kosten bei Hartgestein sind vor allem durch die folgenden drei Faktoren begründet: Bei Granit liegt ein wesentlich höherer Platzbedarf vor, vor allem, weil die zulässige Temperaturerhöhung nur ungefähr 1/3 derjenigen bei Steinsalz ist (von der Gebirgstemperatur auf 100°C bzw. 200°C) und weiter die Wärmeleitfähigkeit der Barrierenkombination Bentonit und Granit geringer ist als die von Salzgrus und Salz. Außerdem ist wegen der hohen Gesteinhärte von Granit das im Vergleich zu Salz teurere Auffahren des Grubengebäudes mit Vollschnittmaschinen erforderlich. Der dritte Faktor ist die Notwendigkeit, in Hartgestein mit Bentonit zu verfüllen.

Das größere Grubengebäude in Granit hat einen höheren Aufwand für Reparatur und Wartung zur Folge, was sich wiederum in höheren Betriebskosten niederschlägt. Der Kostenunterschied in den Tagesanlagen ergibt sich in erster Linie daraus, daß eine Umladestation zum Entladen der Sammeltransportbehälter bei Salz nicht erforderlich ist; dieser Unterschied ist jedoch gering.

Abschließend ist festzuhalten, daß es sich hier nur um eine grobe Kostenschätzung handelt. Wegen der im Vergleich zu Salz geringen Planungstiefe liegen vor allem beim Granitkonzept Unsicherheiten vor. Eine Änderung des Bentonitpreises um 50% hätte beispielsweise eine Kostenänderung von 800 Mio. DM zur Folge. Auch wurden weitere Fragen, wie beispielsweise Auswirkungen einer etwaigen Vermarktung von Granitbruch im Straßenbau, nicht untersucht.

Ebenso unberücksichtigt blieben die Kosten für die Behälter, da insbesondere für den Hartgesteinbehälter nur ungenaue Angaben vorliegen. Es ist außerdem festzuhalten, daß Planungsstand und Verwendungszweck der beiden Behälter nicht vergleichbar sind. Der POLLUX-Behälter ist nicht nur Endlagerbehälter, sondern ist auch als Zwischenlager- und Transportbehälter ausgelegt.

#### 5.4 Kernmaterialüberwachung

Deutschland hat den Atomwaffensperrvertrag (NV-Vertrag) unterzeichnet und ist daher verpflichtet, spaltbares Material nur für friedliche Zwecke zu verwenden. Die Internationale Atomenergie-Organisation (IAEO) überwacht die Einhaltung des NV-Vertrages durch Inspektionen in den Anlagen. Das grundlegende Prinzip der Kernmaterialüberwachung besteht in der Materialbuchhaltung und -verifizierung. Ergänzt wird es durch räumliche Eingrenzung (*containment*) und Beobachtung (*surveillance*). In Anlagen werden Materialbilanzzonen (MBZ) eingerichtet, Materialbewegungen über deren Grenzen an Schlüsselmeßpunkten (SMP) erfaßt und der Kontrollbehörde gemeldet.

Ein mit drei LWR-Brennelementen beladener Endlagerbehälter enthält mehr als eine „signifikante Menge“ an Plutonium. Daher muß die Abzweigung auch nur eines einzigen Behälters entdeckt werden. Die IAEO unterstellt, daß vom Betreiberstaat ein Abzweigungs- bzw. Mißbrauchsversuch unternommen wird und daß nicht deklarierte Anlagen existieren.

Das Überwachungskonzept der Direkten Endlagerung steht in direktem Zusammenhang mit dem der Brennelementkonditionierung. Das Prinzip der Materialbuchhaltung und -verifizierung wird auf kleinste zu betrachtende Überwachungsgrößen, sogenannte *items*, angewendet. Bis zur Konditionierungsanlage ist das *item* das Brennelement, anschließend der beladene Endlagerbehälter (Endlagergebäude, ELG). In der Konditionierungsanlage besteht die letzte Möglichkeit, um durch Messung das Kernmaterial direkt zu verifizieren. Danach liegt das Kernmaterial im Endlagerbehälter vor, der nicht mehr geöffnet wird. Zur Verifizierung des Kernmaterials verfügt man ab nun nur noch über die Möglichkeit, Identität und Integrität des ELG zu überprüfen.

Eine weitere wichtige Kontrollmöglichkeit besteht in der Verifizierung der „Grundlegenden Technischen Merkmale“ (*design information verification*). Es müssen die räumliche Struktur des Endlagers und die Merkmale des Betriebes für die Überwachungsbehörden transparent und nachprüfbar sein. Die übertägigen Anla-

gen, die Schächte, Strecken und Bohrlöcher, sowie sonstige Hohlräume müssen durch den Inspektor verifizierbar sein. Dabei ist die permanente bauliche Veränderung des Grubengebäudes zu berücksichtigen, da eine Fertigstellung vor der Inbetriebnahme nicht geplant ist. Dieses bedeutet für den Betreiber des Endlagers, regelmäßig Änderungsmeldungen zum Bau durchzuführen.

Jedes ELG ist sofort nach seiner Fertigstellung in der Konditionierungsanlage zu versiegeln. Ein geeignetes Siegel könnte das Schweißnahtsiegel sein, wie es auch für den POLLUX-Behälter vorgesehen ist. Selbst von automatisch hergestellten Schweißnähten wird angenommen, daß keine in ihrer Struktur einer anderen gleicht. Zur Zeit wird im Rahmen des deutschen FuE-Programms zur Unterstützung der IAEO die safeguardsspezifische Technik der Schweißnaht-Verifizierung an POLLUX-Behältern entwickelt.

Auch der Transportbehälter für den Transport des ELG von der Konditionierungsanlage zum Endlager muß versiegelt sein. Hierfür eignet sich das elektronische VACOSS-S Siegel.

#### 5.4.1 Safeguards-Konzept für Hartgestein

Da die direkten Messungen des Kernmaterials nach der Konditionierung nicht mehr möglich sind, beschränken sich die Maßnahmen zur Kontrolle des Materialflusses nun auf

- Zählung und Identifizierung der ELG
- Prüfung der Integrität der ELG.

Im einzelnen besteht die Eingangskontrolle am Endlager aus folgenden Maßnahmen:

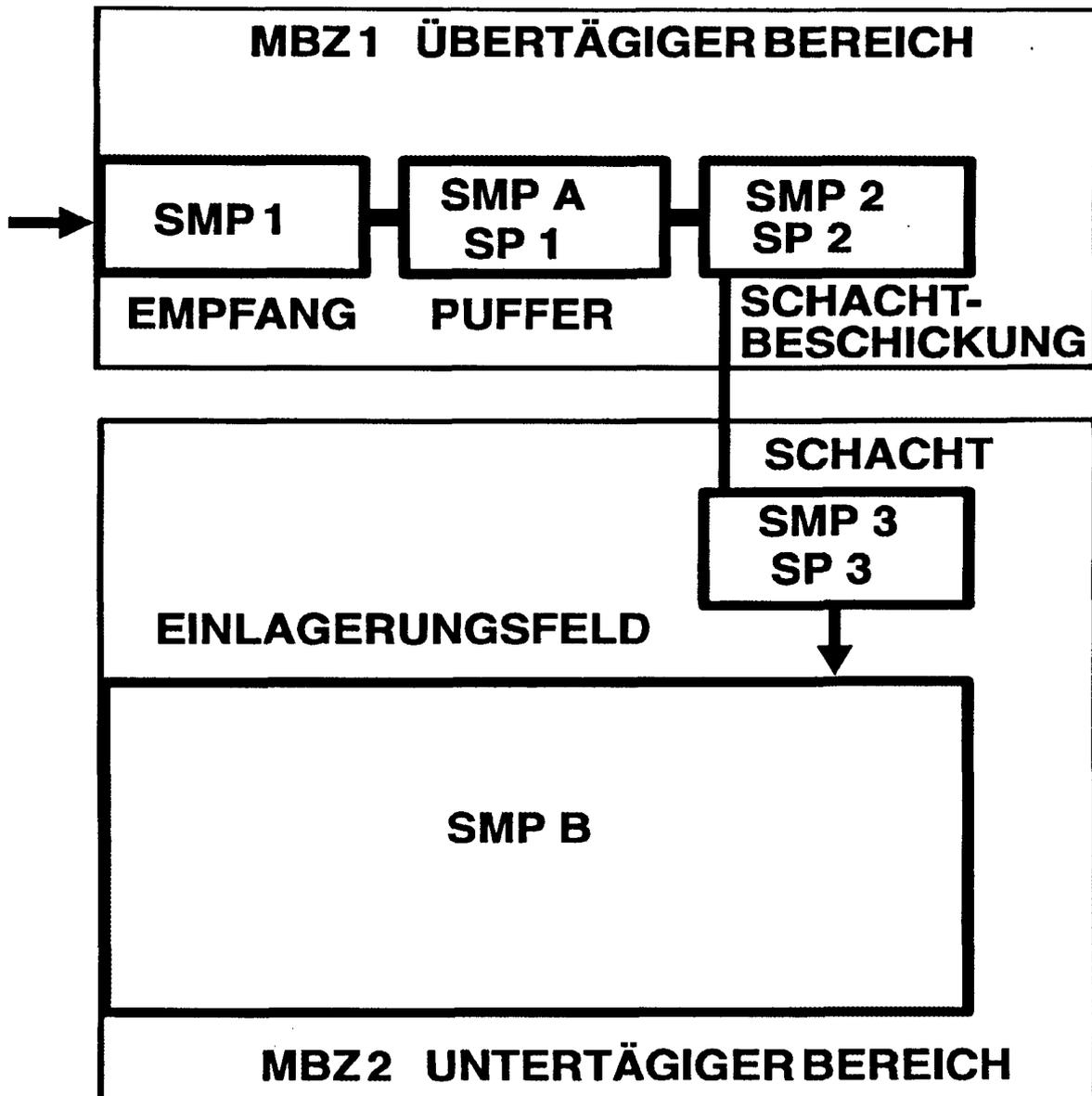
- Verifizierung der Transportbehälter (Siegelkontrolle, Integritätskontrolle)
- Verifizierung des ELG (Siegelkontrolle, Integritätskontrolle)
- Vergleich der tatsächlich erhaltenen *items* mit den Angaben in den Begleitpapieren.

Es wird vorgeschlagen, das Endlager in zwei Materialbilanzzonen (MBZ) einzuteilen. MBZ1 umfaßt den übertägigen Bereich, MBZ2 den untertägigen, die Schachtanlage bildet die Grenze. In der MBZ1 bildet die Empfangsstation den ersten Materialfluß-Schlüsselmeßpunkt (SMP1) für die in Transportbehältern angelieferten Endlagergebände. Nach dem Empfang werden die Endlagergebände im Pufferlager, das

als Heiße Zelle oder Umladestation ausgelegt ist, aus dem Transportbehälter herausgezogen und abgestellt. Das Pufferlager bildet den SMP A und zugleich den Strategischen Punkt 1 (SP1), da hier erstmals eine Verifizierung des ELG stattfinden kann, und erstmals eine potentielle Abzweigung im Endlager möglich ist (z.B. Austausch eines ELG gegen einen mit radioaktivem Schrott gefüllten Behälter). Das ELG wird im Einzelabschirmbehälter (EAB) verpackt und verläßt die MBZ1 durch die Schachtbeschickung, die damit in bezug auf die MBZ1 den Schlüsselmaßpunkt SMP2 sowie SP2 darstellt. Der Eingang für die MBZ2 im untertägigen Bereich ist ebenfalls die Schachtbeschickung. Hier sind SMP3 und SP3 einzurichten. Der gesamte untertägige Einlagerungsbereich bildet den SMP B. Wenn das gesamte Grubengebäude versetzt und abgeworfen ist, dann geht das Endlager in die Nachbetriebsphase über. Materialbilanzzonen sind dann nicht mehr definierbar. Bild 5-5 veranschaulicht die Bereiche der Materialbilanzzonen und die Anordnung der Schlüsselmeßpunkte.

Beim Salz-Konzept bleibt der POLLUX-Behälter verifizierbar, solange er nicht in der Einlagerungstrecke versetzt ist. Hingegen besteht für die ELG des Hartgesteinkonzepts lediglich im Pufferlager die Möglichkeit der unmittelbaren Verifizierung, weil sie sich sonst im Transportbehälter, im EAB oder im Bohrloch befinden. Es muß verifizierbar sein, daß ein in den Schacht einfahrender EAB ein ELG enthält und derselbe EAB anschließend leer wieder ausfährt.

Bei der Eingangskontrolle im Pufferlager kann der Inspektor jedes Einlagergebände persönlich verifizieren; falls nötig, müssen die ELG bis zum Besuch des Inspektors im Pufferlager zurückgehalten werden. Weiterhin können technische Maßnahmen zur Anwendung kommen, die den Weg der in EAB verpackten ELG zur Schachtbeschickung und nach unter Tage überwachen (z.B. VACOSS-S, Video, VACOSS-S/Video-Kopplung, Strahlungsmonitore). Mit einer VACOSS-S/Video-Kopplung kann der Betreiber des Endlagers ankommende Transportbehälter unter Kamerabeobachtung entsiegeln und innerbetriebliche EAB versiegeln, ohne daß die Anwesenheit eines Inspektors erforderlich ist. Die Verbringung der ELG nach unter Tage kann durch zwei hintereinandergeschaltete Strahlungsmonitore an der Schachtbeschickung überwacht werden.



**Bild 5-5: Safeguards-Konzept für Endlagerung in geologischer Formation**

Ein Safeguards-Konzept mit hoher Inspektionsintensität wäre denkbar, wenn die Inspektorate zur Auffassung kämen, das in Betrieb befindliche Endlager wie ein Zwischenlager zu betrachten; die längere Zeit zugänglichen Bohrlochverschlüsse müssten auf ihre Unversehrtheit überwacht werden. Dadurch ergäbe sich eine zusätzliche Kontrolle unter Tage.

Ein Modell mit geringer Inspektionsintensität wäre eines, bei dem der Inspektor nicht jedes Endlagergebäude im Endlager persönlich verifiziert. Bei einem solchen Modell kommen rein technische Überwachungsmaßnahmen unter Mitwirkung des Endlagerbetreibers zur Anwendung. Um eine optimale Arbeitszeitausnutzung des Inspektors im Endlager zu erreichen, kontrolliert er Endlagergebäude nur, wenn er

sich ohnehin im Endlager zur Verifizierung von Design-Informationen (z.B. beim Auffahren eines neuen Feldes) aufhält. Wie oft kontrolliert wird, hängt von den gegebenen betriebsspezifischen Abläufen ab und muß mit dem Endlagerbetreiber abgesprochen werden.

Der Inspektionsaufwand zur Überwachung des Behälterflusses in MBZ2 kann eingespart werden, da unter Tage weder Einrichtungen zur Öffnung der ELG noch zur Wiederaufarbeitung der Brennstäbe vorhanden sein werden. Dieser Sachverhalt läßt sich durch Verifizierung des Grubengebäudes überprüfen.

An Safeguardszielen ergaben sich aus der internationalen Diskussion die Entdeckung der Rückholung von Endlagergebinden nach über Tage, der Entwendung von Endlagergebinden unter Tage, deren Öffnung sowie die heimliche Wiederaufarbeitung von Brennstoff auch unter Tage. Für die Erreichung dieser Ziele wird die Verifizierung der Design-Informationen über und unter Tage eine entscheidende Rolle spielen.

Eine vertrauensbildende Maßnahme gegenüber der Kontrollbehörde wäre daher der frühzeitige Zutritt zum Bergwerk. Schon beim Bau des Erkundungsbergwerkes, der Umfahrung des gesamten Grubengebäudes und dem Schachtbau sollten Inspektoren sich einen Einblick verschaffen können.

Aus sicherheitstechnischen Gründen sieht der Betreiber eine Abwetterüberwachung vor, die für Safeguardszwecke mitgenutzt werden könnte. Freigesetzte Spaltprodukte in der Abluft im ausziehenden Wetterschacht weisen ggf. auf eine Heiße Zelle unter Tage hin, in der Endlagergebinde geöffnet werden und Brennstoff umgeladen oder sogar wiederaufgearbeitet wird.

Die Betriebsdauer des Endlagers wird voraussichtlich 50 Jahre betragen. Ein Einlagerungsfeld mit 11 Strecken (pro Strecke 20 Bohrlöcher entsprechend 220 einzulagernde Endlagergebinde pro Feld) wird immer komplett aufgefahren und steht eine gewisse Zeit offen. Die aufgefahrenen Hohlräume können durch Begehung verifiziert werden. Der Inspektor müßte im Bergbau erfahren sein. Das einfachste technische Hilfsmittel wäre ein Hammer, um durch Abklopfen der Wände die kilometerlangen Strecken auf angrenzende, nicht deklarierte Hohlräume zu untersuchen. Als weiteres Hilfsmittel könnten Radarmessungen wirksam zur Entdeckung nicht deklarerter Hohlräume beitragen. Die Radartechnik müßte jedoch für die Safeguardsanforderungen noch qualifiziert werden.

Zusammenfassend wird folgendes empfohlen: Die Kontrolle der Endlagergebinde sollte auf den übertägigen Bereich der Anlage beschränkt werden. Nicht jedes ELG ist vom Inspektor zu verifizieren. Sollte dies jedoch von der Inspektionsbehörde gefordert werden, dann müßten alle ELG bis zu ihrer Verifizierung durch den Inspektor im Pufferlager bleiben. Die Safeguardsmaßnahmen für die ELG-Kontrolle umfassen:

- Verifizierung des VACOSS-S-Siegels am Sammeltransportbehälter bei Anlieferung
- Verifizierung des Schweißnahtsiegels am ELG im Pufferlager
- Bestandsaufnahme im Pufferlager
- Videoüberwachung des Pufferlagers
- VACOSS-S-Versiegelung des Einzelabschirmbehälters (EAB) im Pufferlager
- Videoüberwachung zwischen Pufferlager und Schachtbeschickung
- Videoüberwachung der Schachtbeschickung
- VACOSS-S-Abnahme und -Verifizierung an der Schachtbeschickung
- Strahlungsmonitore an der Schachtbeschickung
- Akkumulierung des Bestandes im Einlagerungsbereich.

Technische Maßnahmen für untertägige ELG-Kontrollen müssen für den Fall berücksichtigt werden, daß die Inspektorate die Bohrlochverschlüsse in belegten aber noch offenen Einlagerungstrecken kontrollieren wollen. Dazu zählen beispielsweise zwei Strahlungsmonitore am Streckeneingang und die Sicherung der Bohrlochabschlüsse.

Die Nachbetriebsphase des Endlagers setzt ein, wenn das Bergwerk abgeworfen ist, und die übertägigen Anlagen abgebaut sind. Nach derzeit gültiger internationaler Meinung muß aus Safeguardsgründen der Standort eines Endlagers für abgebrannten Brennstoff in der Nachbetriebsphase weiterhin observiert werden, um eine bergbauliche Tätigkeit zum Zwecke einer Abzweigung zu entdecken. Endlagerbehälter sind sowohl aus Endlagern im Salinar als auch im Granit prinzipiell rückholbar. Da die Rückholung des ersten Behälters aus heutiger Sicht mindestens einen Aufwand von 1,5 Jahren erfordert, wäre eine jährliche Inspektion des Geländes ausreichend. Aufgrund zukünftiger bergbautechnischer Neuerungen könnte es sein, daß die Verifizierungsintervalle neu festgelegt werden müßten. Im Zusammenhang mit generellen Umweltverifizierungen könnte auch die Satellitenerkundung für Safeguards eingesetzt werden.

#### 5.4.2 Safeguardsvergleich Granit-Salz

Das für den POLLUX-Behälter vorgesehene Schweißnahtsiegel sollte auch beim Hartgesteins-ELG eingesetzt werden. Der POLLUX-Behälter ist, solange er gehandhabt wird, auch unmittelbar verifizierbar. Das ELG kann dagegen nur im Pufferlager direkt verifiziert werden. Da es keine eingebaute Abschirmung besitzt, wird es von der Konditionierungsanlage zum Endlager im Sammeltransportbehälter, im Endlager im EAB transportiert. Beide Behältertypen sollten daher mit dem Elektroniksiegel VACOSS-S versiegelbar sein. Mit der VACOSS-S/Video-Kopplung kann der Betreiber auch in Abwesenheit des Inspektors den Betrieb weiterführen.

Ein größerer Inspektionsaufwand für das Hartgesteinskonzept ist dadurch nötig, daß der Beladungszustand des innerbetrieblichen EAB in jedem Fall überprüft werden muß. Es ist sicherzustellen, daß jeder EAB beladen mit einem Endlagergebäude in den Schacht einfährt und leer zurückkehrt. Dagegen wird der POLLUX-Behälter komplett in der Strecke abgelegt und versetzt, so daß der innerbetriebliche Transportwagen leer wieder aus der Grube fährt.

Unter Tage wird die Einlagerungsstrecke direkt nach der Einlagerung des POLLUX partiell abgeworfen. Aus Safeguards-Sicht ist das ein prinzipieller Vorteil gegenüber der Bohrlochlagerung des ELG, da der POLLUX somit unmittelbar nach der Einlagerung unzugänglich wird und eine weitere Verifizierung des Behälters nicht möglich ist. Im Granit werden die Einlagerungsstrecken offen stehen, bis alle Bohrlöcher einer Strecke belegt sind. Dies könnte dazu führen, daß die Überwachungsbehörden die Bohrlochverschlüsse solange kontrollieren wollen, bis die Strecke abgeworfen ist. Dies würde zu einem erheblichen Inspektionsaufwand führen, sowohl in personeller als auch in technischer Hinsicht.

Die ELG sind im Vergleich zum POLLUX aufgrund geringerer Größe und geringeren Gewichts für eine potentiellen Abzweiger leichter handhabbar. Durch eine größere Anzahl an Materialbarrieren im POLLUX (u.a. drei Deckel) ist das Öffnen des POLLUX aufwendiger als des ELG.

#### 5.5 Kritikalität

In einem frischen Brennelement sind ca. 20 kg U-235 enthalten, nach Erreichen eines Abbrands von 40.000 MWd/t noch 4 kg U-235 und 3 bis 4 kg neu gebildetes, spaltbares Plutonium. Im Fall der Direkten Endlagerung ist der Frage nachzugehen,

ob sich im Endlager eine selbst erhaltende Kettenreaktion ausbilden kann und wie das System kritisch sicher ( $k < 0,95$ ) gehalten werden kann.

Die erforderliche kritische Masse an spaltbarem Material ist von einer Reihe von Faktoren abhängig. Der wichtigste Faktor ist das Spaltmaterial selbst, wobei die kritische Masse von Pu-239 deutlich geringer ist als die von U-235. Sie hängt weiter wesentlich davon ab, ob das spaltbare Material von einem Reflektor umgeben ist, ob sich im Umfeld Neutronenabsorber befinden oder ein Moderator (beispielsweise Wasser) zur Verfügung steht.

Salz unterscheidet sich von allen anderen Endlagerformationen dadurch, daß im Normalfall das Endlager trocken ist. Durch seine Plastizität werden Hohlräume und damit Wasserwegsamkeiten geschlossen. Bei allen anderen Endlagerformationen muß man von einem Zutritt von Wässern zu den eingelagerten Abfällen ausgehen, auch wenn die Mengen relativ gering sind und ein Zutritt zum Abfall selbst erst nach langer Zeit erfolgen wird.

In Tabelle 5-3 sind die minimalen kritischen Massen von Plutoniumoxid für verschiedene Medien zusammengestellt /ALL 78/. Die Isotopenzusammensetzung entspricht dem des Plutoniums in einem abgebrannten Brennelement mit einem Abbrand von 33.000 MWd/t. Die minimalen kritischen Massen sind für verschiedene Zeiten angegeben, da sich die Zusammensetzung des Isotopengemischs aufgrund des radioaktiven Zerfalls ständig ändert. Es ist die Tendenz zu erkennen, daß die minimale kritische Masse mit der Zeit anfangs leicht ansteigt, nach langen Zeiten jedoch wieder abnimmt. Der Grund ist, daß zunächst durch den radioaktiven Zerfall des Pu-241 (HWZ 14,4 a) der spaltbare Anteil des Isotopengemisches abnimmt, später jedoch durch  $\alpha$ -Zerfall des Pu-240 (HWZ 6.550 a) der Pu-239-Anteil im Isotopengemisch wieder zunimmt.

Zeit (a)	Granit trocken	Granit in Wasser	Salz trocken	Salzlauge
10	12,2	1,84	21,1	16,4
100	12,5	2,37	21,7	19,3
1.000	12,4	2,12	21,5	19,1
10.000	11,6	1,27	20,1	12,3

**Tabelle 5-3: Minimale kritische Masse von Plutoniumoxid (kg), moderiert und reflektiert von verschiedenen Medien /ALL 78/**

Wie man aus dieser Tabelle entnehmen kann, beträgt die minimale kritische Masse an PuO<sub>2</sub> in trockenem Granit etwa 12 kg. Tritt jedoch Wasser in größeren Mengen hinzu, verringert sich die minimale kritische Masse durch die guten Moderationsei-

genschaften von Wasser auf etwa 2 kg. In trockenem Salz beträgt die minimale kritische Masse etwa 21 kg, ist also fast doppelt so groß wie in trockenem Granit. Der Grund dafür ist, daß Salz Chlor, einen guten Neutronenabsorber, enthält. Sollte es - für ein Endlager in Steinsalz nur eine Hypothese - zu einem Störfall kommen und Wasser zutreten, würde sich dieses zu Salzlauge aufkonzentrieren. Selbst in diesem Fall beträgt die minimale kritische Masse noch 16 bis 19 kg und liegt damit deutlich über der von „nassem“ Granit. Aus der Sicht der Kritikalitätssicherheit bietet daher ein in einer Salzformation errichtetes Endlager Vorteile gegenüber einem Endlager in einer Granitformation.

Kritikalitätsrechnungen für abgebrannte Brennelemente in einer Steinsalzformation bei Variation des Brennstababstandes und Annahme des hypothetischen Störfalls „Wassereintritt in der Nachbetriebsphase“ ergeben für Abbrände oberhalb von 10.000 MWd/t einen Kritikalitätswert  $k_{\infty}$  unterhalb von 0,95. Erst wenn man eine selektive Anhäufung von Plutonium unterstellt, kann Kritikalität auftreten. Eine selektive Anreicherung von Plutonium ist jedoch, wie Untersuchungen in den USA und im Forschungszentrum Karlsruhe zeigen, aufgrund des ähnlichen geochemischen Verhaltens von Uran und Plutonium äußerst unwahrscheinlich. Die für diesen Fall erforderliche kritische Masse an Plutoniumoxid wäre 27 kg, eine Menge aus etwa fünf abgebrannten Brennelementen. Selbst unter unrealistischen Annahmen kann somit das Pu aus fünf Brennelementen in einem Bohrloch zu keiner kritischen Anordnung führen.

Die berechnete Menge von 27 kg liegt höher als die entsprechenden Werte in Tabelle 5-3, weil hier eine höherer Abbrand und damit eine ungünstigere Plutoniumzusammensetzung zugrunde gelegt wurde.

In den USA werden Erkundungsarbeiten am Standort Yucca Mountain in vulkanischem Tuff durchgeführt. Dafür liegt eine Reihe von Kritikalitätsrechnungen vor /WER 83/, deren Ergebnisse in guter Näherung auf die Verhältnisse in Hartgestein übertragbar sind. Drei Fälle von Endlagerbehältern mit abgebranntem Brennstoff in einem vertikalen Bohrloch wurden gerechnet:

- A: Ungestörte Konfiguration, Endlager trocken
- B: Behälter teilweise zerstört, von der Moderation her optimale Anordnung der Stäbe, Endlager geflutet
- C: Zerstörte Brennstäbe, Brennstoff als Pulver, optimal gemischt, Endlager geflutet.

Für diese Fälle und unterschiedliche Anreicherung an U-235 - 4,5% ist der frische Brennstoff, niedrigere Werte entsprechen steigendem Abbrand - gibt Tabelle 5-4 das errechnete  $k_{\infty}$  an. Für ein trockenes Endlager und ungestörte Konfiguration der Brennelemente (Fall A) liegt  $k_{\infty}$  weit unter dem Wert 0,95, der nicht erreicht werden soll. Im Fall B kann Kritikalität nur dann ausgeschlossen werden, wenn der Abbrand so hoch ist, daß die U-235-Anreicherung ca. 1,5% nicht überschreitet. Ähnliches gilt für den Fall der zerstörten Brennstäbe (Fall C), wo der Spaltstoffgehalt unter 1,6% liegen müßte, um kritisch sicher zu sein. Auch in diesem Fall ist somit ein Mindestabbrand erforderlich.

Wenn auch zu berücksichtigen ist, daß diese Kritikalitätsrechnungen konservativer Natur waren - beispielsweise wurde die Neutronenabsorption in den Spaltprodukten nicht berücksichtigt -, so läßt sich doch der Schluß ziehen, daß frische Brennelemente in einem, wie in Granit zu erwartenden, feuchten Endlager nicht kritikalitätssicher eingelagert werden können. Um Unterkritikalität im Endlager zu gewährleisten, ist ein bestimmter Mindestabbrand erforderlich. Es muß also durch administrative Maßnahmen garantiert werden, daß die einzulagernden Brennelemente einen bestimmten Mindestabbrand und somit eine Höchstmenge an Restspaltstoff haben. Dieser Nachweis ist bei der Konditionierung der abgebrannten Brennelemente zu erbringen, bevor die Brennelemente endlagergerecht verpackt werden.

Fall	Anreicherung (%)	$k_{\infty}$
A	4,5	0,371
B	4,5	1,179
B	2,0	0,998
B	1,0	0,788
C	4,5	1,160
C	1,6	0,952

**Tabelle 5-4: Kritikalitätswerte für LWR-Brennstoff in Tuff-Endlager /WER 83/**

Insgesamt ist der Schluß zu ziehen, daß die Frage der Kritikalität bei Endlagerung in Salz einfacher zu behandeln ist als in anderen geologischen Formationen. Schließlich ist die Feststellung wichtig, daß selbst im Falle der Kritikalität im Endlager nicht mit einer Zerstörung der geologischen Barriere zu rechnen ist.

## 6 GEOTECHNISCHER SICHERHEITSNACHWEIS

### 6.1 Geotechnischer Nachweis als Teil des Gesamtsicherheitsnachweis

Die deutschen Sicherheitskriterien liegen in Form einer Empfehlung der Reaktorsicherheitskommission vor /RSK 83/ und wurden 1983 vom BMI veröffentlicht. In den Empfehlungen ist ausgeführt, daß diese Anforderungen nicht in Form allgemeingültiger quantitativer Sicherheitskriterien festgelegt werden können. Die erforderliche Sicherheit eines Endlagerbergwerks kann nur durch eine standortspezifische Sicherheitsanalyse nachgewiesen werden, in der das Gesamtsystem „geologische Verhältnisse, Endlagerbergwerk und Abfallprodukte/-gebände“ mit allen relevanten Einzelkomponenten und deren Wechselbeziehungen untersucht werden muß.

Kernstück der standortspezifischen Sicherheitsanalyse ist der Nachweis der Langzeitsicherheit. Wesentliche Komponenten dafür sind:

- Die Bewertung der technischen, geotechnischen und geologischen Barrieren,
- die Identifizierung und Beurteilung von Szenarien, die diese Barrieren beeinträchtigen und
- die Modellierung der relevanten Zustände und Prozesse in einer Konsequenzanalyse.

Vom Grundsatz her sind die Sicherheitsnachweise zur Einhaltung der Schutzziele Nachweise über die Barrierenfunktion. Diese Nachweise sind in folgender Weise zu führen:

1. Der Nachweis der vollkommenen Isolation über einen bestimmten Zeitraum ist als **geotechnischer Nachweis** zur Funktionstauglichkeit (Integrität, Dichtheit) der Barrieren zu führen.
2. Der Nachweis bei nicht vollkommener Isolation ist als **radiologischer Nachweis** zu führen, und zwar hinsichtlich ausreichend niedriger radiologischer Belastung, gemessen an der natürlichen Radioaktivität. Als Kriterium ist in Deutschland hierfür die Individualdosis von 0,3 mSv/a festgelegt. Die Barrierenbewertung erfolgt in bezug auf ihr ausreichendes Rückhaltevermögen (geringe Durchlässigkeit, Transporteigenschaften, Rückhaltefähigkeit für Radionuklide).

Diese Vorgehensweise gilt in gleicher Weise für ein Endlager für radioaktive Abfälle in Salzgestein als auch in Hartgestein. Die besondere Bedeutung der geotechnischen Nachweise ergibt sich dadurch, daß sie in zweifacher Hinsicht eingesetzt

werden: (1) Als direkter Nachweis des Isolationspotentials (Barrierenwirksamkeit) und (2) als Teilaspekt des radiologischen Nachweises (Langzeitsicherheitsanalyse), nämlich als Grundlage der Szenarienentwicklung bzw. -analyse.

Die wirksame Rückhaltung der Radionuklide im Multibarrierensystem erfolgt nach den Prinzipien Isolation, Sorption und Verdünnung. Der Zeitachse kommt eine besondere Bedeutung zu, weil das Nuklidinventar als Ganzes durch den radioaktiven Zerfall reduziert wird.

Es wird deutlich, daß die Barrierenbewertung in zwei grundsätzliche Aspekte gegliedert ist (Bild 6-1). Als Containment schützen die Barrieren die Abfälle vor einer möglichen Korrosion, Zersetzung und Auflösung. Dieser Schutz ist gemindert bzw. gefährdet, wenn die Integrität des Wirtsgesteins durch geogen vorhandene oder anthropogen erzeugte Wegsamkeiten beeinträchtigt wird. Dieses zu untersuchen bzw. nachzuweisen ist Zielsetzung der geotechnischen Standsicherheits- bzw. Integritätsnachweise.

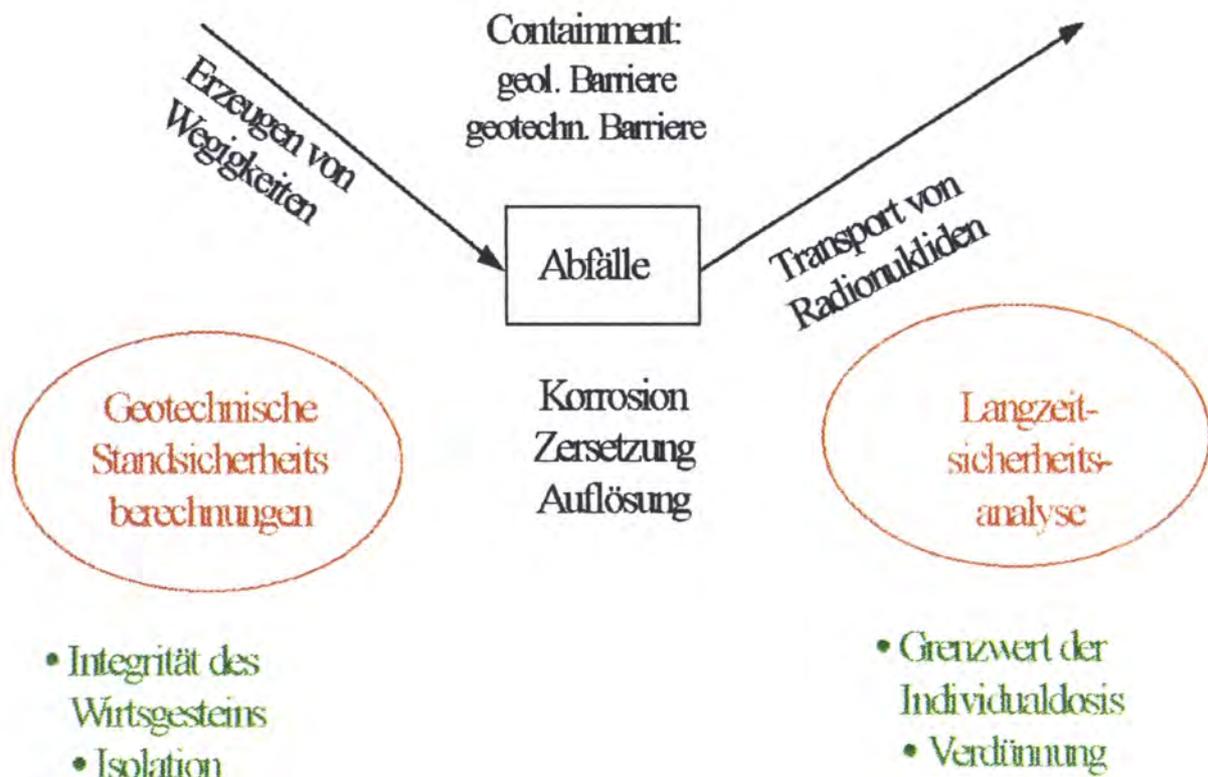
Erst wenn es zu einem Versagen der Barrierenfunktion kommt oder ein solches unterstellt werden muß, können die radioaktiven Abfallstoffe vom Endlager in weiter entfernte Bereiche bis in die Biosphäre transportiert werden. Die Bewertung dieser Transportvorgänge im Hinblick auf die Einhaltung von Grenzwerten der Konzentrationsreduktion (Individualdosis) ist dann Gegenstand von Ausbreitungsrechnungen im Rahmen der Langzeitsicherheitsanalyse.

Selbst bei nicht vollkommener Isolation bietet die geologische Barriere den geotechnischen und technischen Barrieren aber eine stabile und schützende Umgebung und gewährt damit deren Langlebigkeit. Außerdem besitzt sie eine Rückhaltefähigkeit für Radionuklide. Die Wirksamkeit der Barriere ist unter Szenarien zu bewerten, die eine Mächtighkeitsreduktion (z.B. durch Subrosion) bewirken bzw. die Wegsamkeiten (z.B. Risse durch thermomechanische Vorgänge) erzeugen. Die Barriere Deckgebirge kann zur Konzentrationsreduktion ebenfalls beitragen oder nach dem Verdünnungsprinzip Werte der Individualdosis begrenzen.

Bei wärmeentwickelnden Abfällen sind thermomechanische Vorgänge, die zu verschiedenen Zeiten unterschiedliche Wirkungen auf die Barrieren haben, entscheidende Faktoren. Es lassen sich für die thermischen/thermomechanischen Vorgänge folgende charakteristische Zeitabschnitte angeben:

- bis ca. 100 Jahre:      Temperaturmaximum im Endlager, Maximum temperaturinduzierter Zugspannungen im Fernfeld

- bis ca. 1.000 Jahre: Maximum der Fernfelddeformationen, maximale Hebung der Geländeoberfläche
- bis ca. 10.000 Jahre: Ende der thermomechanischen Effekte aufgrund der Zerfallswärme radioaktiver Abfälle
- ca. 200.000 Jahre: Thermomechanische Einwirkungen einer Eiszeit (kryogene Rißbildung).



**Bild 6-1: Grundlage der Sicherheitsanalyse**

Bei Identifikation und Entwicklung von Szenarien werden die vorhandenen Informationen über die Charakteristiken der Abfälle, der (geo)technischen Barrieren sowie die geologischen Gegebenheiten und Ereignisse, die potentiell die Freisetzung und den Transport der Radionuklide beeinflussen können, auf ihre Bedeutung hin geprüft. In der Szenarienanalyse werden die radiologischen Konsequenzen untersucht. Wesentliche Grundlage der Szenarienanalyse bzw. der damit verbundenen Barrierebewertung ist das Simulieren der Gegebenheiten und Prozesse durch möglichst realistische Modelle und die Bewertung der damit verbundenen Unsicherheiten.

Für eine Gegenüberstellung von Endlagerkonzepten in Salz- und in Hartgestein ist es von Bedeutung, daß die Funktion der geologischen Barriere in diesen beiden Wirtsgesteinen grundsätzlich unterschiedlich ist:

- Wegen der günstigen Kriecheigenschaften des Salzgesteins und der Mächtigkeit kompakter Steinsalzschiechten (insbesondere Staßfurtsteinsalz der Salzdiapire) kann erwartet werden, daß die Salzbarriere den Ansprüchen einer vollkommenen Isolation der radioaktiven Abfälle über lange Zeiten genügt. Dieses nachzuweisen ist Ziel der untertägigen Erkundung. Bis auf die Zugänge zum Endlagerbergwerk, für deren Verschuß entsprechende geotechnische Barrieren (Versatz, Dämme, Schachtverschuß) vorzusehen sind und die das Isolationspotential der Salzbarriere wiederherstellen sollen, ist damit die geologische Barriere die Hauptbarriere, die einen vollkommenen Einschluß der radioaktiven Abfälle gewährleisten kann.
- Granitvorkommen als Hartgesteinsformation sind infolge ihrer Tektogenese<sup>12</sup> mehr oder weniger stark geklüftet. Zielsetzung eines Standorterkundungsprogrammes in granitischen Gesteinen ist deshalb in erster Linie die Entwicklung eines geologischen Modells (kristallines Grundgebirge mit relativ höherer Durchlässigkeit, Bereiche des kristallinen Grundgebirges mit relativ geringer Durchlässigkeit als potentieller Einlagerungsbereich, steilstehende größere wasserführende Störungszonen, lokale kleinräumige wasserführende Trennflächen). Für die Endlagergeometrie, speziell bei der Anlage der Schächte und Strecken, sind beim Wirtsgestein die Petrographie, die felsmechanischen und felshydraulischen Eigenschaften sowie die Tiefenlage der geringdurchlässigen Gebirgsbereiche von Bedeutung. Eine besondere Rolle für die Ausrichtung der Einlagerungsstrecken spielen die größeren wasserführenden Störungszonen. Ihre Orientierung und petrographische Ausbildung sowie ihre felsmechanischen und felshydraulischen Eigenschaften haben nicht nur Auswirkungen auf die spätere Endlagerauslegung, sondern sind auch zusammen mit den hydrochemischen Parametern entscheidend für die Einschätzung der Langzeitsicherheit. Anders als bei Salz ist von der geologischen Barriere als Langzeitbarriere nur begrenzt Kredit zu nehmen. In verschiedenen internationalen Endlagerkonzepten in Granitvorkommen sind deshalb die geotechnischen und technischen Barrieren die wesentliche Langzeitbarriere.

## 6.2 Konzept des geotechnischen Sicherheitsnachweises

Die Notwendigkeit eines besonderen Konzeptes für die geotechnischen Nachweise im Untertagebau ergibt sich u.a. daraus, daß sich Standsicherheitsprobleme bzw. Bemessungsaufgaben für untertägige Hohlraumbauten von solchen des allgemeinen Ingenieurbaus im wesentlichen durch folgende Aspekte unterscheiden:

- Das Gebirge übernimmt die eigentliche Tragfunktion bei der Sicherung des Hohlraumes gegen die durch Hohlraumausbruch veränderten Gebirgsspannungen. Die Eigenschaften des Gebirges bestimmen dabei sowohl die Einwirkungen als auch die Gebirgsreaktionen (Widerstände). Für eine gebirgsmechanische Standsicherheitsbetrachtung ergibt sich daraus, daß Einwirkungen und Widerstände innerhalb einer Sicherheitsanalyse voneinander abhängig sind. Wegen dieser Kopplung ist es im allgemeinen schwierig, eindeutige Grenzzustände des Versagens (Verlust der Tragfähigkeit bzw. Verlust der Gebrauchstauglichkeit) zu formulieren.
- Das Gebirge muß in seinem Aufbau und seinen Materialeigenschaften sowie den natürlichen Streuungen dieser Größen standortbezogen erkundet werden. Die Heterogenität des Gebirges und die Streuungen der Materialeigenschaften sind erheblich größer als die von Baustoffen des Ingenieurbaus. Es verbleibt auch nach der Erkundung eine nicht quantitativ zu belegende Unsicherheit in den Gebirgskennwerten. Außerdem können die mechanischen Eigenschaften des Gebirges nicht planmäßig eingestellt werden.

Geotechnische Nachweise für die Standsicherheit und Gebrauchstauglichkeit von untertägigen Hohlräumen des Tunnel- und Kavernenbaus sowie im Bergbau sind deshalb bis heute im wesentlichen nur in Form von Rahmenrichtlinien oder Empfehlungen vorgesehen und lassen bewußt dem freien Ermessen einen großen Spielraum. Eine normative Festlegung der geotechnischen Nachweise hat sich aus folgenden Gründen als nicht zweckmäßig erwiesen:

- Die zum Verlust der Tragfähigkeit oder Gebrauchstauglichkeit führenden Prozesse lassen sich in vielen Fällen noch nicht in konsistenten geowissenschaftlichen Theorien erfassen. Zumindestens sind zutreffende Grenzzustandsgleichungen - einer normativen Festlegung widersprechend - Gegenstand einer kontrovers geführten Diskussion.

- Hinzu kommt, daß nach Expertenmeinung die komplexe standortspezifische Situation durch Benutzung vereinfachter Hypothesen im Regelfall in unzulässiger Weise vereinfacht wird.

Ein praxisorientierter Ausweg aus dieser Situation wird in der Anwendung der sogenannten Beobachtungsmethode gesehen, die baubegleitend aufeinander abgestimmte Kontrollen, Versuche und Berechnungen zum Inhalt hat und ein Bauverfahren erfordert, das eine Anpassung (Nachbesserung) erlaubt. Kerngedanke der Beobachtungsmethode ist, daß ein wie auch immer zustande gekommener Vorentwurf (z.B. durch Modellversuche, Pilotversuche, Erfahrung oder auch durch Vorberechnung) so ausgelegt wird, daß er durch geeignete baubegleitende Messungen kontrolliert werden kann. Die Bestätigung des Standsicherheitsnachweises erfolgt bei dieser Vorgehensweise während des Bauvorgangs durch die baubegleitenden Kontrollmessungen. Die Standsicherheit ist gegeben, wenn definierte, standortspezifisch festgelegte Meßwerte nicht überschritten werden.

Numerischen Simulationsberechnungen kommt bei Anwendung der Beobachtungsmethode im Hinblick auf die Auswahl geeigneter baubegleitender Messungen und die spätere Interpretation der Meßergebnisse eine wichtige Rolle zu. Parameteranalysen und Sensitivitätsstudien sollen Einflüsse auf das Tragverhalten und/oder die Gebrauchstauglichkeit im vornherein abschätzen. Aus dem Eurocode (EC 7), Teil 1, Allgemeine Regeln /DIN 96/ ergibt sich, daß untertägige Hohlräume, die nicht nach Standardverfahren bemessen werden können, der *Geotechnischen Kategorie 3* zuzuordnen sind. Für diese Fälle ist nachzuweisen, daß kein entsprechender Grenzzustand erreicht wird. Dieser Nachweis kann auf einem der vier folgenden Wege oder deren Kombination erbracht werden:

- Berechnungen entsprechend EC 7, Abschn. 2.4,
- Anwendungen konstruktiver Maßnahmen entsprechend EC 7, Abschn. 2.5,
- Modellversuche oder Probelastungen entsprechend EC 7, Abschn. 2.6,
- durch die Beobachtungsmethode entsprechend EC 7, Abschn. 2.7.

Berechnungen entsprechend EC 7, Abschn. 2.4, scheiden jedoch i.a. für Problemstellungen untertägiger Hohlräume aus, *weil das Rechenmodell das Verhalten des Baugrundes im betrachteten Grenzzustand beschreiben muß*, was in den zu betrachtenden Fällen nur für Pfeiler eines Kammer/Pfeiler-Systems vorliegen würde (lastabhängiges Grenzgleichgewichtssystem).

Nach EC 7, Abschn. 2.5 kann, wenn für bestimmte Situationen keine mathematischen Modelle (Grenzzustandsgleichungen) vorliegen, den Grenzzuständen allerdings mit Hilfe konstruktiver Maßnahmen begegnet werden.

EC 7, Abschn 2.7. besagt: *Da die Vorhersage des geotechnischen Verhaltens oft schwierig ist, ist es manchmal angebracht, die sog. Beobachtungsmethode, bei der der Entwurf während der Bauausführung angepaßt wird, anzuwenden. In einem solchen Fall müssen vor Baubeginn folgende Forderungen erfüllt werden:*

- *Die Toleranzgrenzen des Verhaltens müssen festgelegt sein,*
- *der Schwankungsbereich des möglichen Verhaltens muß abgeschätzt und es muß gezeigt werden, daß das wirkliche Verhalten mit annehmbarer Wahrscheinlichkeit innerhalb der akzeptierten Grenzen liegt. Die Bauwerksabmessungen müssen das in einem frühen Stadium erkennen lassen, damit ggf. rechtzeitig Maßnahmen ergriffen werden können. Die Reaktionszeit der Meßgeräte und die Zeit für die erforderlichen Auswertungen müssen für evtl. Systemanpassungen ausreichen,*
- *ein Plan mit den Gegenmaßnahmen muß vorliegen, die zum Zuge kommen, sobald die Bauwerksmessungen auf ein Verhalten außerhalb der Vorgaben deuten.*

In DIN V 1054-100 „Sicherheitsnachweise im Erd- und Grundbau“ /DIN 96a/ erfolgt trotz entsprechender Forderungen und eingehender Diskussionen keine Aussage zum Nachweis der Standsicherheit von Hohlraumbauten (Tunnel u.ä.). Im Abschnitt 6 wird die Beobachtungsmethode behandelt, deren Anwendung - wie oben bereits dargestellt - empfohlen wird. Um so bedeutender sind deshalb die Empfehlungen des Arbeitskreises „Salzmechanik“ der Deutschen Gesellschaft für Geotechnik (DGGT) zur Geotechnik der Untertagedeponierung von besonders überwachungsbedürftigen Abfällen im Salzgebirge - Ablagerung in Bergwerken - /DGG 93/, die darlegen, wie standortbezogene geotechnische Sicherheitsnachweise zu führen sind. Die Beurteilungen können nur standortbezogen und mit den spezifischen Gegebenheiten der jeweiligen Gebirgs- und Deponiesituation durchgeführt werden. Es sind ganzheitliche Betrachtungen notwendig, die geologische und geotechnische Erkundung, In-situ- und Labormessungen, Erfahrungen und rechnerische Untersuchungen in Strukturmodellen integrieren.

Generell gilt jedoch, daß die rechnerischen geotechnischen Nachweise die konkrete Situation, in der sich ein Untertagebauwerk befindet, kritisch analysieren, d.h. auf

mögliche Gefährdungen hin untersuchen und nachweisen sollen, daß sich der tatsächliche Zustand in ausreichend sicherem Abstand zu einem kritischen Zustand befindet. Es kommt also darauf an, die tatsächliche Beanspruchung und deren weitere Entwicklung möglichst zutreffend zu erfassen und zu prognostizieren. Außerdem ist rechnerisch zu ermitteln, wie der kritische Zustand aussieht und durch welche mechanischen Kenngrößen er charakterisiert werden kann.

Für Nachweise der Standsicherheit und Gebrauchstauglichkeit von untertägigen Bauwerken sind aufgrund dieser Vorgehensweise keine abdeckenden Beanspruchungsszenarien und daraus ableitbare globale Sicherheitskriterien festgelegt. Vielmehr müssen geotechnische Nachweise so geführt werden, daß für die jeweils vorliegende standortspezifische Problemstellung alle relevanten Einwirkungen und deren Einflüsse auf das Bauwerk erkannt, erfaßt und bewertet werden können.

Ziel der gebirgsmechanischen Modellrechnungen ist das Erkennen von Gefährdungen (Erreichen von Grenzzuständen) als Grundlage für das Ergreifen adäquater Maßnahmen zur Gefahrenabwehr. Gegen tatsächliche Gefährdungen können folgende Maßnahmen ergriffen werden:

- Vermeidung der Gefährdung,
- Ertüchtigung der Trag- bzw. Funktionseigenschaften oder
- Reduktion der Gefährdung auf ein akzeptables Maß durch Änderung des Entwurfes.

Die Auswirkung der angewendeten Maßnahme ist ebenfalls rechnerisch nachzuweisen und gegebenenfalls iterativ im Hinblick auf eine Risikominimierung zu untersuchen.

Die im Rahmen der geotechnischen Nachweise geforderte standortbezogene, ganzheitliche Betrachtung bedeutet, daß eine Analyse der Gefährdungssituationen alle zur Verfügung stehenden Erkenntnisse berücksichtigen und zusammenfassen muß. Deswegen sind die folgenden Untersuchungen und Bewertungen gleichgewichtige Bestandteile der Gesamtbeurteilung:

- ingenieurgeologische Erkundung und geotechnische Laboruntersuchungen,
- Erfahrungen vor Ort und an ähnlichen Bergwerken,
- In-situ-Messungen und Berechnungen anhand gebirgsmechanischer Modelle.

Gebirgsmechanischen Modellrechnungen kommt dabei eine besondere Bedeutung zu, weil bei der Modellbildung alle verfügbaren Erkenntnisse zu einem Gesamtbild

zusammengefügt werden. Das setzt allerdings voraus, daß die Rechenmodelle das relevante Gebirgsverhalten zutreffend wiedergeben.

Ergebnisse der Erkundung, der Laboruntersuchungen und der In-situ Messungen sowie die Erfahrung reichen für sich genommen in der Regel nicht oder nur unzureichend aus, um die Gesamtsituation zuverlässig zu beurteilen. Die aktuellen Ergebnisse eines auf ausgewählte Lokationen im Bergwerk beschränkten geotechnischen Überwachungs- und Beweissicherungsmeßprogramms müssen i.a. bereits durch begleitende Berechnungen ausgewertet werden, damit eine Gesamtinterpretation möglich wird. Erst recht gilt dies für Prognosen zum Langzeitverhalten, die aus Messungen abgeleitet werden.

### 6.3. Nachweise der geotechnischen Sicherheit

#### 6.3.1 Einzelnachweise

Entsprechend den im vorhergehenden Abschnitt dargelegten allgemeinen Grundsätzen werden geotechnische Nachweise auf der Basis von örtlichen Befunden, standortspezifischen Daten, In-situ-Messungen, Modellrechnungen und Erfahrungen geführt. Während bei einem Endlager in Salzgestein der Nachweis der Funktionstauglichkeit der geologischen Barriere konzeptführend ist, ist nach derzeitiger Endlagerplanung in Kristallinvorkommen der Nachweis der Funktionstauglichkeit der technischen und geotechnischen Barrieren konzeptführend. Die Wichtigkeit dieses Sachverhalts sei nochmals besonders hervorgehoben:

<b>Salzgestein</b>	<b>Hartgestein</b>
Nachweis der Funktionstauglichkeit der <u>geologischen</u> Barriere konzeptführend	Nachweis der Funktionstauglichkeit der <u>technischen und geotechnischen</u> Barriere konzeptführend

Die geotechnischen Sicherheitsnachweise umfassen darüber hinaus allgemein den Nachweis der Betriebssicherheit (Standssicherheit) und den Nachweis der Barrierenintegrität sowie die Modellsimulation gebirgsmechanischer Szenarien. Die Beobachtungsmethode kommt als Nachweisinstrumentarium hauptsächlich für Nachweise, die die Betriebsphase betreffen, in Betracht.

Für ein Endlager sind folgende Einzelnachweise zu führen, und zwar in **Hartgestein**:

- Standsicherheit von Strecken und Kammern im klüftigen Fels einschließlich evtl. notwendiger Sicherungsmaßnahmen in der Betriebsphase des Endlagers,
- Simulation thermo-hydromechanischer Auswirkungen aus der Einlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle als Grundlage der Szenarientwicklung,
- Simulation des mechanischen Verhaltens der Verfüllung als Grundlage der Szenarientwicklung,
- Standsicherheit und Integrität technischer und geotechnischer Barrieren als Grundlage der Szenarientwicklung.

In **Salzgestein**:

- Standsicherheit von Strecken und Kammern in der Betriebsphase des Endlagers,
- Integrität der Salzbarriere gegenüber anthropogenen Einwirkungen (insbesondere thermomechanischen Auswirkungen aus der Einlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle),
- Standsicherheit und Integrität der geotechnischen Barrieren (versetzte Hohlräume, Dämme, Schachtverschluß) in der Nachbetriebsphase des Endlagers,
- Simulation thermomechanischer Auswirkungen aus der Einlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle als Grundlage der Szenarientwicklung.

### 6.3.2 Nachweiskriterien bzw. -indikatoren

Art und Umfang der standortspezifischen Sicherheitsanalyse werden in den Empfehlungen der RSK nicht festgelegt. Die RSK läßt hier bewußt einen Ermessensspielraum und empfiehlt, Kriterien für die Sicherheitsanalyse im Rahmen des Planfeststellungs- und Genehmigungsverfahrens nach dem jeweiligen Stand von Wissenschaft und Technik unter besonderer Berücksichtigung des Einzelfalles zu konkre-

tisieren. Wie bereits ausgeführt, sind quantitative Kriterien für den untertägigen Hohlraumbau auch aus internationalen Normen und Empfehlungen nur in sehr begrenztem Maße zu entnehmen. Die Bewertung der geotechnischen Sicherheit beschränkt sich damit zu einem großen Teil auf Expertenaussagen auf der Grundlage von Modellrechnungen in Verbindung mit Messungen und Erfahrungen.

Die Analyse der Barrierenwirksamkeit und die Konsequenzen der Szenarien beruhen auf Rechnungen mit geologischen, geomechanischen, hydrogeologischen und geochemischen Modellen, deren Ergebnisse anhand von natürlichen Analoga überprüft und anhand von Sicherheitsindikatoren bewertet werden. Die IAEA hat dazu festgestellt, daß berechnete Langzeitkonsequenzen der radiologischen Belastung durch ein Endlager - ausgedrückt in Individualdosen und -risiken - nur als „Indikatoren“ gelten können und durch andere Typen von Sicherheitsindikatoren, die weniger von Annahmen über zukünftige Entwicklungen am Standort abhängig sind, ergänzt werden sollen. Am verlässlichsten in diesem Sinne sind solche Sicherheitsindikatoren, die mit Daten aus der Untersuchung natürlicher Analoga verglichen werden können.

Geomechanische Indikatoren zur Beurteilung der Ergebnisse der geotechnischen Modellrechnungen sind:

- Temperaturen,
- Verformungen (Hohlraumkonvergenz),
- Spannungszustände und
- Auflockerungs- bzw. Bruchbereiche.

Die Anwendung dieser Indikatoren bietet sich insbesondere bei der Bewertung der Standsicherheit und der mechanischen Integrität der geologischen Barriere an. Die Bewertung der Ergebnisse von Berechnungen der Standsicherheit und Gebrauchstauglichkeit (Integrität) zielt darauf ab, festzustellen, ob daraus eindeutig erkennbar ist, inwieweit die Indikatoren einen Grenzzustand für die Standsicherheit oder die Gebrauchstauglichkeit bzw. die stetig Annäherung an einen solchen aufweisen. Modellrechnungen auf der Grundlage erprobter standortspezifischer Modelle erlauben dann die Simulation möglicher Gefährdungen sowie den Vergleich mit der vorhandenen Situation im Hinblick auf ebenfalls rechnerisch zu ermittelnde Grenzzustände der Gefährdungen.

Für die gebirgsmechanischen Modellrechnungen müssen neben den endlagerspezifischen Daten folgende Gebirgskennwerte bekannt sein, und zwar in **Hartgestein**:

- Geologische Schichten,
- Trennflächengefüge (Lage, Raumstellung, Durchtrennung, Öffnungsweite, Rauigkeit u.ä.)
- Formänderungs- und Festigkeitseigenschaften des Gesteins und der Trennflächen,
- Wasserführung und Standrohrspiegelhöhen im Trennflächengefüge sowie ggf. in der Gesteinsmatrix,
- Temperaturleitfähigkeit,
- Primärspannungs- und Primärtemperaturzustand.

#### **In Salzgestein:**

- Salzstockstruktur und räumliche Verteilung der stratigraphischen Schichten,
- Formänderungs- und Festigkeitseigenschaften der verschiedenen Salzgesteine, insbesondere Kriecheigenschaften,
- Temperaturleitfähigkeit,
- Primärspannungs- und Primärtemperaturzustand.

#### **6.4 Geotechnischer Nachweis bei Hartgestein und Salz im Vergleich**

Die unterschiedlichen Zielrichtungen, mit denen geotechnische Nachweise für ein Endlager in Hartgestein und in Salzgestein geführt werden, ergeben sich aus der unterschiedlichen Wichtigkeit der Barrieren.

In Salzgestein stellt die geologische Barriere - abgesehen von den Bergwerkszügen - die Hauptbarriere dar. Der Nachweis der Barrierenwirksamkeit läßt sich im wesentlichen, ausgehend von einer stabilen Ausgangssituation, auf den Nachweis der Beibehaltung der mechanischen Integrität der Salzbarriere zurückführen. Damit ist der geotechnische Integritätsnachweis in dem Sinn konzeptführend, daß mit dem Nachweis des vollkommenen Einschlusses der radioaktiven Abfälle im Salz über ausreichend lange Zeiten der Nachweis der Einhaltung der Schutzziele bereits erbracht wäre. Insofern ist bereits bei der Erkundung des Salzstockes die Salzbarriere weitgehend zu erhalten, und es ist das Anfahren möglicher Schwachstellen (Hauptanhydrit, Salzton) zu vermeiden. Die Szenarienbewertung konzentriert sich auf die Gefährdung der Integrität der Salzbarriere durch mächtigkeitsreduzierende „FEPs“ (*features, events and processes*) wie Subrosion und geochemische Vorgänge sowie rißinduzierende „FEPs“ durch thermomechanische Vorgänge. Da sich die gebirgsmechanischen Vorgänge im wesentlichen durch deterministische Modell-

rechnungen erfassen lassen und Unsicherheiten in den Gebirgskennwerten durch Sensitivitätsstudien mit bekannten Verfahren berücksichtigt werden können, ist der geotechnische Nachweis als direkter Nachweis der Barrierenwirksamkeit auf einer technisch-wissenschaftlich abgesicherten Basis zu führen.

Im Gegensatz zum originär dichten Salzgebirge sind Granitvorkommen in der Regel geklüftet, so daß eine hinreichende Sicherheit selbst ausgewählter Gebirgsbereiche mit geringer Durchlässigkeit nur im Zusammenspiel mit speziell konzipierten geotechnischen und technischen Barrieren gewährleistet werden kann. Nachweise zur Bewertung der Funktion der geologischen Barriere bewegen sich auf einem komplexeren Niveau als bei Salz. Das bedeutet auch, daß größere Unsicherheiten zu berücksichtigen sind. Eine ausreichend genaue Bestimmung der vernetzten Wegigkeiten, der Strömungsverhältnisse und insbesondere der maßgebenden Transportparameter im klüftigen Gebirge über die relevanten großräumigen Gebirgsvolumina im primären Zustand sowie die Änderung unter dem Einfluß thermomechanischer Einwirkungen ist, wenn überhaupt, nur mit extremem Aufwand möglich. In Hartgestein fällt damit den geotechnischen und technischen Barrieren die Hauptbarrierefunktion zu. Vergleicht man allerdings die Robustheit der Barrieren, so steht den geotechnischen Barrieren mit Abmessungen im Meterbereich die geologische Barriere von einigen hundert Metern gegenüber.

Der Nachweis, daß Schutzziele eingehalten werden, ist für jede Art von Wirtsgestein durch den Nachweis der Einhaltung von Dosisgrenzwerten zu erbringen. Im Hartgestein kommt den geotechnischen Nachweisen in diesem Zusammenhang lediglich eine untergeordnete Bedeutung zu, nämlich die Entwicklung und Analyse relevanter Szenarien auf gebirgsmechanischer Grundlage. Durch geotechnische Nachweise wird der dauerhafte Schutz der geotechnischen Barriere gegenüber äußeren Einwirkungen belegt. Außerdem kann die Simulation thermomechanischer Einwirkungen auf das Gebirge genauere Randbedingungen für die Ausbreitungsrechnungen liefern. Insgesamt ist aus einem Vergleich der Anforderungen beim geotechnischen Nachweis ableitbar, daß

- für ein Endlager in Salzgestein der geotechnische Nachweis als Integritätsnachweis der geologischen Barriere zielführend ist,
- für ein Endlager in Hartgestein der geotechnische Nachweis nur eine untergeordnete Rolle spielt. Hier ist der radiologische Nachweis mit deutlichem Bezug auf die Funktionstauglichkeit der geotechnischen/technischen Barrieren maßgebend.



## 7 GEGENÜBERSTELLUNG VON LANGZEITSICHERHEITSANALYSEN FÜR ENDLAGER IN GRANIT- UND SALZFORMATIONEN

### 7.1 Einleitung

Ein direkter Vergleich der Langzeitsicherheit (LZS) von Endlagern durch Berechnung der zu erwartenden Dosisbelastungen setzt voraus, daß die in die Rechnungen eingehenden Modelle auf einem vergleichbaren Beschreibungsniveau liegen und Annahmen zu den Randbedingungen und Szenarien gleiche Aussagesicherheit besitzen. Insbesondere der Grad an Konservativität, den diese Modelle beinhalten, muß vergleichbar sein. Erschwert wird dieser Vergleich außerdem durch die Bandbreiten der möglichen, insbesondere geochemischen Randbedingungen, der unterstellten Szenarien sowie der Einlagerungs- und Verschlusskonzepte.

Am Beispiel einiger seit etwa Mitte der 80er Jahre durchgeführter LZS-Analysen soll deren Leistungsfähigkeit charakterisiert werden. Ihnen allen gemeinsam ist die relative geringe Tiefe, mit denen geochemische Effekte berücksichtigt werden. In Kap. 8 wird daher der derzeitige Kenntnisstand auf dem Gebiet der Geochemie des Mehrbarrierenkonzepts beschrieben. Zukünftige LZS-Analysen werden diese Kenntnisse, die durch weltweite FuE-Arbeiten laufend verbessert werden, berücksichtigen müssen.

Um Unterschiede zwischen LZS-Analysen für Granit und Salz aufzuzeigen, werden Studien aus Deutschland und anderen Ländern, die im Zeitraum 1985 - 1995 durchgeführt wurden, einander gegenübergestellt. Es wird untersucht, welche Effekte und Prozesse in den einzelnen Studien betrachtet werden und welche Auswirkungen diese Effekte auf die Langzeitsicherheit der Endlager haben. Aus der Wirksamkeit dieser Effekte werden die generischen Unterschiede für die Langzeitsicherheit von Endlagern in den beiden geologischen Formationen abgeleitet. Im einzelnen werden charakteristische Kenngrößen, z.B. die relativen Freisetzungsmengen aus dem Abfallgebände oder aus dem Nahbereich sowie die Verdünnungseffekte beim Transport durch die Geosphäre erarbeitet.

Für Granit handelt es sich hierbei um die LZS-Analyse im Rahmen des „Projekts Gewähr“ der NAGRA /NAG 85/, die Mitte der 80er Jahre entstand, weiter um die ebenfalls von der NAGRA durchgeführte Studie „Kristallin-I“ /NAG 94/ und schließlich die schwedische Studie „Project-90“ /SKI 91/, /SKI 91a/. LZS-Analysen für Steinsalz wurden im Rahmen der Systemanalyse Mischkonzept (SAM) /BUH 91/ und der Studie PAGIS, letztere im Auftrag der Kommission der Europäischen Gemeinschaften /STO 88/, durchgeführt.

Der für die LZS-Analysen maßgebende Abfall ist bei den Studien Gewähr, Kristallin-I und PAGIS verglaster HAW, bei Project-90 und SAM hingegen abgebrannter Brennstoff.

## 7.2 Beschreibung der Modellendlager

### 7.2.1 Modellendlager Projekt Gewähr

Das Modellendlager wird in der Nordschweiz in einer mehrere Kilometer breiten Granitscholle in 1.200 m Tiefe angenommen. Das Wirtsgestein hat dort geringe Permeabilität und damit eine geringe Wasserführung. Das Modellendlager ist einschichtig und besteht aus 20 Endlagerstrecken mit je 1.500 m Länge.

Der Studie wird ein Inventar aus einer Energieerzeugung von 240 GWa zugrunde gelegt. Dabei fallen 5.895 HAW-Glaskokillen als hochaktiver Abfall an. Es ist geplant, die Glaskokillen in 15 cm dicke Stahlbehälter einzuschweißen und sie in den 20 Strecken horizontal zu einzulagern. Das entspricht einem Inventar von ca. 300 Kokillen pro Stollen. Der Raum um die Behälter wird mit Bentonit in der Weise verfüllt, daß die Dicke der Bentonitschicht um jeden Behälter an jeder Stelle mindestens 1,35 m beträgt. Mittelaktive Abfälle werden in der LZS-Analyse des Projekts Gewähr nicht betrachtet.

### 7.2.2 Modellendlager Kristallin-I

Die Studie Kristallin-I wurde 1994 veröffentlicht /NAG 94/ und schließt an die Vorgängerstudie, Projekt Gewähr, an. Das Modellendlager entspricht dem des Projekts Gewähr. Es wird in 1.000 m Tiefe im Granit angenommen. Anders als beim Projekt Gewähr wird eine Energieerzeugung von nur 120 GWa zugrunde gelegt. Entsprechend fallen nur 2.693 Glaskokillen mit HAW-Abfällen aus der Wiederaufarbeitung an. Die Abfallbehälter sollen einschichtig in zehn Endlagerstrecken eingelagert werden. Es werden die gleichen Behälter mit einer Wandstärke von 15 cm verwendet. Die Dicke der um die Behälter angebrachten Bentonitschicht beträgt 1,38 m.

### 7.2.3 Modellendlager Project-90

Das Abfallaufkommen in der schwedischen Studie Project-90 entstammt einer Energieerzeugung von ca. 200 GWa. Das Modellendlager wird in 500 m Tiefe in einer Granitformation angenommen. Die Brennstäbe werden in Kupferkanister mit von 10 cm Wandstärke eingeschweißt, der Platz zwischen den Brennstäben wird mit Blei gefüllt. Es sollen 5.000 Behälter eingelagert werden, die insgesamt 7.000 t Uran enthalten.

Das Referenzgebiet liegt in einer hügeligen Region nahe der Küste mit Erhebungen von maximal 250 m. Das Endlager besteht aus einem System horizontaler, paralleler Strecken, die einen Mindestabstand von 25 m von einander haben. Die Strecken sollen ein- oder zweisöhlig angebracht sein. Damit ist gewährleistet, daß kein Behälter eine Temperatur über 80°C erreicht. Die Behälter werden in 7,5 m tiefen Bohrlöchern, die einen gegenseitigen mittleren Abstand von sechs Metern haben, eingelagert. Die Zwischenräume zwischen Behälter und Bohrlochwand sowie eine 1,5 m dicke Schicht über den Behältern werden mit hoch kompaktierten Bentonitblöcken ausgefüllt. Der Boden des Lochs und die dann noch verbleibenden Resthohlräume zwischen Behälter und Bohrlochwand werden mit Bentonit-Pulver ausgefüllt. Die übrigen Hohlräume in den Strecken werden mit einem Sand-Bentonit-Gemisch verfüllt.

### 7.2.4 Modellendlager PAGIS

Die Endlagerung ist in einem Salzstock in 840 m Tiefe vorgesehen. Für PAGIS werden 58.080 HAW-Kokillen aus der Wiederaufbereitung angenommen (~ 2.500 GWa), die in 300 m tiefen Bohrlöchern endgelagert werden. Insgesamt sind 264 Bohrlöcher vorhanden mit 230 Kokillen pro Bohrloch. Die Behälter sind mit 0,5 cm Wandstärke wesentlich dünnwandiger als diejenigen für das Granitendlager.

Innerhalb des Bohrlochs werden die Behälter direkt aufeinander gestapelt. Der Durchmesser des Bohrlochs ist nur unwesentlich größer als der eines Behälters. Das Bohrloch wird nicht mit Versatz gefüllt. Weitere Einzelheiten können dem PAGIS-Abschlußbericht entnommen werden /STO 88/.

### 7.2.5 Modellendlager SAM

Das Abfallaufkommen in dieser deutschen Endlagerstudie resultiert aus einer angenommenen Energieerzeugung von ca. 4.000 GWa. Das Grubengebäude ist in sieben nebeneinanderliegende Einlagerungsabteilungen unterteilt, mit je einem Feld für LWR-Brennelemente, für HAW und für MAW und HTR-Brennelemente pro Abteilung. Die abgebrannten Brennelemente werden in POLLUX-Behälter eingeschweißt. Jedes Feld für LWR-Brennelemente besteht aus 20 Einlagerungsstrecken mit je 17 POLLUX-Behältern, HAW, MAW und HTR-BE werden in 300 m tiefen Bohrlöchern eingelagert.

Bei SAM wurden verschiedene Einlagerungskonzepte untersucht /BEC 89/, von denen hier das Konzept der gemeinsamen Bohrloch- und Streckenlagerung betrachtet wird, da dabei die Freisetzung wie bei Project-90 ausschließlich aus den LWR-BE erfolgt. Das Freisetzungsverhalten der Nuklide wird nicht durch freigesetzte Nuklide aus anderen Abfallarten überlagert.

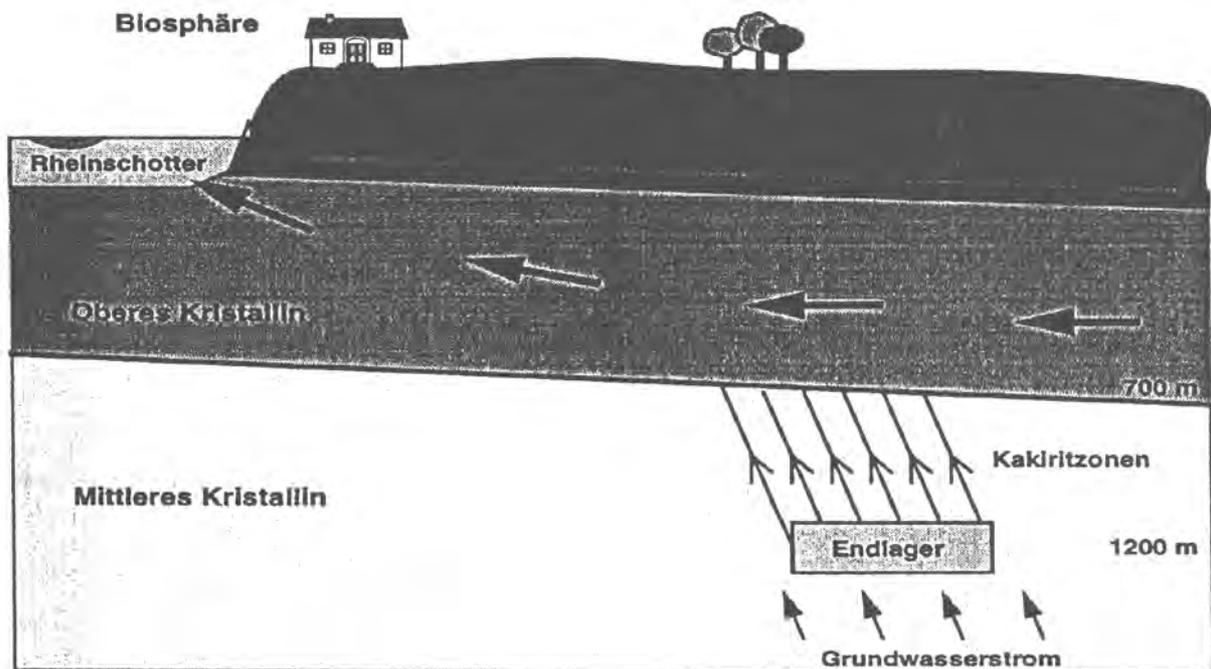
## 7.3 Szenarien

### 7.3.1 Szenarien Projekt Gewähr

Es wird ein Basisfall, das sogenannte Grundwasserszenario, festgelegt, der das wahrscheinlichste Verhalten des Endlagersystems repräsentieren soll. Unsicherheiten werden in verschiedenen Parametervariationen berücksichtigt. Bild 7-1 zeigt schematisch die einzelnen Bereiche der Radionuklidausbreitung.

Im Unterschied zum Endlager in Salz ist Wasserzutritt in Granitgestein kein Störfall. Das Grundwasser tritt kurze Zeit nach Verschluss des Endlagers in die Lagerkavernen, durchdringt den Bentonit, und die Behälterkorrosion beginnt. Es wird angenommen, daß 1.000 Jahre nach Wasserzutritt alle Behälter gleichzeitig versagen. Die Barrierewirkung der Bentonitverfüllung wird bei dieser Studie nur indirekt berücksichtigt, indem die Freisetzungsraten der Spalt- und Aktivierungsprodukte separat mit einem Diffusionsmodell berechnet werden. Diejenigen Nuklide, deren so berechnete Freisetzungsrate aus dem gesamten Endlager kleiner als  $1\mu\text{Ci/a}$  ist, werden nicht weiter für die Ermittlung der Dosisbelastung berücksichtigt. Die Radionuklide werden entsprechend den Auslaugraten und ihren Löslichkeitsgrenzen freigesetzt.

Die Geosphäre besteht aus zwei unterschiedlichen Schichten, dem mittleren und dem oberen Kristallin. Im mittleren Kristallin erfolgt der Radionuklidtransport durch Adern von verwittertem Granitgestein, den Kakiritzonen<sup>13</sup>. In diesen Zonen wird auch die Matrixdiffusion, d. h. die Diffusion in die Poren der Kakiritmatrix, und die dort stattfindende Sorption berücksichtigt. Im oberen Kristallin wird aufgrund der dort viel höheren Grundwasserfließraten kein Transport mehr berechnet, sondern nur eine entsprechende Verdünnung des Schadstoffs angenommen. Eine weitere Verdünnung findet im fluviatilen Schotter des Rheins statt. Der darauffolgende Transport in der Biosphäre wird mit einem Kompartimentmodell berechnet.



**Bild 7-1: Freisetzungsweg der Radionuklide für den Basisfall (Projekt Gewähr)**

Als Parametervariationen wurden zu diesem Basisfall im Nahfeld und in der Geosphäre sechs weitere Rechnungen durchgeführt. Dabei wurden folgende Parameter in den einzelnen Fällen entsprechend verändert:

- Matrixdiffusionskonstante konservativ
- Dispersionslänge konservativ
- Sorption in der Kakiritzone konservativ
- Mächtigkeit der Kakiritzonen konservativ
- Größere Röhrenfrequenz bei kleinerem Röhrendurchmesser
- Matrixdiffusion und Sorption in der Kakiritzone konservativ

Für die Gegenüberstellung der Studien wird die Variante mit konservativer Matrixdiffusionskonstante ausgewählt, da diese Variante am ausführlichsten beschrieben ist und im Basisfall überhaupt nur zwei Nuklide eine maximale Dosisrate  $> 1 \times 10^{-15}$  Sv/a bewirken.

### 7.3.2 Szenarien Kristallin-I

Das Referenzszenario der Kristallin-I-Studie ist dem der Gewähr-Studie in vielen Punkten ähnlich. Direkt nach Verschuß des Endlagers tritt das im unteren Kristallin vorhandene Grundwasser in die Einlagerungsstrecken, durchdringt den Bentonit nach kurzer Zeit und hat dann Kontakt zu den Abfallbehältern. Wie bei der Gewähr-Studie wird angenommen, daß 1.000 Jahre nach Wasserzutritt alle Behälter gleichzeitig versagen. Die Radionuklide werden entsprechend den Auslaugraten in das mit Wasser gefüllte Restvolumen der Abfallmatrix freigesetzt. Wenn Nuklide die Löslichkeitsgrenzen erreichen, fallen sie an der Grenzschicht zwischen Behälter und Bentonitschicht aus. Durch die Bentonitschicht erfolgt der Radionuklidtransport ausschließlich durch Diffusion. Dieser Prozeß wird im Gegensatz zur Gewähr-Studie modellmäßig berücksichtigt.

Zur Beschreibung der Granitschichten standen für diese Studie weitaus mehr Daten zur Verfügung als für die Gewähr-Studie. Aus diesem Grund ist das Modell für das Fernfeld viel komplexer als bei Projekt Gewähr. Der Transport kann in unterschiedlichen Verwitterungszonen stattfinden. Es wird ebenfalls Diffusion in die Poren des verwitterten Gesteins und dort Sorption berücksichtigt. Für das geklüftete System werden, basierend auf geohydraulischen Untersuchungen, sechs verschiedene Geometrien betrachtet, von denen diejenige, bei der die höchsten Dosismaxima erreicht werden, als Referenzfall ausgewählt wird. Im oberen Kristallin sowie in Hauptklüftleitern, die auch im unteren Kristallin auftreten, wird aufgrund der dort viel höheren Grundwasserfließraten kein Transport mehr berechnet. Wenn der Nuklidstrom diese Grundwasserleiter erreicht, wird eine direkte Freisetzung in den Rheinschotter angenommen. Der Transport in der Biosphäre wird wie in der Gewähr-Studie mit einem Kompartimentmodell berechnet.

Zu dem Referenzszenario werden Parametervariationen durchgeführt, die hier nicht im einzelnen betrachtet werden. Neben dem Referenzszenario werden die Konsequenzen für drei weitere Szenarien berechnet:

- Entnahme des Trinkwassers aus einem sehr tiefen Brunnen
- Versagen aller Strecken- und Schachtverschlüsse
- Alternative Klimaentwicklungen.

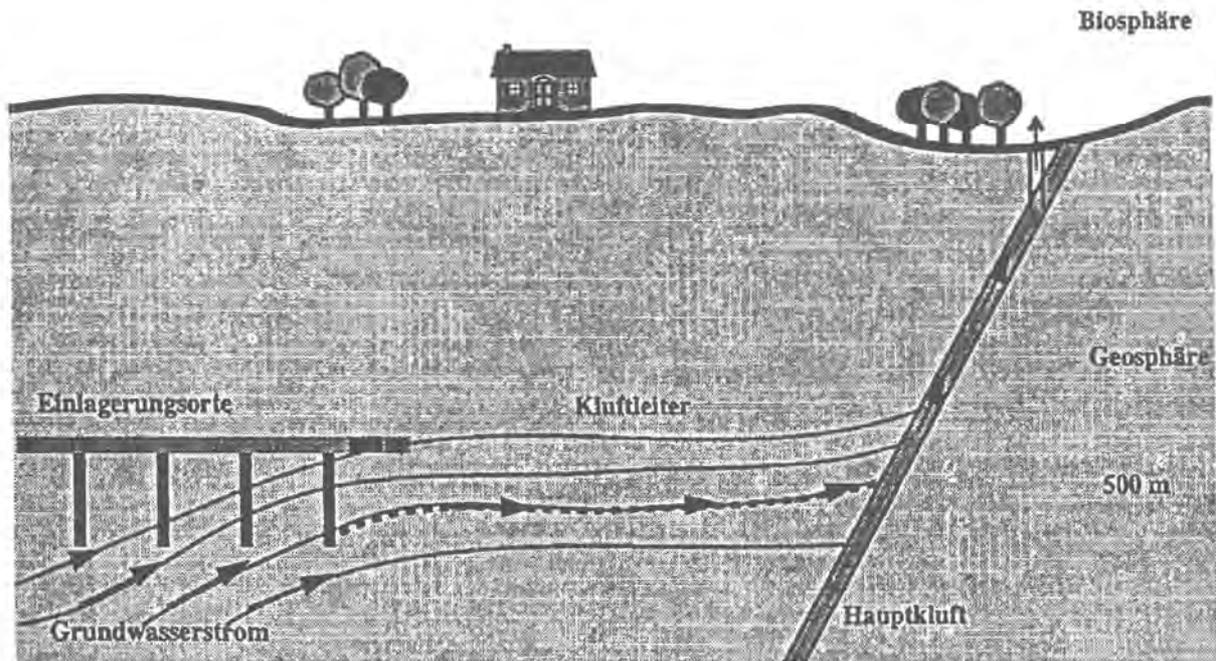
Für die hier durchgeführte Gegenüberstellung wird aus Gründen der Übersichtlichkeit nur das Referenzszenario mit *best-estimate*-Werten betrachtet.

### 7.3.3 Szenarien Project-90

Bei Project-90 werden zu ausgewählten Szenarien Konsequenzberechnungen durchgeführt. Es wird ein Referenz-Szenario mit *best-estimate*-Werten ausgewählt, das auch für die hier durchgeführte Gegenüberstellung herangezogen wird.

Dieses Szenario beginnt mit dem Zutritt des Grundwassers zu den Abfallbehältern nach Beendigung der Betriebsphase. Es wird angenommen, daß genau ein Behälter nach 10.000 Jahren ausfällt. Nach dem Behälterausfall erfolgt die Korrosion des Brennstoffs. Die entsprechend den Auslaugraten und Löslichkeitsgrenzen mobilisierten Radionuklide diffundieren durch die 0,4 m dicke, radial um den Behälter angebrachte Bentonitschicht und gelangen in die Gesteinsmatrix. Durch Radiolyse können oxidierende Substanzen wie Sauerstoff und Wasserstoffperoxid gebildet werden. Diese diffundieren ebenfalls durch die Bentonitschicht und die Gesteinsmatrix. Ihr Transport findet nur in oxidierender Umgebung statt, sonst werden sie verbraucht. Reduzierende Substanzen im Bentonit und in der Gesteinsmatrix sind vor allem zweiwertige Eisenverbindungen in Mineralen wie Siderit, Pyrit oder Magnetit. Als Folge des Prozesses bildet sich eine Redoxfront aus, die langsam vom Abfallbehälter durch die Bentonitschicht in die umgebende Gesteinsmatrix wandert. Das Redoxmilieu hat wesentlichen Einfluß auf Löslichkeitsgrenzen und Sorptionswerte der meisten Radionuklide und damit auf deren Diffusionsgeschwindigkeit.

Der Transport im Fernfeld findet in Kluffzonen statt. Es wird angenommen, daß sich in 200 m Abstand vom Endlager eine Hauptkluffzone mit sehr hoher Permeabilität befindet, in der die Nuklide ohne nennenswerte Verzögerung in den Bereich eines Trinkwasserbrunnens gelangen. Entsprechend wird der Geosphärentransport entlang eines 200 m langen Ausbreitungswegs in parallelen, planaren Kluffleitern bis zur Hauptkluffzone modelliert. Das kontaminierte Wasser wird entsprechend der Grundwasserneubildungsrate verdünnt. Für die Berechnung von Dosiskonversionsfaktoren in der Biosphäre wird angenommen, daß das Brunnenwasser ausschließlich als Trinkwasser verwendet wird. Das Referenzszenario ist schematisch in Bild 7-2 dargestellt.



**Bild 7-2: Freisetzungsweg der Radionuklide für das Referenzszenario (Project-90)**

Zusätzlich zum Referenzfall werden Konsequenzen für fünf weitere Szenarien ermittelt. Es wurden solche ausgewählt, die hohe Dosisraten erwarten ließen. Im einzelnen sind dies:

- Verwerfung
- Auswirkungen menschlicher Einwirkung
- Ausfall des Verschlusses
- Frühes Behälterversagen
- Spätes Behälterversagen

Zur Modellierung der einzelnen Szenarien wurden gegenüber dem Referenzfall entweder Parameter bestimmter Effekte verändert oder vereinfachte Modelle zur Abschätzung einzelner Prozesse verwendet.

#### 7.3.4 Szenarien PAGIS

Man unterscheidet bei Endlagerung in Salz zwischen normaler und gestörter Entwicklung eines Endlagers. Bei normaler Entwicklung werden keine Störungen des Systems betrachtet. Der Versatz erreicht in den Bohrlöchern nach etwa 150 Jahren, in den übrigen Resthohlräumen der Endlagerformation nach ca. 1.000 Jahren die Porosität, die der des umgebenden Salzgebirges entspricht. In diesem Fall werden

keine Radionuklide freigesetzt. Es ist aber ein Szenario denkbar, bei dem der Salzstock durch Subrosion sehr langsam abgetragen wird und nach sehr langer Zeit eine Nuklidfreisetzung erfolgt.

Bei der Modellierung dieses Subrosionsszenarios wurde angenommen, daß nach Ablauf einer Zeitphase von 15 Millionen Jahren der obere Teil des Salzstocks soweit abgetragen ist, daß sich auch Radionuklide aus freigelegten Abfallbehältern im Grundwasser lösen und in die Biosphäre gelangen. Die Bestimmung der Dosisraten in der Biosphäre basiert im wesentlichen auf der Verdünnung von Salzwasser auf trinkbare Konzentrationen von 0,03%.

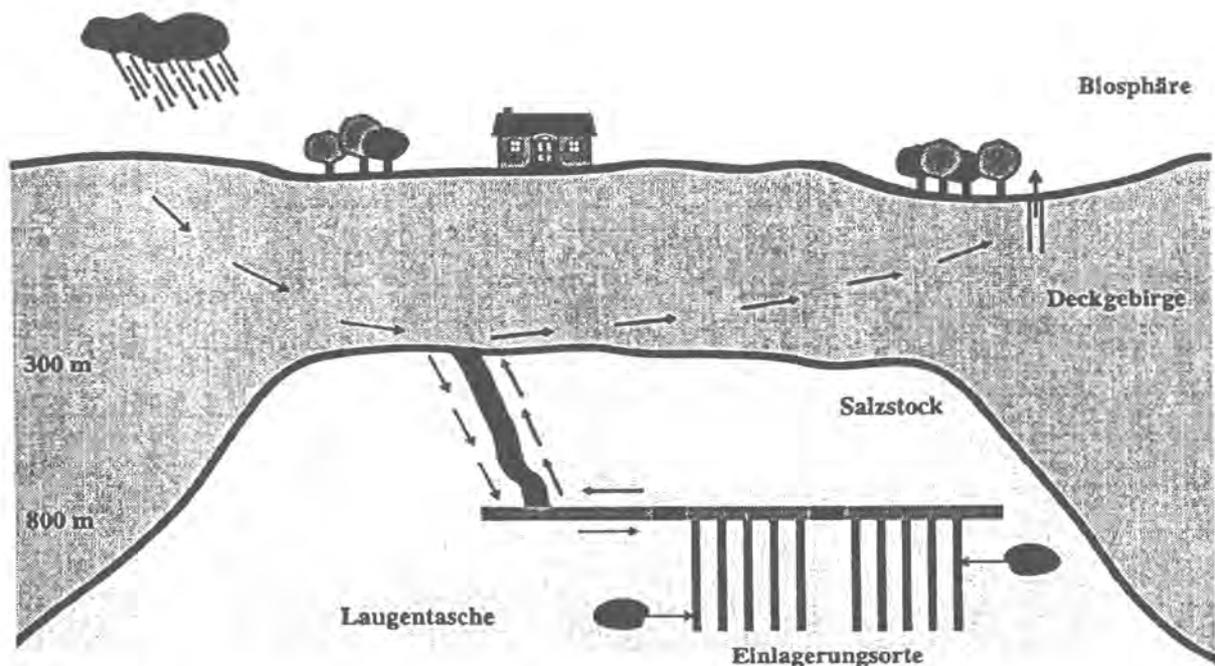
Außerdem können Störungen des Endlagersystems auftreten, bei denen es zur Freisetzung von eingelagerten Nukliden kommt. In der Studie PAGIS wurden Rechnungen zur Langzeitsicherheit für zwei prinzipiell unterschiedliche Szenarien für eine gestörte Entwicklung des Endlagers durchgeführt:

- Laugenzutritt durch den Anhydrit und aus Laugennestern
- Kavernensolung.

Wahrscheinlichkeitswerte für das Eintreten der Szenarien wurden im Rahmen der Studie nicht ermittelt. Für die Kavernensolung wurde angenommen, daß eine Speicherkaverne nach 50jähriger Nutzung mit Lauge verfüllt und verschlossen wird. Es wird angenommen, daß 1.000 Jahre nach Ende der Betriebszeit Lauge Zutritt. Die eingetretene Lauge kann in Kontakt mit einer begrenzten Zahl (115) der Abfallgebinde kommen und nach dem Versagen des Kavernenverschlusses als kontaminierte Lauge aus dem Salzstock freigesetzt werden.

Für die Gegenüberstellung wird das Laugenzutrittsszenario betrachtet, da es innerhalb der nächsten  $10^5$  Jahre in seinen Konsequenzen die anderen Szenarien übertrifft. Der Ereignisablauf ist in Bild 7-3 schematisch dargestellt.

Solange die Resthohlräume des Endlagers durch die Konvergenz noch nicht verschlossen sind, kann Salzlauge in diese Hohlräume eindringen. Solche Laugenzutritte können aus begrenzten Einschlüssen im umgebenden Salzgestein herrühren. Gleichzeitig kann weitere Lauge über den Hauptanhydrit in Endlagerbereiche eindringen. Wenn alle Hohlräume des Endlagers mit Lauge verfüllt sind, kann sie über die Wegsamkeit des Anhydrits ausgepreßt und mit dem Grundwasserstrom bis in die Biosphäre transportiert werden. Über verschiedene Ausbreitungspfade gelangen die Nuklide schließlich in die Nahrungskette und bewirken eine Dosisbelastung des Menschen.



**Bild 7-3: Freisetzungsweg der Radionuklide für das Störfallszenario „Laugenzutritt über den Anhydrit und aus Laugennestern“ (PAGIS)**

### 7.3.5 Szenarien SAM

Bei ungestörter Entwicklung des Endlagers werden die verbliebenen Hohlräume durch die Konvergenz der Resthohlräume im Salz ca. 1.000 Jahre nach Beendigung des Endlagerbetriebs verschlossen sein, so daß ein völliger Abschluß der Abfälle von der Biosphäre gewährleistet ist. Als möglicher Störfall wird in der SAM-Studie sowohl ein unbegrenzter Laugenzutritt über den Hauptanhydrit als auch ein Laugenzutritt aus Laugeneinschlüssen mit begrenztem Volumen im umliegenden Wirtsgestein betrachtet. Es wird angenommen, daß der Laugenzutritt über den Hauptanhydrit in das Mittelfeld des Grubengebäudes frühestens nach 85 Jahren erfolgt. Der Laugenzutritt aus Einschlüssen erfolgt direkt nach Ende der Betriebsphase. Das Szenario entspricht im wesentlichen dem in der PAGIS-Studie beschriebenen. Die Endlager unterscheiden sich allerdings in ihrer Struktur und weisen dementsprechend andere Eigenschaften, wie z. B. andere Temperaturverteilungen und Resthohlräume auf.

## 7.4 Modelle und Parameter

### 7.4.1 Modelle und Parameter im Nahbereich

Bei der Beschreibung wird nur auf die wichtigsten Modellansätze eingegangen. Alle im folgenden aufgeführten Modellansätze und Parameter beziehen sich auf die im vorangehenden Kapitel genannten Referenzfälle. Die in Parametervariationen veränderten Parametersätze werden nicht betrachtet.

#### 7.4.1.1 Nahbereich Projekt Gewähr

Der Grundwasserstrom des Nahfeldes, der das Endlager durchfließt, beträgt  $4,2 \text{ m}^3/\text{a}$ . Es wird angenommen, daß die Wassermenge sich auf die Behälter gleichmäßig verteilt, das heißt, es stehen pro Behälter  $0,71 \text{ l/a}$  zur Verfügung. Eine Wassersättigung des Verfüllmaterials Bentonit ist nach wenigen Hunderten von Jahren zu erwarten. Im Modell wird vereinfacht angenommen, daß das Wasser direkt nach Ende der Betriebsphase Kontakt zu den Abfallbehältern hat.

Bezüglich der Barrierenfunktion der Behälter wird angenommen, daß aufgrund der Wandstärke ein Behälterausfall frühestens nach 1.000 Jahren auftritt. Im verwendeten Modell fallen alle Behälter nach 1.000 Jahren gleichzeitig aus. Nach 1.000 Jahren ist die Temperatur der Glasmatrix nahezu auf Gebirgstemperatur abgesunken. Die Glaskorrosion kann aus diesem Grund temperaturunabhängig modelliert werden.

Es wird eine kongruente Glasauflösung angenommen. Der Prozeß führt zu einer vollständigen Auflösung des Glases nach  $1,5 \times 10^5$  Jahren. Die Mobilisierung der Nuklide erfolgt dabei proportional zur noch in der Abfallmatrix vorhandenen Nuklidmenge. Die Radionuklide werden aus Glasbruchstücken freigesetzt, wobei eine Vergrößerung der auslaugbaren Oberfläche um einen Faktor 12 unterstellt wird. Im Modell wird das durch die Korrosion von gleich großen Glaskugeln simuliert, deren Radius so gewählt ist, daß die Gesamtoberfläche der um den Faktor zwölf erhöhten Oberfläche der Kokillenmatrix entspricht.

Die Freisetzung der Nuklide in den Wasserstrom ist für nicht löslichkeitsbegrenzte Radionuklide durch die Korrosionsgeschwindigkeit der Glasmatrix bestimmt. Die Konzentration ergibt sich aus dem Quotienten der Freisetzungsrates und dem Grundwasserstrom. Für die übrigen Radionuklide wird sie durch die Löslichkeits-

grenzen im Nahfeld limitiert. Die in den Projekten Gewähr, Kristallin-I und PAGIS verwendeten Löslichkeitsgrenzen sind in Tabelle 7-1 dargestellt.

Element	Löslichkeitsgrenze [mol/l]		
	Gewähr	Kristallin-I	PAGIS
Cäsium	hoch	hoch	hoch
Selen	$1,0 \times 10^{-8}$	$1,0 \times 10^{-8}$	$1,0 \times 10^{-4}$
Technetium	$3,2 \times 10^{-8}$	$1,0 \times 10^{-7}$	$1,0 \times 10^{-4}$
Palladium	$1,0 \times 10^{-8}$	$1,0 \times 10^{-11}$	$1,0 \times 10^{-2}$
Zinn	$1,0 \times 10^{-9}$	$1,0 \times 10^{-5}$	$1,0 \times 10^{-2}$
Radium	$1,0 \times 10^{-8}$	$1,0 \times 10^{-10}$	$1,0 \times 10^{-2}$
Uran	$2,5 \times 10^{-9}$	$1,0 \times 10^{-9}$	$1,0 \times 10^{-4}$
Americium	$5,0 \times 10^{-5}$	$1,0 \times 10^{-5}$	$1,0 \times 10^{-4}$
Plutonium	$1,0 \times 10^{-7}$	$1,0 \times 10^{-8}$	$1,0 \times 10^{-4}$
Neptunium	$2,0 \times 10^{-9}$	$1,0 \times 10^{-10}$	$1,0 \times 10^{-5}$
Thorium	$1,0 \times 10^{-8}$	$5,0 \times 10^{-9}$	$1,0 \times 10^{-6}$
Protactinium	$1,0 \times 10^{-8}$	$1,0 \times 10^{-10}$	$1,0 \times 10^{-6}$

**Tabelle 7-1: Löslichkeitsgrenzen im Nahfeld**

Die Barrierenwirkung des Bentonits wird bei den Ausbreitungsrechnungen der Nuklide nur insofern berücksichtigt, als relevante Spalt- und Aktivierungsprodukte ausgewählt und schnell zerfallende beim weiteren Transport nicht mehr betrachtet werden. Die Freisetzung der Nuklide aus der Bentonitschicht wird separat mit einem Nahfeld-Diffusionsmodell berechnet. Dabei wird angenommen, daß die aus dem Bentonit freigesetzten Nuklide unmittelbar außerhalb des Bentonits mit dem vorbeifließenden Grundwasser gemischt werden. Ist die so errechnete maximale Freisetzungsrates der Nuklide kleiner als  $1 \mu\text{Ci/a}$ , wird angenommen, daß sie nur einen vernachlässigbaren Beitrag zur Dosisbelastung liefern. Unter dieser Freisetzungsgrenze liegen z. B. die Spaltprodukte I-129, C-14, Zr-93, Mo-93 und Niob-94. Für die Fernfeldrechnung bleiben die Spaltprodukte Se-79, Tc-99, Pd-107, Sn-126 und Cs-135 übrig. Für alle Nuklide der Zerfallsketten wird die Ausbreitung berechnet. Für sie gilt das Auswahlkriterium nicht. Die so ausgewählten, aus der Abfallmatrix mobilisierten Nuklide gelangen somit direkt in den Grundwasserstrom.

#### 7.4.1.2 Nahbereich Kristallin-I

Der Grundwasserstrom, der das gesamte Endlager durchfließt, ist mit  $3,0 \text{ m}^3/\text{a}$  etwas niedriger als bei Projekt Gewähr. Aufgrund der geringeren Zahl an Behältern ist die Grundwassermenge pro Behälter bei Kristallin-I etwas höher.

Auch bei der Kristallin-Studie wird angenommen, daß das Wasser direkt nach Ende der Betriebsphase Kontakt zu den Abfallbehältern hat und daß alle Behälter nach 1.000 Jahren gleichzeitig ausfallen. Die Behälter stellen danach keine Barriere mehr für den Wasser- oder Radionuklidtransport dar. Die Glaskorrosion wird mit dem in der Gewähr-Studie verwendeten Modell temperaturunabhängig modelliert. Es wird angenommen, daß die Mobilisierung aus allen Abfallbehältern gleichartig erfolgt.

Der Wert  $3,8 \times 10^{-4} \text{ kg}/(\text{m}^2\text{a})$  für die Matrixauslaugrate entspricht dem Wert  $1,0 \times 10^{-7} \text{ g}/(\text{cm}^2\text{d})$ , der bei Projekt Gewähr verwendet wurde. Alle anderen Werte sind identisch. Die Mobilisierung der Nuklide ist nach  $1,5 \times 10^5$  Jahren abgeschlossen. Die aus der Glasmatrix freigesetzten Nuklide diffundieren durch die Bentonitschicht. Löslichkeitsbegrenzte Radionuklide fallen am Übergang Glasmatrix/Bentonit aus. Die Freisetzung aus allen Behältern wird in ein hypothetisches Volumen von  $99 \text{ m}^3$  angenommen, das sich aus den Resthohlräumen der Abfallmatrix herleitet.

Im Gegensatz zur Studie Gewähr wird die Diffusion der Nuklide durch den Bentonit modelliert. Innerhalb des Bentonits wird lineare Sorption nach dem  $K_d$ -Konzept an der Bentonit-Oberfläche angenommen. Die Dicke der Bentonitschicht beträgt  $1,38 \text{ m}$ . Als effektive, nuklidunabhängige Diffusionskonstante wird  $6,3 \times 10^{-3} \text{ m}^2/\text{a}$  gewählt. Die Dichte des Bentonits beträgt  $2.760 \text{ kg}/\text{m}^3$  bei einer Porosität von  $0,38$ . Die Diffusion erfolgt ausschließlich radial. Die Konzentration am inneren Bentonitrand ergibt sich aus der in dem hypothetischen Volumen gelösten Radionuklidmenge.

Die in Kristallin-I verwendeten Löslichkeitsgrenzen sind in Tabelle 7-1, die im Bentonit verwendeten  $K_d$ -Werte sind in Tabelle 7-2 dargestellt. Das Element Zinn hat eine viel höhere, die Elemente Palladium, Radium, Plutonium, Neptunium und Protactinium haben deutlich niedrigere Löslichkeitsgrenzen als in der Gewähr-Studie. Bei den übrigen Elementen unterscheiden sich die Löslichkeitsgrenzen um weniger als einen Faktor 10.

Element	$K_d$ - Bentonit [ $\text{m}^3/\text{kg}$ ]	Element	$K_d$ - Bentonit [ $\text{m}^3/\text{kg}$ ]
Cäsium	$1,0 \times 10^{-2}$	Uran	5,0
Selen	$5,0 \times 10^{-3}$	Americium	5,0
Technetium	$1,0 \times 10^{-1}$	Plutonium	5,0
Palladium	1,0	Neptunium	5,0
Zinn	1,0	Thorium	5,0
Radium	5,0	Protactinium	1,0

**Tabelle 7-2: Sorptionswerte im Bentonit für die Studie Kristallin-I**

Es wird weiter angenommen, daß Radionuklide, die durch die Bentonitschicht diffundiert sind, direkt in das wasserleitende Kluftsystem des Fernfelds gelangen. Als Randbedingung für den Diffusionsprozeß wird angenommen, daß die Rate der Nuklidfreisetzung am Übergang Bentonit-Granit gleich der Rate der Nuklid-Advektion im Fernfeld ist.

#### 7.4.1.3 Nahbereich PAGIS

Der Wasserzutritt zum Endlager im Referenzfall erfolgt direkt nach Ende der Betriebsphase. Er kann sowohl aus Laugennestern als auch über eine Anhydritader erfolgen. Im *Best-estimate*-Fall wird angenommen, daß die Laugenmenge pro Laugennest auf  $30 \text{ m}^3$  begrenzt ist. Für den Zulauf über den Anhydrit ist die Laugenmenge unbegrenzt.

Eine nennenswerte Barrierefunktion der Stahlbehälter wird nicht angenommen. Aus rechentechnischen Gründen wird eine mittlere Lebensdauer von fünf Jahren eingesetzt. Nach dem Behälterausfall beginnt die Glaskorrosion. Sie wird bei PAGIS im Gegensatz zur Gewähr-Studie temperaturabhängig modelliert. Es wird eine Vergrößerung der auslaugbaren Oberfläche um einen Faktor 15 angenommen. Bei einer Matrixtemperatur von  $200^\circ\text{C}$  erhält man bei Multiplikation der Auslaugrate mit der effektiven Oberfläche einen jährlichen Massenumsatz von 6 kg, so daß die HAW-Glasmatrix mit einer Masse von 435 kg nach etwa 72 Jahren vollständig umgesetzt wäre. Fände die Korrosion dagegen bei der Gebirgstemperatur von ca.  $40^\circ\text{C}$  statt, so würde die Umsetzung  $1,2 \times 10^6$  Jahre dauern. Die Temperaturabhängigkeit bewirkt also, daß der Hauptanteil der Nuklide in den ersten 1.000 Jahren nach Laugenzutritt mobilisiert wird.

Die Konzentration der mobilisierten Nuklide in der Lauge wird durch Löslichkeitsgrenzen limitiert. Die kontaminierte Lauge wird aufgrund der Gebirgskonvergenz aus dem Bohrloch ausgepreßt, sobald der gesamte noch vorhandene Hohlraum im Bohrloch mit Lauge gefüllt ist. Sie wird durch weitere Segmente des Endlagers transportiert. Während des Transports durch das Grubengebäude findet eine Verdünnung durch Lauge aus unkontaminierten Bereichen des Grubengebäudes statt. Die kontaminierte Lauge wird schließlich aus dem Mittelfeld in das über dem Salzstock liegende Deckgebirge ausgepreßt.

#### 7.4.1.4 Nahbereich Project-90

Alle im folgenden genannten Modelle und Daten beziehen sich auf den Referenzfall. Rechnungen und Abschätzungen zur Korrosion der verwendeten Kupferbehälter führen zu Behälterlebensdauern  $>10^6$  Jahren. Aus diesem Grund wird nur der Ausfall eines einzelnen Behälters angenommen. Für den Referenzfall wird eine Lebensdauer von  $10^4$  Jahren unterstellt.

Es wird angenommen, daß Grundwasser sofort nach Ende der Betriebsphase Kontakt zu den Behältern hat. Direkt nach Behälterausfall setzt die Korrosion der Brennstoffmatrix ein. Die Mobilisierung der Radionuklide wird aus drei unterschiedlichen Komponenten des Brennstoffs modelliert.

- Gasraum: Instantane Mobilisierung.
- Korngrenzen: Die Mobilisierung erfolgt mit einer Rate von  $3,65 \times 10^{-5}$  pro Jahr. Es wird eine Kinetik erster Ordnung angenommen. Die Mobilisierung ist nach  $2,7 \times 10^4$  Jahren beendet.
- Matrix: Die Radionuklide werden mit der Rate aus der Matrix freigesetzt, mit der die  $UO_2$ -Matrix oxidiert wird. Die Oxidation der  $UO_2$ -Matrix erfolgt durch  $\alpha$ -Radiolyse. Da die radiolytische Oxidation nur in wäßriger Lösung stattfindet, wird die Rate durch den Zeitpunkt des Behälterausfalls bestimmt. Bei einem Behälterausfall nach  $10^4$  Jahren dauert die vollständige Mobilisierung aus der Matrix  $4 \times 10^4$  Jahre. Je später der Behälterausfall erfolgt, desto langsamer verläuft die Mobilisierung aus der Matrix, da durch den Zerfall die Radiolyse rate mit der Zeit abnimmt.

Es wird angenommen, daß sich das Gesamtinventar eines Behälters wie folgt auf die drei Bereiche verteilt:

- 10% des eingelagerten I, Cs, und C sowie 1% des Tc befinden sich im Gasraum.
- 90% des eingelagerten I, Cs, und C sowie 10% des Tc befinden sich auf Korngrenzen.
- Alle übrigen Nuklide befinden sich ausschließlich in der Matrix.

Das Nahfeld besteht aus dem Behälter mit Brennstoff, der umgebenden, 0,4 m dicken Bentonitschicht und einigen wenigen Metern der Granitmatrix. Im Granit verlaufen parallele Klüfte senkrecht auf die Behälterachse zu. Die Klüfte haben einen gegenseitigen Abstand von 1 Meter und eine Weite von 1 mm.

Die aus der Abfallmatrix eines Behälters mobilisierten Radionuklide werden in ein geringes Volumen freigesetzt, das sich aus dem Resthohlraum der Abfallmatrix zu ca. 0,002 m<sup>3</sup> ergibt. Von dort diffundieren die Nuklide durch den Bentonit. Für die Diffusion durch die Bentonitschicht wird radiale Symmetrie angenommen und für alle Elemente ein Diffusionskoeffizient von  $4 \times 10^{-11}$  m<sup>2</sup>/s. Die Porosität des Bentonits beträgt 0,35 bei einer Dichte von 2.050 kg/m<sup>3</sup>. Für nicht sorbierende Nuklide beträgt die Diffusionszeit durch den Bentonit ca. 100 Jahre. Nuklide, die an der Bentonitmatrix sorbieren, diffundieren entsprechend langsamer. Bei löslichkeitsbegrenzten Nukliden führt die Sorption dazu, daß der Anstieg auf die konstante maximale Konzentration am Übergang Bentonit/Granit viel länger dauert.

In der angrenzenden Granitzone findet der Nuklidtransport durch Diffusion in der Matrix und durch Advektion in den Klüften statt. Der Diffusionsprozeß durch die Granitmatrix wird mit einem zweidimensionalen Modell berechnet. Als Diffusionskonstante in der Granitmatrix wird  $5 \times 10^{-14}$  m<sup>2</sup>/s angenommen. Der Volumenstrom in den für den Transport zur Verfügung stehenden Klüften beträgt  $6,5 \times 10^{-4}$  m<sup>3</sup>/a.

Da im Bentonit und Granit wegen dort vorhandener elementarer Eisen- und Eisen(II)-Bestandteile reduzierendes chemisches Milieu herrscht und durch  $\alpha$ -Radiolyse oxidierende Substanzen im Wasser entstehen, wird die Ausbildung und Wanderung einer Redoxfront angenommen. Die durch  $\alpha$ -Radiolyse gebildete Menge an oxidierenden Substanzen wird als Funktion der Zeit eingegeben. Eine weitere konservative Annahme ist, daß die gesamte Menge der gebildeten oxidierenden Substanzen sowohl für die Umwandlung der UO<sub>2</sub>-Matrix als auch für die Diffusion durch die Bentonit- und Granitmatrix zur Verfügung steht. Für die einzelnen Systemkomponenten Behälter, Bentonit und Gesteinsmatrix wird jeweils eine begrenzt-

te Reduktionskapazität angenommen. Für die Kluftzonen wird postuliert, daß die Reduktionskapazität des Grundwassers unbegrenzt ist, dort also immer reduzierende Bedingungen herrschen. Weiter wird angenommen, daß alle Redoxreaktionen instantan ablaufen. Unter den angenommenen Bedingungen bewegt sich die Redoxfront in 3.000 Jahren vom Behälterrand durch die Bentonitschicht. Der darauf folgende Transport in der Gesteinsmatrix ist aufgrund der geringeren Porosität wesentlich langsamer. Nach  $10^6$  Jahren ist die Redoxfront bei allen Parametervariationen maximal einen Meter in die Matrix vorgedrungen. Die Redoxverhältnisse haben wesentlichen Einfluß auf die Löslichkeiten und die Sorption der meisten Elemente im Nahbereich.

#### 7.4.1.5 Nahbereich SAM

Der Laugenzutritt über den Hauptanhydrit beginnt 85 Jahre nach Ende der Betriebsphase und führt über Zufahrtsstrecken in das Mittelfeld. Erst wenn alle Hohlräume des Mittelfelds mit Lauge gefüllt sind, wird Lauge in andere Segmente transportiert. Der Zutritt aus unentdeckten Laugennestern erfolgt direkt nach Ende der Betriebsphase. Das Volumen der Einschlüsse wurde im Referenzfall auf  $45 \text{ m}^3$  beschränkt. Bei der Konsequenzenberechnung mit *Best-estimate*-Werten findet keine Nuklidfreisetzung statt, da aufgrund der Konvergenz des Salzgesteins die Verbindungswege zwischen Abfällen und Geosphäre geschlossen sind, bevor kontaminierte Lauge ausgetreten ist. Aus diesem Grund wird hier eine Rechnung mit erhöhten Laugenmengen von  $500 \text{ m}^3$  aus den Laugeneinschlüssen sonst aber mit *Best-estimate*-Werten betrachtet. Es werden je sechs Laugeneinschlüsse in der Umgebung ausgewählter Einlagerungsstrecken ausgewählter Bohrlöcher angenommen.

Der Laugenzutritt in die Einlagerungsorte erfolgt ausschließlich aus den Laugennestern, da der Zulauf über den Anhydrit sehr lange dauert. Die Resthohlräume des Mittelfelds sind erst zu einem Zeitpunkt vollständig mit Lauge gefüllt, zu dem schon kontaminierte Lauge aus dem Einlagerungsort ausgepreßt wird. Nach 1.100 Jahren sind ca.  $300 \text{ m}^3$  Lauge in die beiden Einlagerungsstrecken zugelaufen und davon knapp  $200 \text{ m}^3$  Lauge wieder ausgepreßt worden; nach  $1,0 \times 10^6$  Jahren sind  $626 \text{ m}^3$  Lauge zugelaufen.

Nach Laugenzutritt in die Abfallsegmente erfolgt die Nuklidmobilisierung. Die Geschwindigkeit der Mobilisierung ist abhängig von der Behälterlebensdauer und der Mobilisierungsrate aus der Brennstoffmatrix. Die Mobilisierung aus den HAW-Glaskokillen wird wie in der PAGIS-Studie modelliert.

Die LWR-Brennelemente werden in POLLUX-Behältern gelagert. Für die Behälter wird eine exponentielle Verteilung der Lebensdauer angenommen. Für die mittlere Behälterlebensdauer wird als *best estimate* 500 Jahre eingesetzt. Das bedeutet, daß nach 350 Jahren 50% und nach 2.300 Jahren 99% der Behälter ausgefallen sind. Die Mobilisierung erfolgt aus drei verschiedenen Teilbereichen mit den in Klammer angegebenen konstanten Mobilisierungsraten der Elemente:

- Metallteile (0,02/a)
- Gasraum in den Brennstäben (0,1/a)
- Brennstoffpellets (0,0016/a).

Die Mobilisierung aus dem Gasraum erfolgt also innerhalb von 10 Jahren nach Behälterausfall. Unter den Bedingungen des Referenzfalls ist die Mobilisierung der Radionuklide ca. 1.100 Jahre nach Zutritt der Lauge zu den Behältern abgeschlossen. Dabei wird für die relevanten Nuklide die in Tabelle 7-3 dargestellte Verteilung zwischen den drei Bereichen angenommen.

Elemente	relativer Inventaranteil in [%]		
	Gasraum	Korngrenze	Metallteile
Kohlenstoff	0,0	0,0	100,0
Selen	1,0	99,0	0,0
Technetium	1,5	98,4	0,1
Palladium, Zinn	1,5	98,5	0,0
Uran, Aktiniden	0,8	99,2	0,0

**Tabelle 7-3: Elementspezifische Inventaranteile für ausgewählte Elemente in den einzelnen Bereichen eines LWR-Brennelementes**

Hinsichtlich der elementspezifischen Löslichkeit wurde abgeschätzt, daß der pH-Wert der Lauge in den Einlagerungsstrecken aufgrund des Gehalts an Magnesium im sauren Bereich liegt. Die in Project-90 und SAM verwendeten elementspezifischen Löslichkeitsgrenzen sind in Tabelle 7-4 zusammengefaßt.

Es wird angenommen, daß Sorption im Grubengebäude ausschließlich an Korrosionsprodukten des Zements stattfindet. In den LWR-Endlagerbereichen und den Ausbreitungswegen bis zur Geosphäre ist kein Zement vorhanden, so daß Sorption im Nahbereich der LWR-Abfälle nicht modelliert wird.

Element	Project-90		SAM
	oxidierend	reduzierend	sauer
Selen	$1,0 \times 10^{-1}$	$3,0 \times 10^{-8}$	$1,0 \times 10^{-4}$
Technetium	-	$2,0 \times 10^{-9}$	$1,0 \times 10^{-4}$
Zinn	$1,0 \times 10^{-9}$	$1,0 \times 10^{-11}$	$1,0 \times 10^{-2}$
Jod	-	-	-
Cäsium	-	-	-
Uran	$1,0 \times 10^{-5}$	$4,0 \times 10^{-8}$	$1,0 \times 10^{-4}$
Americium	$4,0 \times 10^{-7}$	$4,0 \times 10^{-7}$	$1,0 \times 10^{-4}$
Plutonium	$4,0 \times 10^{-9}$	$4,0 \times 10^{-8}$	$1,0 \times 10^{-6}$
Neptunium	$1,5 \times 10^{-3}$	$4,0 \times 10^{-9}$	$1,0 \times 10^{-5}$
Thorium	$1,7 \times 10^{-9}$	$1,7 \times 10^{-9}$	$1,0 \times 10^{-6}$
Protactinium	$1,6 \times 10^{-8}$	$1,6 \times 10^{-8}$	$1,0 \times 10^{-6}$

**Tabelle 7-4: Bei Project-90 und SAM in Abhängigkeit des chemischen Milieus verwendete Löslichkeitsgrenzen**

Die kontaminierte Lauge wird aufgrund der Gebirgskonvergenz aus den Einlagerungsstrecken ausgepreßt, sobald der gesamte noch vorhandene Hohlraum der Strecken mit Lauge gefüllt ist. Sie wird durch weitere Segmente bis in das Mittelfeld transportiert und von dort in das darüberliegende Deckgebirge. Auf dem gesamten Transportweg, besonders aber im Mittelfeld, findet eine Verdünnung der kontaminierten Lauge mit unkontaminierter Lauge statt.

#### 7.4.2 Modelle und Parameter im Fernfeld

##### 7.4.2.1 Fernfeld Projekt Gewähr

Das Fernfeld ist bei der Gewähr-Studie in zwei Schichten des Kristallins unterteilt, die sich in ihren hydraulischen Eigenschaften wesentlich voneinander unterscheiden: das mittlere und das obere Kristallin. Das mittlere Kristallin besteht aus Granit, das von einem Netzwerk von 1 Meter mächtigen Kakiritzonen durchzogen ist. Im Referenzfall wird angenommen, daß diese Kakiritzonen in Abständen von 125 m auftreten und in einem Winkel von 70° zur Horizontalen stehen (vgl. Bild 7-1). In diesen Kakiritzonen verlaufen Röhren mit einem Durchmesser von 1 mm und einem Abstand von 1 m voneinander, durch die der Grundwassertransport im mittleren Kristallin erfolgt. Es wird angenommen, daß die Nuklide während

des Transports senkrecht zur Transportrichtung in die Kakiritmatrix diffundieren können und an den Korngrenzen in der Matrix sorbieren. Die Matrixdiffusionskonstante wird konservativ zu  $4,7 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{a}$  angenommen, bei einer maximalen Eindringtiefe in die Matrix von 50 cm und einer Matrixporosität von 0,033. Die Sorption erfolgt dabei linear nach dem  $K_d$ -Konzept.

Die Länge des Transportwegs beträgt 500 m. Der Volumenstrom, der die gesamte Endlagerfläche passiert wird in der Studie zu  $4,2 \text{ m}^3/\text{a}$  angenommen. Daraus ergibt sich eine Fluidtransportzeit von 85 Jahren. Legt man die gesamte Endlagerfläche zugrunde, ergibt sich, daß der Transport durch 8.860 Röhren im Kakirit stattfindet, was einem Röhrenquerschnitt von insgesamt  $0,7 \text{ m}^2$  entspricht. Als Referenzwert für die Dispersionslänge wird 50 m angenommen.

Im oberen Kristallin wird aufgrund der wesentlich höheren Grundwassergeschwindigkeiten kein Transport modelliert, sondern nur ein Verdünnungsfaktor von  $2 \times 10^4$  angenommen. Eine weitere Verdünnung, für die bei den Rechnungen ein Faktor 80 verwendet wird, findet beim Übergang in den Rheinschotter statt. Der gesamte Reduktionsfaktor durch Verdünnung im Fernfeld beträgt demnach  $1,6 \times 10^6$ .

#### 7.4.2.2 Fernfeld Kristallin-I

Das Endlager soll im unteren Granitgestein errichtet werden. An eine untere Granitzone geringer Durchlässigkeit schließt sich oberhalb 500 m Teufe eine Zone höherer Durchlässigkeit an. Als Wasserleiter befinden sich im Ausbreitungsgebiet kataklastische<sup>14</sup> Zonen, geklüftete Zonen und Hauptkluftzonen. Es wird angenommen, daß das Endlager einen Mindestabstand von 100 m von den Hauptkluftleitern hat und im Referenzfall der Transport nur in kataklastische und geklüftete Zonen stattfindet. Es wird ein Modell entwickelt, in dem sechs verschiedene Geometrien für den Verlauf dieser wasserleitenden Zonen angenommen wird. Für den Referenzfall wird aus Konservativitätsgründen diejenige von den sechs Geometrien ausgewählt, für die sich die höchste Dosisbelastung durch Cs-135 in der Biosphäre ergibt. Bei dieser Geometrie erfolgt der Fluidtransport nur in planaren kataklastischen bzw. geklüfteten Zonen. Diese Klüfte haben eine Höhe von 1 mm und eine Breite von 100 mm. Die gesamte Endlagerfläche, die vom Grundwasserstrom durchflossen wird, beträgt  $1,4 \times 10^5 \text{ m}^2$ . Für den Fluidtransport steht ein Flächenanteil von  $2,4 \times 10^{-6}$  zur Verfügung, gleichbedeutend mit einem Querschnitt von  $0,336 \text{ m}^2$ . Das entspricht 3.336 Klüften mit einer Höhe von 1 mm und einer Breite von 100 mm. Der gesamte Volumenstrom im Fernfeld ( $\dot{V}_{Fe}$ ) beträgt  $3 \text{ m}^3/\text{a}$ . Als Länge des Transportweges wird

200 m angenommen. Die Transportzeit ergibt sich daraus zu 20 Jahren. Die Dispersionslänge beträgt 50 m. Während des Transports wird Diffusion in die Matrix und Sorption an der Matrixoberfläche angenommen. Die Matrixdiffusionskonstante beträgt  $1 \times 10^{-3} \text{ m}^2/\text{a}$ , bei einer maximalen Eindringtiefe in die Matrix von 5 cm und einer Matrixporosität von 0,05.

In dem darüberliegenden Kristallin bzw. in einer Hauptklüftzone wird kein Transport modelliert. Aus diesem Grund wird nach dem Transport durch die untere Granitzone eine Freisetzung der Nuklide direkt in den Rheinschotter angenommen. Der Grundwasserstrom durch die fluviatilen Rheinschotter beträgt  $5,5 \times 10^6 \text{ m}^3/\text{a}$ . Man erhält also einen Verdünnungsfaktor  $\dot{V}_{rs} / \dot{V}_{rh}$  beim Übergang vom unteren Granit in den Rheinschotter von  $2 \times 10^6$ .

#### 7.4.2.3 Fernfeld PAGIS

Der Nuklidtransport durch das Deckgebirge findet bei PAGIS im porösen Medium statt. Er wird mit einem eindimensionalen Transportprogramm berechnet. Für den Transportweg wird eine homogene Stromröhre mit konstantem Querschnitt angenommen. Der Transportweg ist 9.300 m lang bei einem Querschnitt von  $3,69 \times 10^4 \text{ m}^2$ . Der Volumenstrom beträgt  $4,8 \times 10^4 \text{ m}^3/\text{a}$ . Daraus ergibt sich eine Fluidtransportzeit von 1.450 Jahren. Als Dispersionslänge wurde 65 m gewählt. Die Porosität beträgt 0,2, die Dichte des Gesteins  $2.500 \text{ kg}/\text{m}^3$ . Es wird lineare Sorption nach dem  $K_d$ -Konzept an der Oberfläche des Aquifermaterials angenommen.

Der Volumenstrom liegt etwa in der Größenordnung desjenigen im oberen Kristallin der Gewähr-Studie. Beim Übergang der aus dem Endlager ausgepreßten kontaminierten Lauge in den Volumenstrom des Deckgebirges ergibt sich ebenfalls eine Verdünnung. Diese entspricht dem Verhältnis aus dem Volumenstrom im Deckgebirge und dem Laugenstrom aus dem Grubengebäude. Letzterer nimmt allerdings im Laufe der Zeit ab. Zur Bestimmung des Verdünnungsfaktors wurde der Laugenstrom zum Zeitpunkt der maximalen Nuklidfreisetzung gewählt. Dieser Laugenstrom beträgt ca.  $1,2 \text{ m}^3/\text{a}$ , woraus ein Verdünnungsfaktor von  $4 \times 10^4$  resultiert.

#### 7.4.2.4 Fernfeld Project-90

Der Transport im Fernfeld wird mit einem eindimensionalen Transportcode modelliert. Es wird ein Transport durch parallele Klüfte mit einer Klüfthöhe von  $10^{-4} \text{ m}$

angenommen. Die Porosität des geklüfteten Gesteins beträgt  $10^{-4}$ , was einem Kluftabstand von 1 m entspricht. Die Länge des Transportwegs beträgt 200 m. Wenn man als Querschnittsfläche des Endlagers  $1,0 \times 10^6 \text{ m}^2$  zugrunde legt, erhält man für den Referenzfall einen Volumenstrom von  $100 \text{ m}^3/\text{a}$ . Daraus ergibt sich eine Fluidtransportzeit von 200 Jahren. Als Referenzwert für die Dispersionslänge wird 50 m angenommen.

Bei den betrachteten Szenarien wird nur der Ausfall eines einzelnen Behälters angenommen. Die zugehörige Fläche, die vom Grundwasser durchflossen wird, beträgt  $6,5 \text{ m}^2$ . Das entspricht einer jährlich für die Lösung der Nuklide zur Verfügung stehenden Wassermenge von 0,65 l. Im gesamten Sicherheitsbericht werden keine Nuklidkonzentrationen sondern ausschließlich Freisetzungsraten angegeben. Um diese besser mit den Daten aus SAM und der anderen Studien vergleichen zu können, werden die Freisetzungsraten in Konzentrationen umgerechnet.

Im Fernfeld errechnet sich der Verdünnungsfaktor am Übergang Geosphäre/Biosphäre als Quotient aus der Wasserneubildungsrate des Brunnens und dem Wasserfluß pro Abfallbehälter im Endlager. Mit den Werten  $4,5 \times 10^3 \text{ m}^3/\text{a}$  und  $6,5 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{a}$  ergibt sich der für alle Nuklide identische Reduktionsfaktor zu ca.  $7 \times 10^6$ .

Matrixdiffusion wird senkrecht zur Transportrichtung in die Gesteinsmatrix angenommen. Parameter für die Matrixdiffusion sind die Matrixporosität von  $1 \times 10^{-3}$ , die Diffusion in die Matrix von  $5 \times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$ , die Eindringtiefe von 0,1 m und ein Faktor von  $0,01 \text{ m}^{-1}$ , der ein Maß für die in der Kluft zur Verfügung stehende Matrixoberfläche darstellt, durch die die Diffusion erfolgt. Als Sorptionswerte werden die im Nahbereich für Granit verwendeten  $K_d$ -Werte eingesetzt. Da die Redoxfront in  $10^6$  Jahren nur ca. 1 m weit in die Granitmatrix gewandert ist, werden für den gesamten Ausbreitungsweg im Fernfeld reduzierende Bedingungen angenommen.

#### 7.4.2.5 Fernfeld SAM

Die Modellierung des Geosphärentransports erfolgt wie bei der PAGIS-Studie. Beim Übergang der aus dem Endlager ausgepreßten kontaminierten Lauge in den Volumenstrom des Deckgebirges ergibt sich eine Verdünnung im Verhältnis des Volumenstroms im Deckgebirge und des Laugenstroms aus dem Grubengebäude. Der Laugenstrom aus dem Grubengebäude nimmt mit zunehmender Zeit ab. Zur Bestimmung des Verdünnungsfaktors wurde der Laugenstrom zum Zeitpunkt der ma-

ximalen Nuklidfreisetzung gewählt; bei SAM liegt dieser Laugenstrom für alle Nuklide im Mittel bei  $0,5 \text{ m}^3/\text{a}$ , woraus ein Verdünnungsfaktor von ca.  $1 \times 10^5$  resultiert.

#### 7.4.3 Modelle und Parameter in der Biosphäre

In den Studien PAGIS und SAM sind Dosiskonversionsfaktoren die zentrale Eingangsgröße zur Berechnung von Dosisraten. Bei der Ermittlung der Dosiskonversionsfaktoren werden die verschiedenen Pfade betrachtet, auf dem die Radionuklide aus dem kontaminierten Grundwasser in den Menschen gelangen. Dabei werden die Verzehrsgewohnheiten eines Erwachsenen und die Dosisfaktoren zugrunde gelegt. Mit den Dosiskonversionsfaktoren werden die Konzentrationen der Nuklide am Übergang Geosphäre/Biosphäre in Dosisraten umgerechnet.

Der Transport in der Biosphäre wird bei Projekt Gewähr und Kristallin-I mit einem Kompartimentmodell berechnet. Nach dem Übergang in den Rheinschotter findet ein Stoffaustausch mit Oberflächenwässern und schließlich die Nuklidaufnahme durch Pflanzen und Tiere statt. Die resultierende Dosis wird aus den Aktivitätskonzentrationen in den einzelnen Nahrungsmitteln, den Konsummengen der Nahrungsmittel und den Dosisfaktoren berechnet. Um einen groben Vergleich der Wirkung in diesen beiden Studien mit derjenigen in PAGIS zu haben, wurden für Projekt Gewähr und Kristallin-I aus dem Quotient von maximaler Dosisrate und maximaler Konzentration im Rheinschotter quasi Dosiskonversionsfaktoren abgeschätzt. Diese sind in Tabelle 7-5 vergleichend zu den bei PAGIS verwendeten Dosiskonversionsfaktoren dargestellt.

Nuklid	Gewähr	Kristallin-I	PAGIS
Se-79	$3,9 \times 10^{-6}$	$3,9 \times 10^{-5}$	$6,1 \times 10^{-7}$
Tc-99	$9,0 \times 10^{-7}$	$2,0 \times 10^{-5}$	$6,3 \times 10^{-7}$
Pd-107	$2,3 \times 10^{-8}$	-	$5,4 \times 10^{-8}$
Sn-126	$5,6 \times 10^{-5}$	-	$4,6 \times 10^{-6}$
Cs-135	$2,3 \times 10^{-6}$	$8,3 \times 10^{-6}$	$3,7 \times 10^{-6}$
Np-237	$8,5 \times 10^{-3}$	$1,5 \times 10^{-2}$	$7,5 \times 10^{-4}$

**Tabelle 7-5: Dosiskonversionsfaktoren ausgewählter Spaltprodukte (Sv/a pro Bq/l)**

Bei der Studie Kristallin-I wurden keine maximalen Konzentrationen am Übergang Geosphäre/Biosphäre angegeben. Diese maximalen Konzentration nach Verdün-

nung durch den Grundwasserstrom wurden aus den Konzentrationen am Übergang Nahbereich/Fernfeld und dem Verhältnis aus Eingangs- und Ausgangsstrom in bzw. aus der Geosphäre für das jeweilige Nuklid berechnet. Für Pd-107 und Sn-126 wurden keine maximalen Dosisraten für den Referenzfall angegeben, da sie um mehr als fünf Größenordnungen niedriger liegen als die maximale Dosisrate von Cs-135. Für diese beiden Nuklide konnten deswegen keine Dosiskonversionsfaktoren berechnet werden.

Bei Project-90 werden zwei mögliche Ausbreitungspfade in der Biosphäre betrachtet, der Radionuklidfluß in einen Brunnen zur Trinkwassergewinnung und der Radionuklidfluß in einen See. Für beide Szenarien wurden Dosiskonversionsfaktoren hergeleitet. Unter den getroffenen Annahmen liegen die Dosiskonversionsfaktoren für den Ausbreitungsweg über den Brunnen um mehrere Größenordnungen höher als die bei Ausbreitung über einen See. Für die Gegenüberstellung mit SAM (Tabelle 7-6) wird nur der zu erheblich höheren Dosisbelastungen führende Brunnenpfad betrachtet. Für alle hier ausgewählten Nuklide aus Zerfallsketten liegen die Dosiskonversionsfaktoren bei beiden Studien in der gleichen Größenordnung. Bei den Spaltprodukten sind die Abweichungen zwischen beiden Studien etwas größer. Die Werte liegen mit Ausnahme des Se-79 bei der SAM-Studie um einen Faktor zwei bis maximal vier höher.

Nuklid	Project-90	SAM	Nuklid	Project-90	SAM
Se-79	$1,4 \times 10^{-6}$	$6,1 \times 10^{-7}$	Np-237	$6,7 \times 10^{-4}$	$7,5 \times 10^{-4}$
Tc-99	$2,1 \times 10^{-7}$	$6,3 \times 10^{-7}$	U-233	$4,3 \times 10^{-5}$	$4,7 \times 10^{-5}$
Pd-107	-	$5,4 \times 10^{-8}$	U-238	$4,0 \times 10^{-5}$	$4,2 \times 10^{-5}$
Sn-126	$3,1 \times 10^{-6}$	$4,6 \times 10^{-6}$	U-234	$4,2 \times 10^{-5}$	$4,6 \times 10^{-5}$
I-129	$4,0 \times 10^{-5}$	$2,1 \times 10^{-4}$	Pa-231	$1,8 \times 10^{-3}$	$2,0 \times 10^{-3}$
Cs-135	$1,0 \times 10^{-6}$	$3,7 \times 10^{-6}$	Th-232	$4,5 \times 10^{-4}$	$5,4 \times 10^{-4}$

**Tabelle 7-6: Dosiskonversionsfaktoren (Sv/a pro Bq/l) für ausgewählte Spaltprodukte und Nuklide aus den Zerfallsketten**

## 7.5 Freisetzung aus dem Endlager

### 7.5.1 Endlager für HAW

Bei Projekt Gewähr wird darunter die Freisetzung aus der Abfallmatrix in die wasserleitenden Störzonen des Granits verstanden, bei PAGIS diejenige, aus dem Grubengebäude in den Grundwasserstrom des Deckgebirges. Zum Vergleich der Barrierewirkungen bei Gewähr und PAGIS wurden die relativen freigesetzten Mengen

der einzelnen Nuklide nach  $1,5 \times 10^5$  Jahren bestimmt und in Tabelle 7-7 dargestellt. Die fettgedruckten Werte weisen darauf hin, daß Löslichkeitsgrenzen dieser Nuklide erreicht werden.

In der Gewähr-Studie werden bis auf Cs-135 bei allen Nukliden Löslichkeitsgrenzen erreicht. Entsprechend ist nur für Cs-135 nach  $1,5 \times 10^5$  Jahren das gesamte Inventar mobilisiert. Die unterschiedliche kumulierte relative Freisetzung der einzelnen Nuklide ist bei dieser Studie ausschließlich durch die verschiedenen eingelagerten Mengen und die unterschiedlichen Löslichkeitsgrenzen bedingt.

Nuklid	Gewähr Endlager	PAGIS	
		Bohrlöcher	Endlager
Se-79	<b><math>1,1 \times 10^{-3}</math></b>	<b><math>6,4 \times 10^{-2}</math></b>	$4,9 \times 10^{-4}$
Tc-99	<b><math>3,1 \times 10^{-3}</math></b>	<b><math>5,1 \times 10^{-4}</math></b>	$2,6 \times 10^{-6}$
Pd-107	<b><math>4,2 \times 10^{-4}</math></b>	<b><math>2,1 \times 10^{-1}</math></b>	$1,1 \times 10^{-3}$
Sn-126	<b><math>3,5 \times 10^{-4}</math></b>	$2,6 \times 10^{-1}$	$1,2 \times 10^{-3}$
Cs-135	1	$2,7 \times 10^{-1}$	$1,2 \times 10^{-3}$
Np-237	<b><math>5,8 \times 10^{-5}</math></b>	<b><math>2,0 \times 10^{-4}</math></b>	$1,0 \times 10^{-5}$

**Tabelle 7-7: Kumulierte relative Freisetzungsmengen ausgewählter Nuklide nach  $1,5 \times 10^5$  Jahren (bei Fettdruck werden Löslichkeitsgrenzen erreicht)**

Ein wesentlicher Rückhalteeffekt besteht bei PAGIS darin, daß nur aus zwei Bohrlochern eine Freisetzung erfolgt, da die übrigen 262 Bohrlöcher aufgrund der Konvergenz des Gebirges verschlossen sind, bevor Lauge eindringen kann. In der ersten Spalte ist die relative Freisetzung aus den beiden Bohrlochern, bezogen auf deren Inventar, aufgeführt. Cs-135 und Sn-126 erreichen keine Löslichkeitsgrenzen. Dies führt bei beiden Nukliden trotzdem nur zu einer kumulierten relativen Freisetzung von 26%. Das liegt zum einen an der noch nicht abgeschlossenen Mobilisierung aus der Glasmatrix, zum anderen daran, daß zu diesem Zeitpunkt noch nicht die gesamte kontaminierte Lauge ausgepreßt wurde.

Der Anteil, der aus dem gesamten Endlager freigesetzt wird, liegt für diese Nuklide bei 0,12%; das Inventar der beiden Bohrlöcher ist nur 1/132 des Gesamtinventars und ein Teil der nicht ausgepreßten Lauge verbleibt im Grubengebäude. Die Barrierewirkung ist bei Tc-99 und Np-237 am stärksten, was durch die im Verhältnis zum Inventar niedrigen Löslichkeitsgrenzen dieser beiden Nuklide bedingt ist. Bei Np-237 tritt während des Transports vom Bohrloch zum Mittelfeld noch ein zusätz-

licher Aufbaueffekt durch Zerfall des Mutternuklids Am-241 auf. Deswegen ist das Verhältnis der kumulierten Freisetzungsmengen aus dem Endlager zu denen aus den Bohrlöchern mit 1/20 deutlich größer als 1/132.

Die Wassermenge, die beim Granitendlager des Projekts Gewähr Kontakt zu den Abfällen hat, ist um einen Faktor  $2,6 \times 10^4$  größer als die Laugenmenge, die in die beiden Bohrlöcher des Salzendlagers zugelaufen ist. Dieser Unterschied und der Umstand, daß nur 1/132 des Inventars in PAGIS überhaupt mobilisiert werden kann, erklärt, daß trotz der in der Gewähr-Studie z.T. um  $10^4$  bis  $10^6$  niedrigeren Löslichkeitsgrenzen nach  $1,5 \times 10^5$  Jahren vergleichbare relative Mengen der Nuklide mobilisiert werden.

### 7.5.2 Endlager mit abgebranntem Brennstoff

In den Studien Project-90 und SAM erreichen mit Ausnahme von C-14, Cs-135 und I-129 alle relevanten Nuklide im Nahbereich die Löslichkeitsgrenzen. Zum Vergleich der Barrierewirkungen wurden die kumulierten relativen freigesetzten Mengen der einzelnen Nuklide nach  $10^6$  Jahren bestimmt; sie sind in Tabelle 7-8 dargestellt. Die fettgedruckten Werte weisen darauf hin, daß Löslichkeitsgrenzen erreicht werden. In der Project-90-Studie sind keine Angaben zu den kumulierten freigesetzten Mengen enthalten. Die Werte wurden deshalb aus den graphischen Abbildungen der Freisetzungskurven abgeschätzt.

Nuklid	Project-90 Endlager	SAM	
		Einlagerungs- strecken	Mittelfeld
C-14	$8 \times 10^{-9}$	$5,0 \times 10^{-1}$	$1,7 \times 10^{-4}$
Se-79	<b><math>2 \times 10^{-5}</math></b>	<b><math>7,2 \times 10^{-1}</math></b>	$7,4 \times 10^{-4}$
Tc-99	<b><math>4 \times 10^{-8}</math></b>	<b><math>2,2 \times 10^{-2}</math></b>	$2,4 \times 10^{-5}$
Pd-107	-	$9,9 \times 10^{-1}$	<b><math>1,1 \times 10^{-3}</math></b>
Sn-126	<b><math>6 \times 10^{-9}</math></b>	$7,7 \times 10^{-1}$	<b><math>1,2 \times 10^{-3}</math></b>
I-129	$2 \times 10^{-4}$	$9,5 \times 10^{-1}$	$7,2 \times 10^{-3}$
Cs-135	$6 \times 10^{-5}$	$9,4 \times 10^{-1}$	$2,5 \times 10^{-3}$
Np-237	<b><math>4 \times 10^{-9}</math></b>	<b><math>2,0 \times 10^{-4}</math></b>	<b><math>3,0 \times 10^{-6}</math></b>

**Tabelle 7-8: Kumulierte relative Freisetzungsmengen ausgewählter Nuklide nach  $10^6$  Jahren (bei Fettdruck werden Löslichkeitsgrenzen erreicht)**

Die kumulierten relativen Freisetzungsmengen liegen bei der Project-90-Studie für alle Nuklide deutlich unterhalb der in SAM auftretenden. Hauptgrund dafür ist der wesentlich stärkere Isolationseffekt. Bei der Project-90-Studie wird angenommen, daß nur einer von 5.000 eingelagerten Behältern innerhalb des betrachteten Zeitraums von  $10^6$  Jahren ausfällt, während bei SAM eine Freisetzung aus 1/70 des LWR-Inventars erfolgt.

Jod-129, das weder löslichkeitsbegrenzt ist noch stark sorbiert, wird bei Project-90 nahezu vollständig aus einem Behälter freigesetzt. Die reduzierte Freisetzung von 1/5.000 wird ausschließlich durch die Behälterbarriere hervorgerufen. Für das ebenfalls nicht löslichkeitsbegrenzte Cs-135 findet eine zusätzliche Reduktion durch eine etwas stärkere Sorption am Bentonit und an der Granitmatrix statt. Die Freisetzung ist nach  $10^6$  Jahren noch nicht vollständig erfolgt. Bei C-14 tritt aufgrund seiner kurzen Halbwertszeit von  $5,7 \times 10^3$  Jahren eine erhebliche Reduktion durch radioaktiven Zerfall ein. Alle anderen Nuklide sind löslichkeitsbegrenzt. Das führt im wesentlichen dazu, daß deren Freisetzung deutlich länger dauert und innerhalb von  $10^6$  Jahren nur ein entsprechend kleiner Teil dieser Nuklide freigesetzt wurde.

Für die SAM-Studie werden in Tabelle 7-8 Ergebnisse aus zwei unterschiedlichen Segmenten des Grubengebäudes angegeben; zwei Einlagerungsstrecken, aus denen die Nuklide mobilisiert werden, und das Mittelfeld, aus dem die Freisetzung in das Fernfeld erfolgt. Wenn die Werte für das Mittelfeld fett gedruckt sind, bedeutet das, daß die Löslichkeitsgrenzen in Segmenten außerhalb der Einlagerungsstrecken erreicht werden. Das kann der Fall sein, wenn die Löslichkeitsgrenzen für ein unbekanntes chemisches Milieu der Lauge wie in der Richtstrecke, im Querschlag und im Mittelfeld niedriger sind als in der Einlagerungsstrecke. Auch bei SAM besteht ein starker Rückhalteeffekt darin, daß eine Freisetzung ausschließlich aus dem LWR-Feld der ersten Abteilung erfolgt, da die Verbindungswege zum HAW- und MAW-Feld sowie zu den übrigen sechs Abteilungen aufgrund der Konvergenz des Gebirges verschlossen sind bevor Lauge eindringen kann, bzw. bevor kontaminierte Lauge ausgepreßt wird. Aus dem LWR-Feld der ersten Abteilung erfolgt ausschließlich eine Freisetzung aus zwei von 20 Strecken, da die übrigen 18 Strecken verschlossen sind, bevor Lauge eindringen kann. Dementsprechend kann also nur 1/70 des LWR-Inventars freigesetzt werden.

Für die Nuklide Cs-135 und I-129, die weder merklich zerfallen noch die Löslichkeitsgrenzen erreichen, wird die geringe relative Freisetzung aus dem Grubengebäude hauptsächlich durch die oben beschriebene Isolation der Abfälle verursacht. Aus den beiden offenen Einlagerungsstrecken findet eine fast vollständige Frei-

setzung statt. Die kumulierte relative Freisetzung liegt bei 95%. Der Anteil, der aus dem Mittelfeld freigesetzt wurde, liegt dagegen für Jod bei 0,72%, für Cs-135 bei 0,25% und entspricht etwa dem Abfallanteil der beiden Einlagerungsstrecken bezogen auf das Gesamtinventar beider Nuklide. Ein zusätzlicher Effekt ist, daß nicht die gesamte Menge der kontaminierten Lauge aus dem Grubengebäude ausgepreßt wird. Der Unterschied zwischen I-129 und Cs-135 ist auf deren unterschiedliche Anteile am Gesamtinventar zurückzuführen. 87,5% des I-129 Inventars aber nur 31,9% des gesamten Cs-135 Inventars befinden sich in den LWR-Abfällen.

Die Barrierewirkung im Nahfeld ist bei SAM, wie schon in der PAGIS-Studie bei Tc-99 und Np-237 am stärksten, was durch die im Verhältnis zum Inventar niedrigen Löslichkeitsgrenzen dieser beiden Nuklide bedingt ist. Bei Np-237 tritt während des Transports vom Bohrloch zum Mittelfeld noch ein zusätzlicher Aufbaueffekt durch Zerfall des Mutternuklids Am-241 auf. Aus diesem Grund werden Löslichkeitsgrenzen in mehreren Segmenten des Endlagerbereichs überschritten.

#### 7.6 Dosisbelastung in der Biosphäre

Die maximalen Dosisraten ergeben sich bei Gewähr, Kristallin-I und PAGIS durch Cs-135 (Tabelle 7-9). Daneben gehören Np-237 und Se-79 zu den radiologisch bedeutsamen Nukliden.

Gewähr			Kristallin-I			PAGIS		
Nuklid	Zeitpunkt	max. Dosisrate	Nuklid	Zeitpunkt	max. Dosisrate	Nuklid	Zeitpunkt	max. Dosisrate
Cs-135	$6,1 \times 10^6$	$8,4 \times 10^{-12}$	Cs-135	$3 \times 10^5$	$2 \times 10^{-7}$	Cs-135	$1,9 \times 10^4$	$7,8 \times 10^{-6}$
Np-237	$2,1 \times 10^7$	$3,6 \times 10^{-13}$	Pa-231	$>1 \times 10^7$	$9 \times 10^{-9}$	Np-237	$4,4 \times 10^5$	$1,0 \times 10^{-6}$
Se-79	$4,4 \times 10^5$	$3,5 \times 10^{-13}$	Se-79	$7 \times 10^4$	$5 \times 10^{-9}$	Se-79	$8,6 \times 10^3$	$3,8 \times 10^{-7}$
Sn-126	$8,8 \times 10^5$	$1,4 \times 10^{-13}$	Np-237	$>1 \times 10^7$	$8 \times 10^{-10}$	U-233	$3,0 \times 10^5$	$4,4 \times 10^{-8}$
Th-228	$2,1 \times 10^7$	$1,0 \times 10^{-13}$	Tc-99	$2 \times 10^6$	$6 \times 10^{-10}$	Tc-99	$1,1 \times 10^5$	$2,6 \times 10^{-8}$
Pd-107	$3,5 \times 10^7$	$8,7 \times 10^{-14}$				Ra-226	$4,9 \times 10^4$	$1,2 \times 10^{-8}$

**Tabelle 7-9: Maximale Dosisraten (Sv/a) relevanter Nuklide und Zeitpunkte (a) des Auftretens**

Die für den Referenzfall genannten Nuklide sind auch bei den sieben verschiedenen Parametervariationsrechnungen der Gewähr-Studie die wichtigsten Nuklide. Ebenso sind bei den drei verschiedenen Szenarien der PAGIS-Studie die in Tabelle

7-9 genannten Nuklide diejenigen, die im wesentlichen die maximalen Dosisraten bestimmen.

Im untersuchten Referenzfall Project-90 wird die maximale Dosisrate von  $3 \times 10^{-7}$  Sv/a von I-129 aus dem LWR-Brennstoff bestimmt. Die drei nächstwichtigen Nuklide, mit einer um zwei Größenordnungen niedrigeren maximalen Dosisrate sind Se-79, Cs-135 und Pa-231. Die Werte sind in Tabelle 7-10 zusammengefaßt. In den verschiedenen Parametervariationsrechnungen liefern ebenfalls die genannten Nuklide die wesentlichen Beiträge.

Project-90			SAM		
Nuklid	Zeitpunkt	max. Dosisrate	Nuklid	Zeitpunkt	max. Dosisrate
I-129	$3 \times 10^4$	$3 \times 10^{-7}$	I-129	$2 \times 10^4$	$7 \times 10^{-6}$
Pa-231	$1 \times 10^6$	$5 \times 10^{-9}$	Cs-135	$3 \times 10^4$	$1 \times 10^{-6}$
Cs-135	$4 \times 10^5$	$1 \times 10^{-9}$	Np-237	$4 \times 10^5$	$1 \times 10^{-7}$
Se-79	$5 \times 10^5$	$1 \times 10^{-9}$	Se-79	$2 \times 10^4$	$1 \times 10^{-7}$
Th-230	$7 \times 10^5$	$3 \times 10^{-11}$	Tc-99	$2 \times 10^5$	$6 \times 10^{-8}$
Pu-242	$1 \times 10^6$	$2 \times 10^{-11}$	U-233	$5 \times 10^4$	$1 \times 10^{-8}$
Np-237	$1 \times 10^6$	$1 \times 10^{-11}$	Ra-226	$8 \times 10^4$	$9 \times 10^{-9}$

**Tabelle 7-10: Maximale Dosisraten (Sv/a) der relevanten Nuklide zum Zeitpunkt (a) bei Project-90 und SAM**

In der hier betrachteten Rechnung der SAM-Studie wird die maximale Dosisrate von  $7,6 \times 10^{-6}$  Sv/a im wesentlichen durch die Nuklide I-129 und Cs-135 bestimmt. Die nächstfolgenden Nuklide in der Reihenfolge des Maximums ihrer Dosisrate sind Np-237, Se-79, Tc-99, U-233 und Ra-226. Die Relevanz der Nuklide in der ausgewählten deterministischen Rechnung stimmt weitgehend mit Ergebnissen aus hier nicht betrachteten probabilistischen Rechnungen überein.

## 7.7 Vergleichende Gegenüberstellung und Schlußfolgerung

### 7.7.1 Zusammenfassung für Projekt Gewähr, Kristallin-I und PAGIS

Ein entscheidender Unterschied zwischen den Studien besteht darin, daß aus dem Granit-Endlager nach entsprechend langer Zeit das gesamte Abfallinventar freigesetzt wird. Im Salzendlager findet im Normalfall keine Freisetzung statt, da es in

diesem Zustand trocken ist; selbst beim Störfall werden im betrachteten Referenzfall mehr als 99% der Abfälle eingeschlossen und damit von der Biosphäre isoliert, weil die Transportwege im Grubengebäude durch die Konvergenz des Salzgebirges bereits verschlossen sind, bevor Lauge in die Einlagerungsorte eindringen kann. Das Gesamtinventar ist im Salzendlager von PAGIS zwar eine Größenordnung höher als in der Studie Projekt Gewähr, das freigesetzte Inventar ist aus diesem Grund aber eine Größenordnung niedriger. Bei Kristallin-I wurde nur die Hälfte des bei Projekt Gewähr angesetzten Inventars angenommen.

Für eine detaillierte Gegenüberstellung der Barriereneffekte wurden Cs-135, Np-237 und Pd-107 ausgewählt. Cs-135 stellt in allen drei Studien das wichtigste und das einzige relevante nichtlöslichkeitsbegrenzte Nuklid dar. Np-237 erreicht während des Transports im Nahbereich bei allen drei Studien die Löslichkeitsgrenzen und gehört in den drei Studien jeweils zu den vier wichtigsten Nukliden. Pd-107 verhält sich aufgrund seiner Eigenschaften in der Gewähr-Studie anders als Np-237. Die Wirksamkeit der einzelnen Barrieren wurde durch die Bestimmung der Konzentrationsreduktionen dieser Radionuklide entlang des Ausbreitungsweges ermittelt /NOS 96/. Die so bestimmten Reduktionsfaktoren sind in Bild 7-4 veranschaulicht.

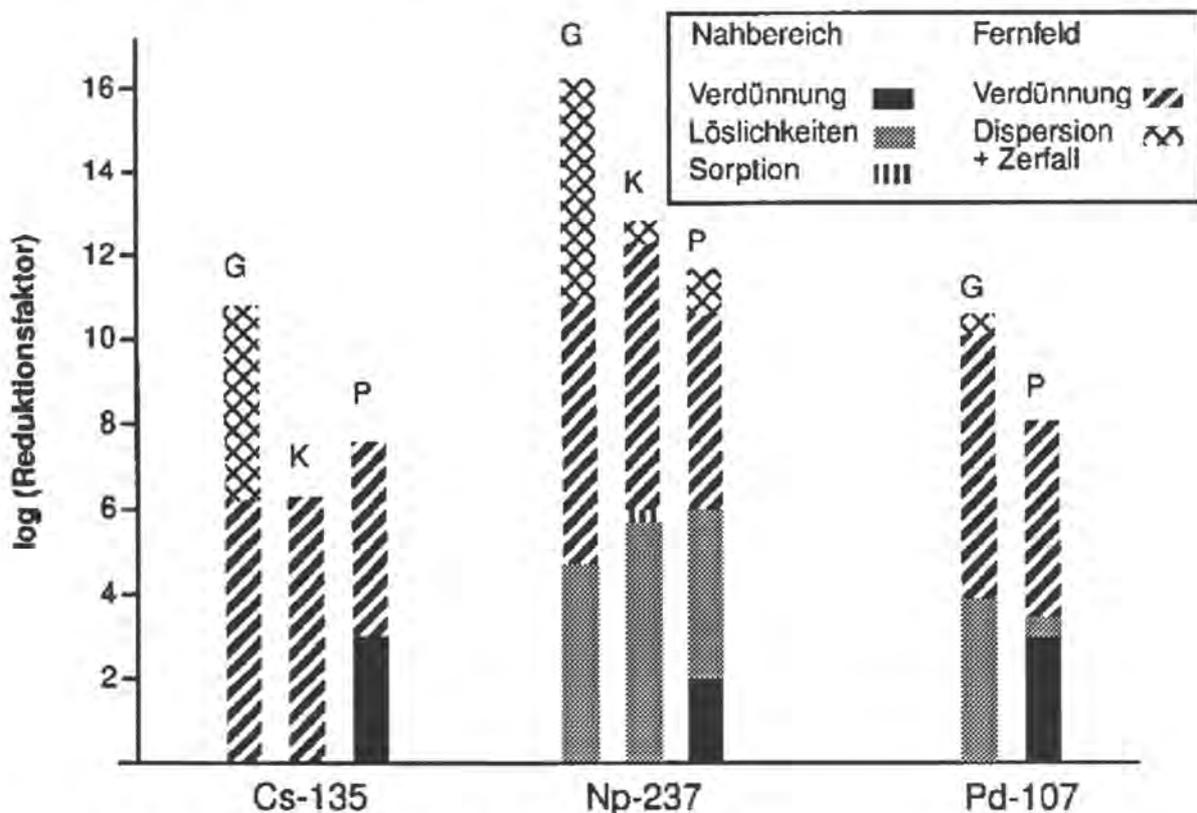


Bild 7-4: Reduktionsfaktoren im Nah- und Fernfeld für ausgewählte Nuklide in den Studien Gewähr (G), Kristallin-I (K) und PAGIS (P)

Die Konzentrationen am Ort der Einlagerung werden für nicht löslichkeitsbegrenzte Nuklide wie Cs-135 durch die vorhandenen Wassermengen und die Mobilisierungsraten aus der Matrix bestimmt. Dabei stellen sich bei PAGIS ca. drei Größenordnungen höhere Konzentrationen als bei den beiden Granitstudien ein. Der Hauptgrund dafür ist der deutlich langsamere Auslaugprozeß der Glasmatrix bei diesen Studien, der erst nach  $10^3$  Jahren beginnt und deswegen bei tiefen Temperaturen verläuft. Ein weiterer Reduktionseffekt im Nahbereich tritt bei den Granitstudien nicht auf. Von den dosisrelevanten Nukliden ist in allen drei Studien nur Cs-135 nicht löslichkeitsbegrenzt und bewirkt deswegen auch die mit Abstand höchsten maximalen Dosisraten.

Löslichkeitsgrenzen stellen bei fast allen Nukliden wirksame Nahfeldbarrieren dar und reduzieren die Konzentrationen am Ort der Einlagerung um mehrere Größenordnungen. Die Löslichkeitsgrenzen der relevanten Nuklide liegen bei den Granitstudien drei bis sechs Größenordnungen niedriger als bei PAGIS und führen deswegen zu einer größeren Konzentrationsreduktion. Neben diesem Effekt tritt im Grubengebäude des Salzendlagers für alle Radionuklide aber ein zusätzlicher Verdünnungseffekt durch nicht kontaminierte Lauge auf. Dieser führt zu einer Reduktion der maximalen Konzentration um drei Größenordnungen. Bei Cs-135 stellen sich bei allen drei Studien etwa gleiche Konzentrationen am Übergang Nahbereich/Fernfeld ein.

Im Gegensatz zur Gewähr-Studie wurde bei Kristallin-I die Diffusion durch den Bentonit modelliert. Die Auswirkungen auf die maximalen Nuklidkonzentrationen am Übergang Nahbereich/Fernfeld sind allerdings für die relevanten Nuklide gering.

Im Fernfeld findet bei allen Studien ein nuklidunabhängiger Reduktionseffekt durch Verdünnung des kontaminierten Wasserstromes mit dem Grundwasserstrom statt. Bei den Granitstudien wird eine zusätzliche Verdünnung in der Biosphäre angenommen. Daraus resultiert mit ca.  $2 \times 10^6$  ein 50 fach höherer Verdünnungseffekt als bei PAGIS mit  $4 \times 10^4$ .

Bei der Gewähr-Studie tritt während des Deckgebirgstransports ein weiterer sehr effektiver Rückhaltemechanismus durch Matrixdiffusion und Sorption in der Kakiritmatrix auf. Dieser Mechanismus führt bei allen relevanten Nukliden mit Ausnahme von Pd-107 zu einer weiteren Konzentrationsreduktion von vier bis sechs Größenordnungen. Pd-107 ist charakterisiert durch eine hohe Halbwertszeit, ein hohes Inventar und relativ niedrige Löslichkeitsgrenzen. Aus diesem Grund erfolgt eine extrem lange, konstante Freisetzung in das Fernfeld, was einer konstanten Quelle entspricht. Dadurch erfolgt nur eine geringe Konzentrationsreduktion. Bei der Studie

Kristallin-I sind Matrixdiffusion und Sorption für die relevanten Nuklide dagegen vernachlässigbar gering. Verantwortlich dafür ist der kürzere Transportweg bei Kristallin-I von nur 200 m gegenüber 500 m und die viel geringere Eindringtiefe in die Matrix von nur 5 cm gegenüber 50 cm bei Projekt Gewähr.

Bei PAGIS tritt nur für die dosisrelevanten Spaltprodukte Tc-99 und Pd-107 ein zusätzlicher Verdünnungseffekt durch longitudinale Dispersion auf. Eine zusätzliche effektive Barriere bildet das Deckgebirge nur für solche Nuklide, die aufgrund niedriger Halbwertszeiten und/oder sehr hoher  $K_d$ -Werte während des Transports merklich zerfallen.

Die genannten Effekte führen letztendlich bei Projekt Gewähr gegenüber PAGIS zu mehr als sechs Größenordnungen niedrigeren, gegenüber Kristallin-I zu mehr als fünf Größenordnungen niedrigeren maximalen Dosisraten.

#### 7.7.2 Zusammenfassung für Project-90 und SAM

Hinsichtlich des Konzentrationsverlaufs ausgewählter Radionuklide entlang des Ausbreitungswegs zeigt sich, daß sowohl Effekte im Nahbereich als auch im Fernfeld zu einer wirksamen Reduktion führen. Dabei können Effekte, die nuklid- bzw. elementunabhängig wirken, unterschieden werden von nuklid- bzw. elementabhängigen Effekten. Hinsichtlich der letztgenannten Effekte kann man die Nuklide grob in drei Gruppen unterteilen:

1. nicht löslichkeitsbegrenzte und schwach sorbierende (I-129 und Cs-135),
2. löslichkeitsbegrenzte und schwach sorbierende (Tc-99),
3. löslichkeitsbegrenzte und stark sorbierende (Np-237 und die Aktiniden).

Jod-129, Caesium-135 und Technetium-99 sind Spaltprodukte, für die die Barriere Wirkung unabhängig vom Zerfall von Mutternukliden untersucht werden kann. Bei Neptunium beeinflußt der Zerfall von Am-241 die maximale Konzentration nur im Grubengebäude. Wie in Kap. 7.7.1 wurde die Wirksamkeit der einzelnen Barrieren durch die Reduktion der Konzentrationen dieser Radionuklide ermittelt /NOS 96/. Die einzelnen Reduktionsfaktoren sind in Bild 7-5 dargestellt. Im Nahbereich tritt bei beiden Studien ein Isolationseffekt auf, d. h. es wird nur ein Teil des Inventars überhaupt freigesetzt. Bei Project-90 wird angenommen, daß nur einer von 5.000 Behältern ausfällt, also nur 1/5.000 des Inventars mobilisiert wird. Bei SAM ist der Effekt geringer; es wird 1/70 des LWR-Inventars mobilisiert. Als Folge davon sind die nicht isolierten Nuklidinventare des Salzendlagers für die meisten Nuklide ca. 100 mal

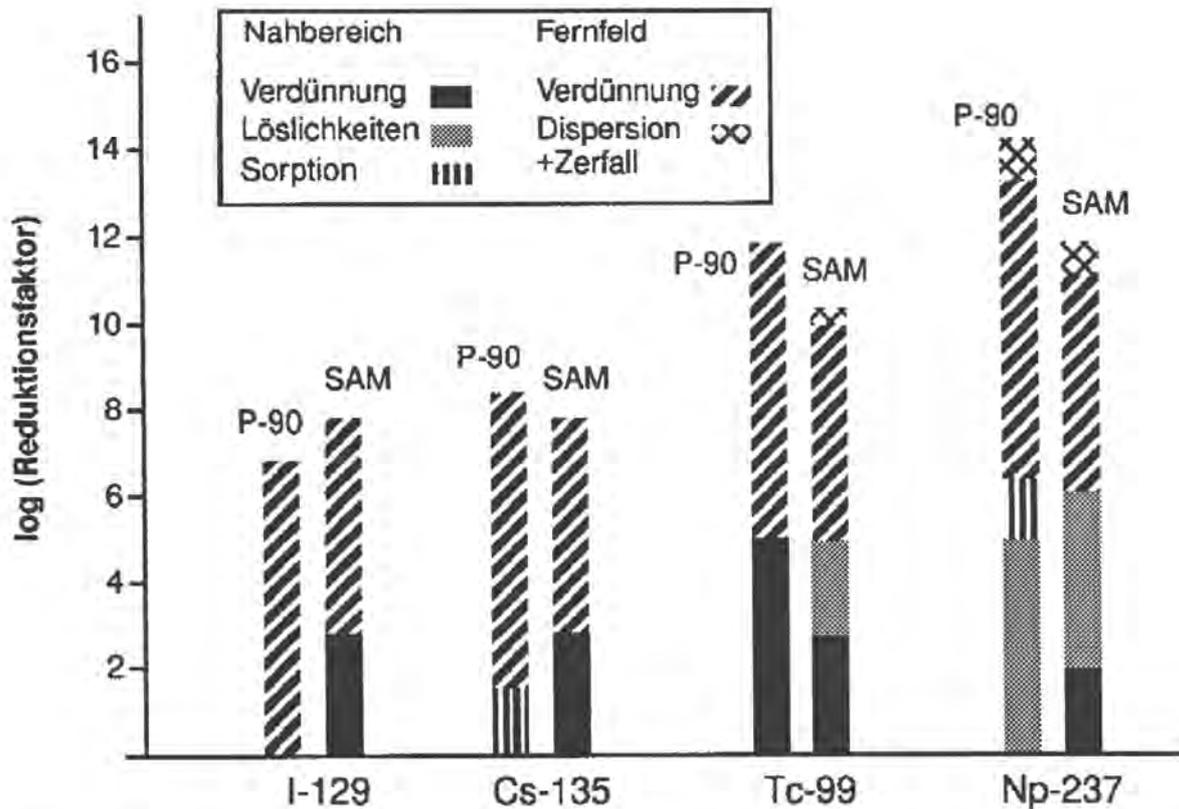
höher als die des Granitendlagers. Bei löslichkeitsbegrenzten Nukliden der zweiten und dritten Gruppe ist die Auswirkung des Effekts schwächer.

Für Nuklide der ersten Gruppe werden die maximalen Konzentrationen im Nahbereich durch die zu den Abfällen fließenden Wasser- bzw. Laugenmenge und die Auslaugraten bestimmt. Die Auslaugrate ist bei Project-90 eine stärkere Barriere, da die vollständige Auslaugung ca. 20 mal länger dauert als bei SAM. Bei Project-90 haben während der Mobilisierungsdauer ca.  $30 \text{ m}^3$  Wasser Kontakt mit den Abfällen. Bei SAM sind während der Mobilisierung insgesamt  $300 \text{ m}^3$  Lauge zugelaufen, wobei aber  $200 \text{ m}^3$  Lauge zum Endzeitpunkt der Mobilisierung ausgepreßt worden sind. Es resultieren maximale Konzentrationen am Abfallort, die bei SAM zwei Größenordnungen über denen bei Project-90 liegen.

Auch bei diesen beiden Studien stellen die Löslichkeitsgrenzen wirksame Barrieren dar und reduzieren die Konzentrationen der Nuklide der Gruppe 2 und 3 am Abfallort um mehrere Größenordnungen. Die Löslichkeitsgrenzen sind bei Project-90 für alle relevanten Nuklide deutlich niedriger als bei SAM. Die Unterschiede reichen von zwei Größenordnungen bei Neptunium bis zu sieben Größenordnungen bei Zinn. Zusätzlich bewirkt bei Project-90 die Sorption der Nuklide der Gruppe 3 am Bentonit und an der Granitmatrix eine Verzögerung der Freisetzung, so daß deren Konzentrationen innerhalb der Beobachtungszeit von  $10^6$  Jahren noch deutlich unterhalb der Löslichkeitsgrenzen liegen.

Bei SAM tritt im Nahbereich ein zusätzlicher Reduktionsfaktor von ca. 650 durch Verdünnung mit unkontaminierter Lauge aus anderen Endlagerbereichen auf. Als Summe der Nahbereichseffekte ist die maximale Nuklidkonzentration für das nicht löslichkeitsbegrenzte I-129 in der Granit-Studie am Übergang Nahbereich/Fernfeld ca. 10 mal höher als bei der Salz-Studie. Für die löslichkeitsbegrenzten Nuklide der Gruppe 2 und 3 sind die Konzentrationen am Übergang Nahbereich/Fernfeld bei Project-90 zwei bis drei Größenordnungen niedriger.

Im Fernfeld findet bei beiden Studien eine Verdünnung durch den Grundwasserstrom statt. Dieser Verdünnungsfaktor beträgt bei Project-90  $7 \times 10^6$  und ist deutlich höher als der Verdünnungsfaktor  $10^5$  der SAM-Studie. Für die relevanten Nuklide der Gruppe 1 tritt kein weiterer Barriereeffekt auf, so daß die Konzentrationen am Übergang zur Biosphäre bei der SAM-Studie etwas höher liegen als bei Project-90. Auffällig ist, daß die Dosiskonversionsfaktoren bei SAM zum Teil um bis zu eine Größenordnung höher sind als bei Project-90. Unterschiede in der Biosphärenmodellierung wurden nicht eingehender untersucht. Bei Project-90 wurde allerdings vereinfachend nur ein Pfad über das Trinkwasser angenommen, während bei SAM



**Bild 7-5: Reduktionsfaktoren im Nah- und Fernfeld für ausgewählte Nuklide in den Studien Project-90 (P-90) und SAM**

die Belastung des Menschen über verschiedene Expositionspfade entsprechend den Verzehrsgewohnheiten eines Erwachsenen modelliert wurde.

Bei stark sorbierenden Nukliden der Gruppe 3 findet je nach Stärke der Sorption eine weitere Konzentrationsreduktion um bis zu zwei Größenordnungen statt. Wird zusätzlich der radioaktive Zerfall wirksam, so kann das, wie im Fall der stark sorbierenden Aktiniden, zu einer Konzentrationsabnahme um viele Größenordnungen führen.

Zusammenfassend gilt, daß die Geosphäre in beiden Studien zwar den Transport der meisten Nuklide verzögert, aber neben den Verdünnungseffekten nur eine schwache Barriere darstellt. Wirksam reduziert werden nur diejenigen Radionuklide, deren Transportzeit deutlich größer als ihre Halbwertszeit ist, so daß sie während des Transports weitgehend zerfallen. Die Wirkung der Matrixdiffusion mit Sorption ist bei der Granitstudie Project-90 deutlich schwächer als bei der Projekt Gewähr.

### 7.7.3 Schlußfolgerung

In LZS-Analysen von Endlagern in Granitformationen werden sowohl im Nahbereich als auch im Fernfeld des Endlagers Modelle und Rechenprogramme verwendet, die sich von denen für Endlager in Salzformationen wesentlich unterscheiden. Bei einem Endlager im Salinar sind Nah- und Fernfeld klar voneinander abgegrenzt. Zum Nahbereich gehört das gesamte Grubengebäude im Salzstock mit allen Segmenten. Das Fernfeld entspricht dem über dem Salzstock angrenzenden Deckgebirge. Beide Bereiche werden mit eigenen Rechenmodulen modelliert.

Bei den Endlagerstudien für Granit ist die Trennung von Nahbereich und Fernfeld nicht so scharf. Als Nahbereich wird bei Kristallin-I und Project-90 eine Zone, die wenige Meter in die Granitmatrix hineinragt, angesehen. Daran schließt sich das Fernfeld an. Bei den Granit-Studien wird angenommen, daß Grundwasser direkt nach Ende der Betriebsphase an die Abfallbehälter gelangt. Für die Abfälle werden beständige Behältermaterialien, z.B. Kupfer, verwendet. Durch die hohe Behälterlebensdauer wird die Zeitphase erhöhter Temperaturen überbrückt. Die Mobilisierung aus der Abfallmatrix kann daher bei Projekt Gewähr und Kristallin-I im Gegensatz zu Salzstudien temperaturunabhängig modelliert werden. Für das Endlager bei Project-90 wird die Ausbildung einer Redoxfront aufgrund der Radiolyse direkt eingelagerter Brennelemente angenommen. Bei Projekt Gewähr wird im Nahfeld einfach eine Nuklidfreisetzung entsprechend den Auslaugraten und Löslichkeitsgrenzen im Grundwasserstrom modelliert. Eine wichtige Größe ist die vom Grundwasser durchströmte Endlagerfläche. Bei den beiden neueren Studien sind die Diffusion durch den Bentonit und durch die ersten Meter der Granitmatrix wichtige Transportprozesse im Nahbereich. Im Bentonit und in der Granitmatrix findet Sorption statt. Zudem findet in den Kluftbereichen des Granits advektiver Transport statt.

Bei den Salz-Studien sind Zeitpunkt und Verlauf des Laugenzutritts wichtige Einflußgrößen. Die Menge der zugetretenen Lauge wird entscheidend durch die Konvergenz der unterschiedlichen, z. T. mit Salz versetzten Hohlräume bestimmt. Der Transport kontaminierter Lauge ist ebenfalls durch die Konvergenz der Hohlräume geprägt. Wenn einzelne Segmente vollständig mit Lauge gefüllt sind beginnt ein durch die Konvergenz verursachter Auspreßvorgang der Lauge. Die Behälterlebensdauer ist viel geringer als bei den Granitstudien, weshalb die Mobilisierung aus der Glasmatrix temperaturabhängig modelliert wird.

Für eine deutsche Endlagerstudie in Granit erscheint eine Verwendung des bisherigen Nahbereichsmoduls und Integration neuer Teilmodelle aufgrund dieser prinzipiellen Unterschiede nicht sinnvoll. Es könnte ein Rechencode für den Nahbe-

reich von der NAGRA bzw. von SKB übernommen werden. Wesentliche Elemente dieses Nahbereichsmoduls sind Modelle, die Diffusion durch den Bentonit und die Granitmatrix mit gleichzeitiger Sorption sowie advektivem Transport durch Klüfte im Granit beinhalten. Es muß geklärt werden, ob die Ausbildung einer Redoxfront bei einem deutschen Endlagerkonzept ein relevanter Prozeß sein könnte.

Die Rechenmodule für das Fernfeld weisen für Granit- und Salzstudien größere Gemeinsamkeiten auf. Bei den Granitstudien findet der Fluidtransport in geklüftetem Gestein in diskreten Kanälen statt. Die Geometrie dieser Kanäle hat dabei wesentlichen Einfluß auf das Ausbreitungsverhalten der Radionuklide. Der Transport wird mit eindimensionalen Transportprogrammen modelliert. Matrixdiffusion in verwittertes Granitgestein verläuft senkrecht zur Transportrichtung. In der Matrix findet Sorption an der Sedimentoberfläche statt. Dieser Prozeß kann abhängig von der Struktur der Matrix und den Eigenschaften des Fließsystems eine starke Rückhaltung von Nukliden bewirken.

Für das Deckgebirge der Salzstudien wird der Nuklidtransport im porösen Sediment mit einem eindimensionalen Rechenprogramm berechnet. Hier wäre als erster Schritt die Verwendung des eindimensionalen Rechencodes für poröses Medium zur Modellierung des Transports durch eine Kluftröhre denkbar. Dieses Rechenprogramm müßte um den Prozeß der Matrixdiffusion erweitert werden.

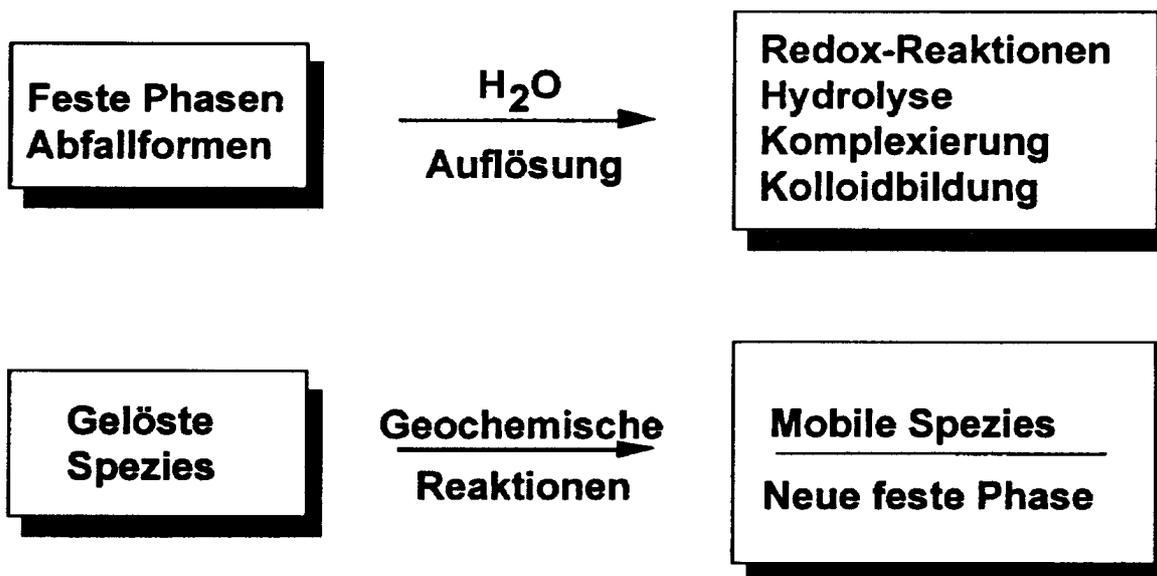
## 8 GEOCHEMIE

### 8.1 Einleitung

In den bisherigen Langzeitsicherheitsanalysen (Kap. 7) wurden geochemische Vorgänge nicht mit ausreichender Gründlichkeit berücksichtigt. Im folgenden Abschnitt sollen die wesentlichen Elemente der Geochemie der Endlagerung sowie der heutige Wissensstand auf diesem Gebiet behandelt werden. Daraus läßt sich auch die Hauptzielrichtung der noch zu erledigenden FuE-Aufgaben, um den LZS-Nachweis führen zu können, ermessen.

Endgelagerte Radionuklide (RN) sind ebenso wie andere chemische Elemente in globale und lokale geochemische Stoffkreisläufe eingebunden, welche die Grundwasser- und Gesteinszusammensetzungen regulieren. Die vielfältigen, miteinander gekoppelten geochemischen Reaktionen, die für die Mobilisierung oder Immobilisierung der einzelnen RN verantwortlich sind, sind außerordentlich komplex. Trotzdem lassen sich die ablaufenden Prozesse auf der Basis chemischer Gesetzmäßigkeiten auf einige wenige grundlegende Prinzipien zurückführen. Die Mobilisierung bzw. Immobilisierung der Radionuklidspezies bei der Auflösung der festen Phase ist in Bild 8-1 schematisch dargestellt. Die von der Oberfläche der Abfallmatrix abgelösten RN unterliegen je nach geochemischem Milieu in der Lösung Redox-, Hydrolyse- und Komplexierungsreaktionen sowie der Bildung von Kolloiden. Die gelösten Spezies können auf Feststoffoberflächen des Endlagerwirtsgesteins oder anderer Barrierenmaterialien adsorbiert oder im Falle von Übersättigung in sich neu bildende feste Phasen eingebaut werden. Das Zusammenwirken von Auflösung und Remineralisierung reguliert die Löslichkeit der mobilen Spezies. Die ursprüngliche Festphase wandelt sich so unter Freisetzung von gelösten Spezies und Aufnahme geeigneter Grundwasserinhaltsstoffe in eine Anzahl thermodynamisch stabilerer Sekundärphasen um.

Im Laborexperiment sind die bei der Auflösung erreichten Sättigungskonzentrationen der RN thermodynamisch durch das Löslichkeitsprodukt und die vorliegenden Komplexierungsgleichgewichte bestimmt. Die in natürlichen aquatischen Systemen tatsächlich beobachtete Löslichkeit kann von den im Laborversuch bestimmten thermodynamischen Sättigungskonzentrationen aus verschiedenen Gründen (Bildung von Kolloiden und amorphen Festphasen, Radiolyseeffekte) deutlich abweichen /KIM 93, KIM 94/. Daher ist die Ableitung eines RN-Quellterms aus Laborversuchen, welche die realen Verhältnisse in der Natur nur unvollständig wiedergeben, und den dort ermittelten thermodynamischen Löslichkeitsdaten nicht zulässig.



**Bild 8-1: Auflösung fester Phasen und Bildung von Sekundärphasen und mobiler Spezies**

Die Mobilität eines RN in einem natürlichen Aquifersystem hängt von der chemischen Natur des RN und von den vorliegenden geochemischen Bedingungen ab. Mobile Spezies können durch Komplexbildung oder durch Bildung von Kolloiden entstehen, eine Immobilisierung erfolgt durch Ausfällung und durch Sorption an mineralische Oberflächen. Diese geochemischen Reaktionen hängen in erster Linie von der Oxidationsstufe des RN in dem gegebenen Milieu ab. In Bild 8-2 sind für die Oxidationsstufen von I - VII typische RN-Spezies aufgeführt. Redox-sensitive Nuklide wie U, Pu, Np und Tc können unter natürlichen aquatischen Bedingungen, abhängig vom Redoxpotential des Grundwassers, in verschiedenen Oxidationsstufen auftreten. Dabei dominieren im reduzierenden Milieu die niedrigen, im oxidierenden Milieu die hohen Oxidationsstufen.

Die monovalenten Kationen wie Cs<sup>+</sup> gehen keine, die divalenten wie Sr<sup>2+</sup> nur in geringem Maße Komplexbildungsreaktionen ein, so daß diese RN überwiegend kationisch vorliegen. In dieser Form können sie im Gegensatz zu Anionen wie I<sup>-</sup> und TcO<sub>4</sub><sup>-</sup> Ionenaustausch- und Sorptionsreaktionen mit negativ geladenen Mineraloberflächen eingehen.

M(I)	M(II)	M(III)	M(IV)	M(V)	M(VI)	M(VII)
Cs <sup>+</sup>	Sr <sup>2+</sup> Ra <sup>2+</sup>	Am <sup>3+</sup> Cm <sup>3+</sup> REE <sup>3+</sup>	Pu <sup>4+</sup> Np <sup>4+</sup> U <sup>4+</sup> Tc <sup>4+</sup>	NpO <sub>2</sub> <sup>+</sup> PuO <sub>2</sub> <sup>+</sup>	UO <sub>2</sub> <sup>2+</sup> PuO <sub>2</sub> <sup>2+</sup>	TcO <sub>4</sub> <sup>-</sup>

**Oberflächen-Sorption**      **Oberflächen-sorption**      **Oberflächen-sorption**

**Mineralisation**      **Mineralisation**

**Komplexierung**      **Komplexierung**

**Kolloidbildung**      **Kolloidbildung**

← **Reduktion** →

**Bild 8-2: Immobilisierende (Oberflächensorption, Mineralisation) und mobilisierende Prozesse (Komplexierung, Kolloidbildung) in Abhängigkeit von der Oxidationsstufe**

Die tri- und tetravalenten Kationen wie Am<sup>3+</sup> und Pu<sup>4+</sup> zeigen auf Grund ihrer hohen Ladung eine starke Neigung zur Hydrolyse und Komplexbildung, wobei diese stärker bei den tetravalenten als bei den trivalenten Metallionen ausgeprägt ist. Die genannten, an sich schwer löslichen Ionen haben eine noch höhere Affinität zur Sorption auf Mineraloberflächen als mono- oder bivalente, können sich in Lösung aber auch unter geeigneten geochemischen Randbedingungen als anionische Komplexe mit Carbonat oder Huminstoffen oder an natürlichen Kolloiden durch Bildung von „Pseudo“-Kolloiden stabilisieren. Diese wichtigen Komplexbildner sind in jedem natürlichen Aquifer in mehr oder weniger großen Mengen anwesend. Aufgrund ihrer starken Neigung zur Polymerisation bilden sie ferner bevorzugt kolloidal gelöste Spezies.

Die Metallionen in höheren Oxidationsstufen sind auf Grund der hohen Ladungsdichte im wässrigen Milieu nicht stabil. Die penta- und hexavalenten Aktinidionen stabilisieren sich durch Bildung niedrig geladener Dioxo-Kationen wie AnO<sub>2</sub><sup>+</sup> und AnO<sub>2</sub><sup>2+</sup>. Die Reaktivität eines AnO<sub>2</sub><sup>2+</sup> ist vergleichbar mit derjenigen trivalenten Metallionen, und es neigt damit ebenfalls zur Bildung kolloidaler bzw. komplexierter Spezies. Die heptavalenten Ionen liegen ausschließlich als Tetraoxo-Anionen wie TcO<sub>4</sub><sup>-</sup> vor und sind daher besonders mobil.

Im Endlager-Nahfeld sind durch die Gegenwart des Behältermaterials Eisen bzw. durch das Vorliegen reduzierender Tiefenwässer reduzierende Bedingungen zu erwarten. Hier liegen die relevanten Aktiniden sowie das Technetium in tri- bzw. tetra-

valenter Form vor und können durch Sorption oder Mitfällung und anschließende Mineralisierung immobil festgelegt oder durch Kolloidbildung oder Komplexbildung in der aquatischen Phase stabilisiert werden. Unter bestimmten Bedingungen können beispielsweise durch Radiolyse oder durch Zutritt von oxidierenden Oberflächenwässern aber oxidierende Verhältnisse auftreten. Daher ist für Sicherheitsanalysen auch das geochemische Verhalten der höheren Oxidationsstufen in Betracht zu ziehen.

Die Rückhaltung der Radionuklide in der Geosphäre hängt von ihrer Wechselwirkung mit mineralischen Oberflächen ab. Die Verteilung der RN auf gelöste, kolloidal gebundene und an Oberflächen sorbierte Spezies läßt sich durch einen Verteilungskoeffizienten  $K_d$  bzw. einen Sorptionskoeffizienten  $R_s$  quantifizieren. Die Wechselwirkungen der gelösten Spezies in der aquatischen Phase sind für die meisten der relevanten Radionuklide thermodynamisch beschreibbar und auch ausreichend gut parametrisiert. Die Vorgänge an der Grenze zwischen fester und flüssiger Phase, d.h. die Sorptionsvorgänge, können bisher nur unter bestimmten Bedingungen und nur für einzelne RN quantifiziert werden. Die Wechselwirkung der RN mit Kolloiden ist nur für gut charakterisierte Kolloidsysteme quantitativ beschreibbar, hingegen zur Zeit nicht für die polydispers und heterogen vorliegenden natürlichen Kolloide. Die Wechselwirkung der Kolloide mit Mineraloberflächen schließlich ist bislang nur rein phänomenologisch möglich. Bei Abwesenheit von Kolloiden ist folglich eine Quantifizierung der vorliegenden Wechselwirkungen in ausgewählten Fällen möglich, bei Anwesenheit von Kolloiden ist hingegen eine langfristige Voraussage über die Radionuklidrückhaltung nur schwer möglich. Voraussetzung für die Quantifizierung des Kolloideinflusses ist die Entwicklung und Parametrisierung entsprechender Kolloidmodelle.

Mit heutigem Kenntnisstand kann die Geochemie einzelner RN für relativ einfache und gut charakterisierte, geschlossene Systeme mit thermodynamischen Daten für gelöste Spezies und feste Phasen und mit phänomenologischen Informationen zur Kolloidbildung beschrieben werden. Auch können Teilsysteme eines natürlichen aquatischen Isolationssystems im Labor simuliert und die beobachteten Reaktionsverläufe (Löslichkeiten, Speziation, Bildung von Sekundärphasen, Sorptionsprozesse) geochemisch modelliert werden. Für realitätsnähere und vergleichende Sicherheitsaussagen wäre jedoch ein noch nicht verfügbares quantitatives Verständnis aller wesentlichen geochemischen Einzelprozesse und Reaktionsmechanismen, eine ausreichende thermodynamische Datenbasis für Aktiniden und langlebige Spaltprodukte, Modelle der Bildung und Stabilität von Kolloiden, eine geochemisch fundierte Quantifizierung von Quelltermen, d.h. die Integration der

Reaktionen von Abfall, Behälter, Gasen, Radionukliden, Radiolyse, Gestein, Versatzzuschlagstoffen usw. erforderlich. Zur geochemischen Beschreibung der Radionuklidmigration müssen darüber hinaus Sorptionsprozesse und der Kolloidtransport quantifiziert werden, wobei unter Umständen auch die Bildung und Remobilisierung sekundärer Akkumulationen sorbierter oder ausgefallener Radionuklide berücksichtigt werden müssen.

## 8.2 Grundwasserzusammensetzung und geochemische Bedingungen in der ungestörten Gesteinsformation

### 8.2.1 Grundwasserzusammensetzung in Granit

Wie schon in Kap. 2.4 erwähnt, kann die Zusammensetzung von Grundwässern in Granitformationen in Abhängigkeit von den jeweiligen lokalen Gegebenheiten stark variieren. Generell nimmt die Salinität mit der Tiefe zu. Wie aus C-14-Daten zu ersehen ist /SKB 92/, haben saline Wässer große Retentionszeiten. Es kann jedoch auch in sehr tiefen Zonen Frischwasser geringen Alters angetroffen werden. Durch die Aktivität von Bakterien werden reduzierende Bedingungen schon bei relativ kleiner Tiefe erreicht. Der Gehalt von organischem Kohlenstoff (Huminstoffe) nimmt mit der Tiefe ab. Typische Konzentrationen an Huminstoffen liegen in schwedischen Grundwässern bei 0,01 mg/l) /PET 90/. In schwedischen Granitformationen ist das Wasser unterhalb von 1.000 m sauerstofffrei.

Elemente, deren Konzentrationen im Grundwasser durch Gleichgewichte mit dem umgebenden Gestein bestimmt sind, sind Magnesium, Calcium, Karbonat, Eisen(II) und Kalium. Der pH-Wert ist bestimmt durch das Kalk/Kohlensäure-Gleichgewicht /SKB 92/, das Redoxpotential durch Gleichgewichte zwischen gelösten Fe(II)-Spezies und festen Fe(III)-Phasen. Eh-pH-Diagramme sowie die Carbonatgehalte der granitischen Wässer werden im Zusammenhang mit den Grundwässern des Deckgebirges über einem Salzstock in Kap. 8.2.3 diskutiert.

Die in schweizer Untersuchungen ermittelten Grundwasserzusammensetzungen (Tabelle 8-1) dürften den deutschen am ähnlichsten sein. In der Sicherheitsanalyse Kristallin-I /NAG 94/ wird Referenzgrundwasser des Na-SO<sub>4</sub>-(Cl-HCO<sub>3</sub>)-Typs zugrunde gelegt, das typisch für schlecht wasserleitende Gesteinsbereiche ist. Besonders wichtig für die RN-Migration ist der Gehalt an natürlich vorkommenden Kolloiden und Huminstoffen, denn durch beide können unter Umständen Radionuklide über lange Wegstrecken transportiert werden. Der Kolloidgehalt liegt bei 0,1 mg/l,

ähnlich wie in entsprechenden schwedischen Wässern /SKB 92/, der Gehalt an organischem Kohlenstoff bei 0,04 mg/l. Höhere Gehalte an organischem Kohlenstoff werden jedoch auch beobachtet.

	Westgebiet	Ostgebiet
pH	7,66	7,68
Eh (mV)	-278	-300
Temp. (°C)	55	55
gel. Feststoff (g/l)	0,969	0,543
Dichte	0,999	1,005
Ionenstärke	0,021	0,013
	mg/l	mg/l
Alkalinität (HCO <sub>3</sub> )	291	261
Li	1,1	0,64
Na	323	177
K	8,5	4,2
Rb	0,05	<0,05
Cs	0,04	0,05
NH <sub>4</sub>	0,14	<0,005
Mg	0,3	1,1
Ca	14	11,5
Sr	0,46	0,35
Ba	0,05	0,08
Ra	7E-10	1,7E-7
Mn	0,037	<0,005
Fe	0,007	<0,01
Cu	<0,002	0,01
Zn	0,004	<0,03
Zr	0,00015	
Al	0,012	0,012
U	0,00013	0,0003
Th	0,0005	
F	12	12
Cl	128	26
SO <sub>4</sub>	296	135
P	0,04	<0,02
As	0,16	0,006
Se	0,1	
H <sub>2</sub> S	<0,005	
H <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub>	46	46
H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	3,4	0,9
organ. Kohlenstoff	0,04	<6
O <sub>2</sub>	<0,0005	<0,0008
CO <sub>2</sub>	7,7	7

**Tabelle 8-1: Referenzgrundwässer aus /NAG 94/**

### 8.2.2 Laugen im Salinar

Die charakteristischen Merkmale von Lösungen in marinen Evaporiten wurden schon in Kap. 2.4.2 beschrieben. Hier soll auf die Zusammensetzung dieser Lösungen eingegangen werden.

Die Lösungsvorkommen können in ihrer Zusammensetzung in weiten Bereichen variieren, wobei die Konzentrationen der Hauptkomponenten durch Gleichgewichte innerhalb des hexären (Na-K-Ca-Mg-Cl-SO<sub>4</sub>) Systems ozeanischer Salze gegeben sind. Dies bedeutet, daß an den sogenannten invarianten Punkten fünf Salzminerale gemeinsam die Lösungszusammensetzung bestimmen. Das wichtigste Salzmineral im Steinsalz ist der Halit (NaCl). Fast alle Salzlaugen sind mit Halit gesättigt. Die möglichen Phasenbeziehungen zwischen den anstehenden Salzmineralien sind äußerst komplex und stark temperaturabhängig. Der Zusammensetzungsbereich halit-gesättigter Lösungen läßt sich am besten in der Dreiecksdarstellung (Jänicke) der quinären Subsysteme ausdrücken. Halit wird nicht dargestellt, da er allgegenwärtig ist. In Bild 8-3 ist das hexäre System für 25°C gemäß Eugster /EUG 80/ beschrieben. Es ist zu beachten, daß in dieser Darstellungsweise nicht absolute Konzentrationen, sondern nur Konzentrationsverhältnisse betrachtet werden. Als Beispiel ist die als besonders wichtig angesehene Q-Lauge als Punkt Q im Ca-freien Subsystem eingetragen. Der sulfatreiche Bereich des hexären Systems ist darüber hinaus auf der Ca-freien quinären Basis angegeben (rote Linien).

Die Lösungszusammensetzung hängt nicht nur von den anstehenden Salzmineralen, sondern auch von Wanderungsweg und Ursprung der Lauge ab.

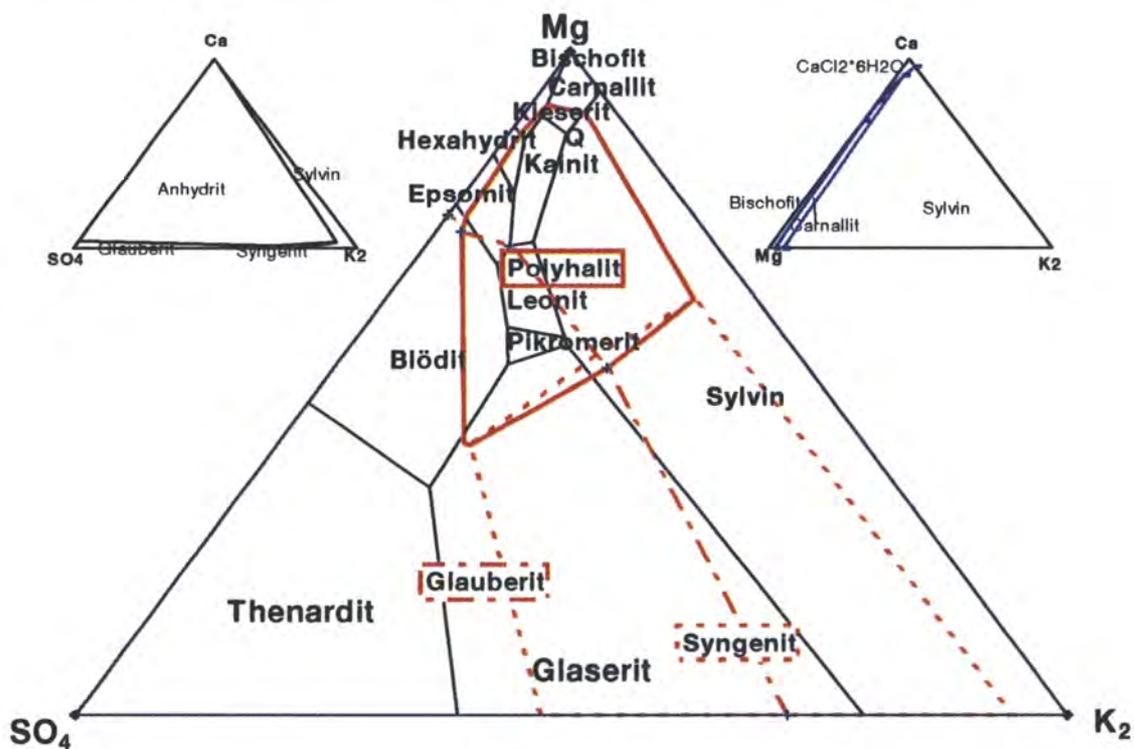


Bild 8-3: Darstellung des hexären Systems ozeanischer Salze (Jänicke-Projektion)

Referenzzusammensetzungen von Salzlaugen zum Zweck der Durchführung repräsentativer Laborversuche (Auslaug- und Korrosionsexperimente) wurden vom „Arbeitskreis HAW-Produkte“ definiert und sind in Tabelle 8-2 zusammengefaßt.

Ionenstärke	Lauge 1	Lauge 2	Lauge 3
Na	14,9	17,3	6,2
K	0,378	0,083	0,037
Mg	0,967	0,022	0,037
	4,471	5,401	0,018
Ca	--	0,316	0,021
Cl	9,933	11,538	6,036
SO <sub>4</sub>	0,177	0,0006	0,058

**Tabelle 8-2: Referenzzusammensetzung von Salzlaugen für Laborversuche gemäß Definition des Arbeitskreises HAW-Produkte**

Charakteristisch für magnesiumreiche Lösungen ist, daß der pH-Wert nicht alkalisch werden kann.

Das geochemische Milieu wird aber nicht nur durch die Haupt- sondern auch die Spurenelemente Br, Sr, Zn, Li, Mn, Fe, Cu, B in den Salzlösungen geprägt. Zum Beispiel beeinflusst der Gehalt an Brom maßgeblich die radiolytische Zersetzung der Salzlaugen. Die vorhandenen Lösungen sind in vielen Fällen ebenso wie im Granit reduzierend. Die oft hohen Fe(II)-Gehalte führen dazu, daß bei Zutritt von Luftsauerstoff Fe(III)-Kolloide ausfallen. Wichtig ist auch der Carbonatgehalt, weil durch Carbonatkomplexierung die RN-Mobilität erhöht werden kann oder weil RN in sich bildende carbonathaltige Mineralphasen eingebaut werden können. Im allgemeinen ist der Carbonatgehalt der Lösungen in Salzformationen kleiner als im Granit, weil Kalzit oder Magnesit ausfallen.

Aus grundsätzlichen Überlegungen kann man annehmen, daß in Salzlösungen deutlich niedrigere Kolloidgehalte vorliegen als in granitischen Grundwässern (vgl. auch 8.5.4).

### 8.2.3 Grundwässer in der Sedimentabdeckung

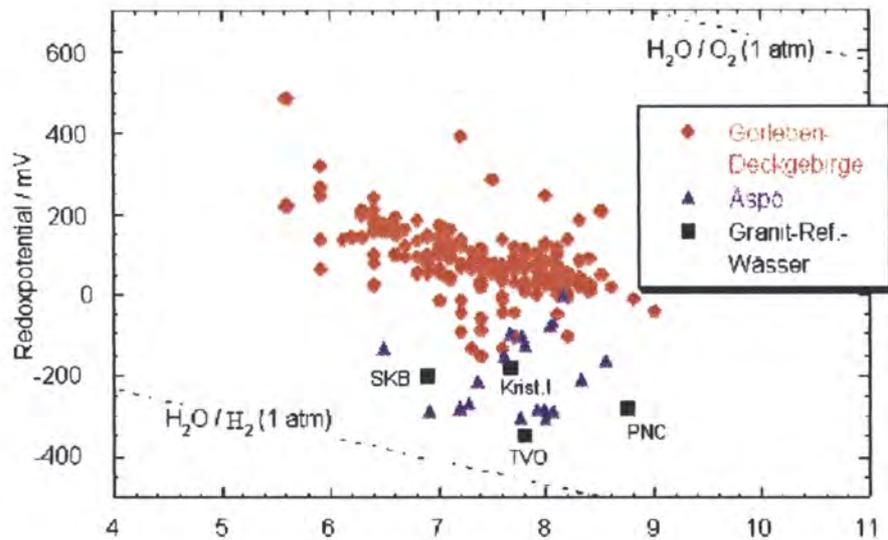
Die Geochemie der in den Sedimenten über einem Salzstock auftretenden Grundwässer soll anhand der Resultate aus den Untersuchungen am Aquifersystem bei Gorleben beschrieben werden. Bei den Granitformationen fehlt i.d.R. eine Sedi-

mentabdeckung oder ihr kommt keine Barrierenfunktion zu, da die RN-Ausbreitung über den geklüfteten Granit erfolgt.

Das bis zu 280 m mächtige Aquifersystem über dem Salzstock Gorleben zeichnet sich durch eine Folge von wasserleitenden Schichten (miozäne Braunkohlesande und eiszeitliche Sande und Kiese) aus, die von Grundwassernichtleitern bzw. -hemmern durchsetzt, aber nicht voneinander isoliert sind. Charakteristisch ist die zunehmende Versalzung der Grundwässer mit der Teufe. Bis 50 m liegen schwach mineralisierte Wässer (Süßwässer) vor, während im Bereich des Hutgesteins des Salzstocks NaCl-gesättigte Lösungen (Laugen) auftreten. In den unterschiedlichen Teufenbereichen kommt es zur Vermischung aufsteigender Salzwässer mit oberflächennahen Süßwässern.

In Bild 8-4 sind die Redoxpotentiale und pH-Werte für verschiedene Gorleben-Grundwässer sowie für granitische Wässer aufgetragen. Zusätzlich sind die Stabilitätsgrenzen von Wasser bezüglich Oxidation zu  $O_2$  und Reduktion zu  $H_2$  eingezeichnet. Jenseits dieser Linien ist Wasser nicht beständig. Bei den granitischen Wässern handelt es sich um kritisch ausgewählte Wässer aus dem Äspö HRL /LAA 93/ sowie um die Referenzwässer verschiedener Sicherheitsstudien.

Die pH-Werte der Gorleben-Grundwässer zeigen eine große Spannbreite von 5,5 bis 9,0. Über diesen weiten pH-Bereich kann sich die chemische Speziation der RN drastisch ändern. Die Redoxpotentiale der Gorleben-Wässer liegen im Bereich von -160 bis +480 mV und damit im Mittel um 300 mV höher als die der granitischen Wässer. Diese Unterschiede können zum einen auf meßtechnische Probleme zurückgeführt werden, da In-situ-Bohrlochmessungen an Gorleben-Wässern zum Teil um 120 mV niedrigere Werte als die gezeigten Feldmessungen ergeben, zum anderen reflektieren die Diskrepanzen den unterschiedlichen Teufenbereich der Wässer. Bei den granitischen Wässern handelt es sich durchweg um Tiefenwässer (Teufenbereich zwischen 130 und 930 m), die Gorleben-Wässer stammen aus Teufen zwischen 10 und 250 m. Für granitische Wässer wird eine Abnahme des Redoxpotentials mit zunehmender Teufe gefunden, eine entsprechende Abhängigkeit ist für die Gorleben-Wässer auch zu erwarten, läßt sich aber experimentell nicht bestätigen. Die Gorleben-Wässer zeigen eine Zunahme des Redoxpotentials mit abnehmendem pH-Wert, die mit einer das Potential bestimmenden Reaktion zwischen  $Fe^{2+}$  (gelöst) und  $Fe(OH)_3$  (fest) in Übereinstimmung steht.

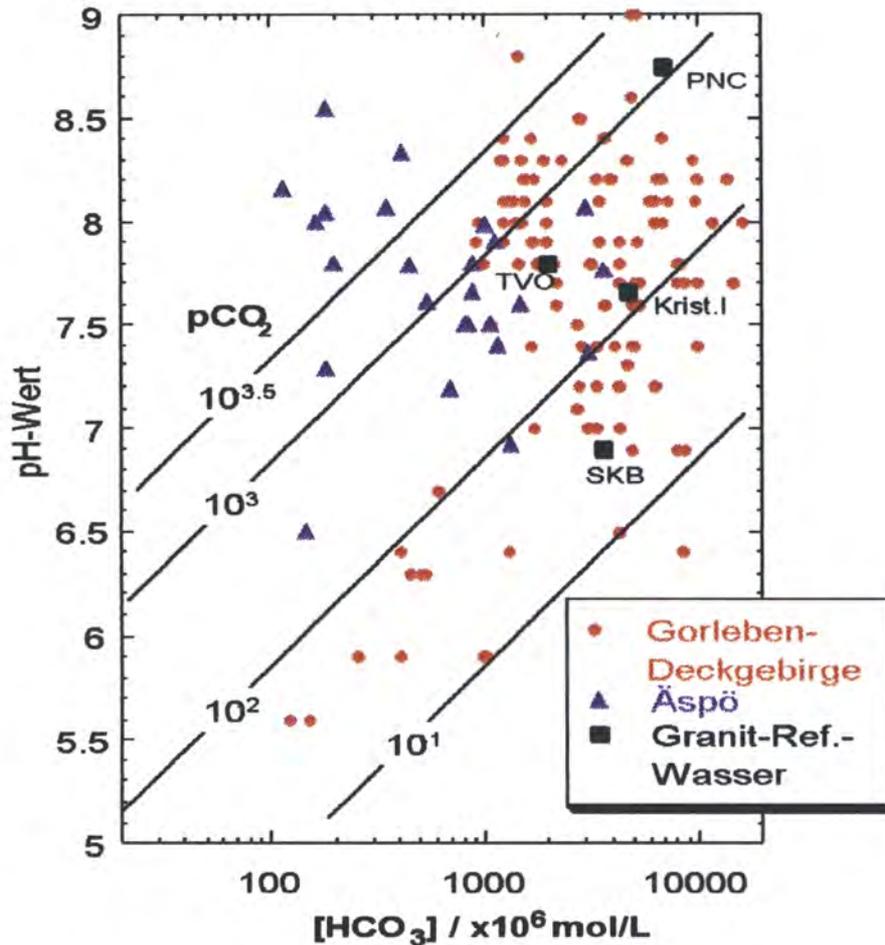


**Bild 8-4: Eh/pH-Zusammenhänge in verschiedenen Gorleben-Grundwässern und granitischen Wässern**

Ein entscheidender Faktor bei der Stabilisierung von Radionukliden in Lösung ist die Komplexierung mit anionischen Grundwasserinhaltsstoffen. In den Gorleben-Grundwässern ist in erster Linie die Komplexierung mit Carbonat und mit Huminstoffen zu betrachten.

Im pH-Bereich der Gorleben-Wässer liegt das Carbonat fast ausschließlich als Bicarbonat  $\text{HCO}_3^-$  vor. Die Bicarbonat-Konzentrationen  $[\text{HCO}_3^-]$  sind in Bild 8-5 zusammen mit den pH-Werten für Gorleben- /BUC 91/ und ausgewählte granitische Grundwässer aufgetragen.

Als Geraden sind zusätzlich die berechneten  $\text{CO}_2$ -Gleichgewichtspartialdrücke  $P_{\text{CO}_2}$  angegeben, die sich in einem abgeschlossenen System in der Gasphase einstellen. Bei den Gorleben-Grundwässern liegt der  $\text{CO}_2$ -Partialdruck meist beträchtlich über dem atmosphärischen Partialdruck von 0,035%; er erreicht maximal 10% und liegt im Mittel bei 1%. Die granitischen Referenz-Grundwässer zeigen vergleichbare, aber weniger streuende Bicarbonat-Gehalte. In den Wässern aus dem HRL Äspö werden bei vergleichbaren pH-Werten um den Faktor 10 kleinere Bicarbonat-Gehalte gefunden.

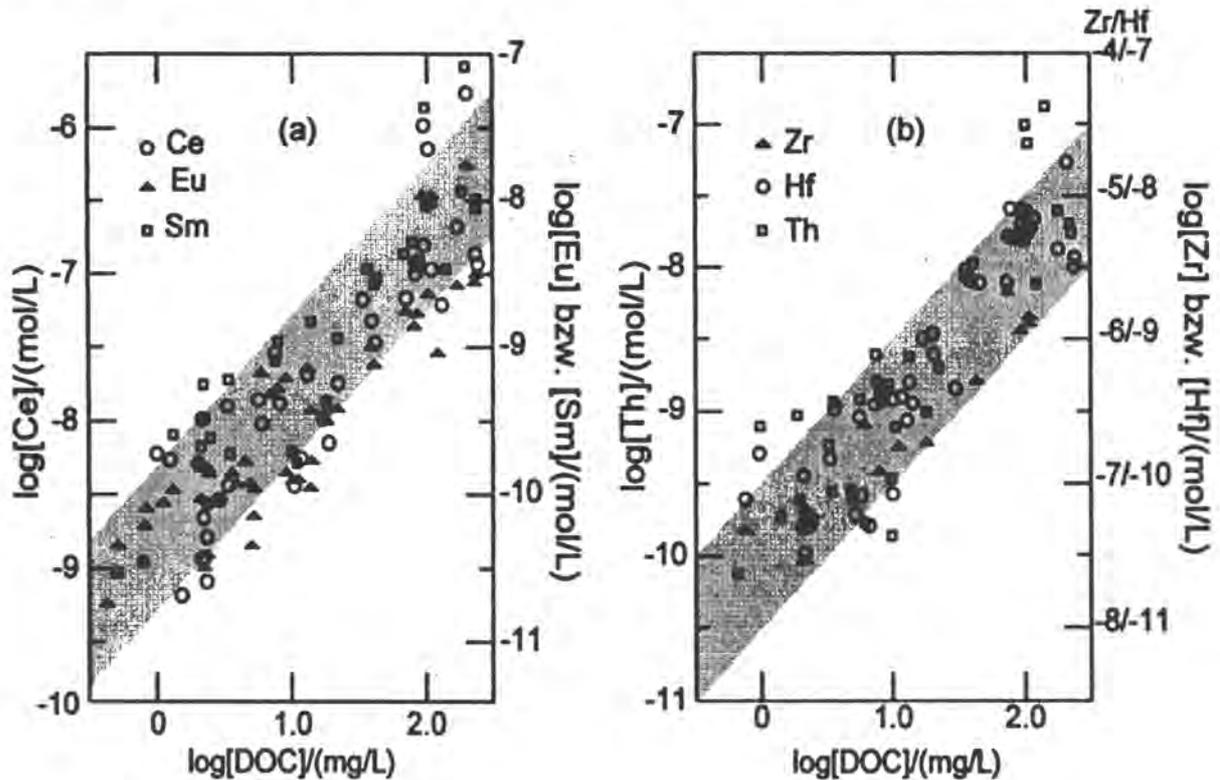


**Bild 8-5: Korrelation von pH mit [HCO<sub>3</sub>] in Grundwässern**

Charakteristisch für die Grundwässer aus dem Aquifer von Gorleben ist der teilweise sehr hohe Gehalt an organisch gelöstem Kohlenstoff (DOC), der überwiegend in der Form von Huminstoffen vorliegt. Diese Huminstoffe bestehen zum einen aus Abbauprodukten von eingetragendem biologischem Material, wie es auch in granitischen Wässern gefunden wird, d.h. überwiegend aus Fulvinsäuren. Daneben finden sich aber besonders in den Tiefenwässern im Bereich der Subrosionszone des Gipschutes sehr hohe Konzentrationen an Huminsäuren, die durch die Oxidation von Braunkohleeinlagerungen entstanden sind.

Die Huminstoffe sind sehr starke Komplexbildner für polyvalente Schwermetallionen und können diese unter den natürlichen pH-Bedingungen schwer löslichen Ionen in aquatischer Lösung stabilisieren. In Grundwässern, die sich im geochemischen Gleichgewicht befinden, liegen die Huminstoffe bis zur Sättigung beladen mit Metallionen in Form kolloidaler Aggregationen vor (Huminkolloide).

In Bild 8-6 sind die analytischen Konzentrationen ausgewählter tri- und tetravalenter Schwermetallionen, die als Homologe der Aktiniden gelten können, in Gorleben-Grundwässern als Funktion des DOC aufgetragen. Die in logarithmischer Darstellung gefundene lineare Korrelation mit der Steigung 1 über fast drei Größenordnungen beweist, daß die tri- und tetravalenten Spurenelemente in den Grundwässern als Humat/Fulvat-Komplexe stabilisiert werden und damit auch mobilisierbar sind.



**Bild 8-6:** Konzentration verschiedener Spurenelemente in den Oxidationsstufen III (links) und IV (rechts) in Gorleben-Grundwässern als Funktion der Huminstoffkonzentration, ausgedrückt durch die Konzentration des gelösten organischen Kohlenstoffs (DOC) /KIM 87, BUC 91/.

Der Einfluß von Kolloiden ist somit der wesentliche Unterschied zwischen granitischen Grundwässern und den Wässern aus der Sedimentabdeckung in Gorleben. Während in Gorleben-Wässern die Kolloide überwiegend organischen Charakter aufweisen und zum Teil in sehr hohen Konzentrationen vorliegen, bestehen die Kolloide in granitischen Wässern vorwiegend aus anorganischen Bestandteilen (Tone, Quarz, Schwermetalloxide/hydroxide) in oft kleinen Konzentrationen.

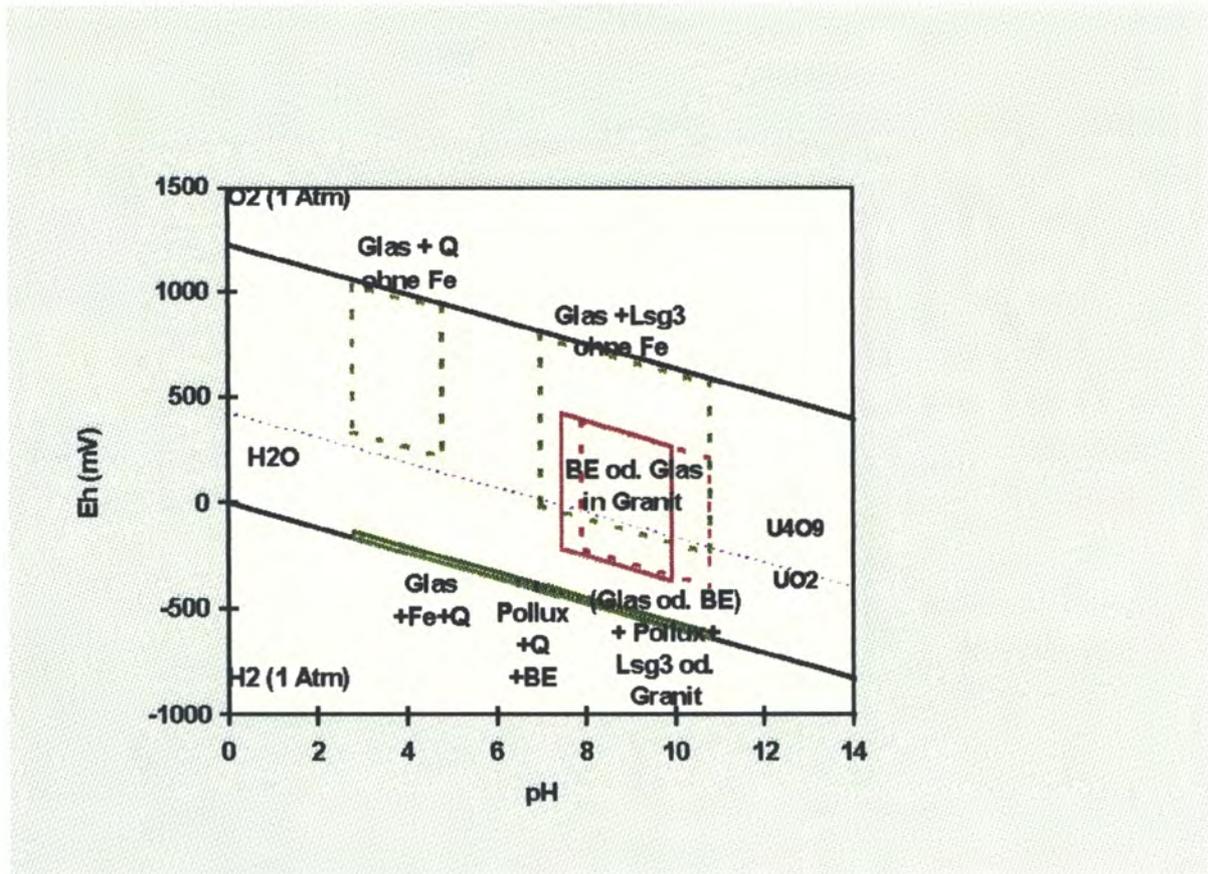
### 8.3 Technische Barrieren

Die Grundwässer oder Laugen aus der Endlagerwirtsformation kommen nicht in geogener Zusammensetzung direkt mit dem Abfall in Berührung, sondern werden durch Wechselwirkung mit den Materialien der technischen und geotechnischen Barrieren (formationsfremde Verfüll- und Puffermaterialien, Behältermaterialien und nach Korrosion des Behälters das Abfallprodukt) verändert. Die Wärme aus dem radioaktiven Zerfall beeinflusst darüber hinaus das hydraulische Verhalten und den Chemismus durch Beeinflussung der chemischen Gleichgewichte und Erhöhung der Reaktionsgeschwindigkeiten. Das geochemische Milieu im Nahfeld unterscheidet sich somit deutlich von dem der geologischen Formation. Die technischen Barrieren müssen so konzipiert sein, daß sie in diesem Umfeld ausreichend lange funktionsfähig bleiben.

Beim Granitkonzept ist neben dem Behältermaterial insbesondere der Bentonit zu berücksichtigen. Bentonit wird auch für Verschlusskonzepte in Salz in Erwägung gezogen. Da dies jedoch noch nicht eingehender untersucht ist, werden bei dieser Gegenüberstellung von Endlagerkonzepten für das Salinar weder Bentonit noch andere Versatzzuschlagstoffe zu Salzgrus (z.B. Apatit) betrachtet.

#### 8.3.1 Behälterkorrosion

Der Behälter verhindert je nach Dicke, Werkstoff und Chemismus der Grundwässer und Laugen deren Zutritt zum Abfall für mehrere hundert bis tausend Jahre. Nach dieser Zeit ist die Brennstofftemperatur bereits stark abgeklungen. Im Rahmen von GEISHA wird Feinkornbaustahl als Behälterwerkstoff betrachtet. Bei Zutritt von Grundwässern in Hartgestein oder Laugen in Salzformationen ist dieser Stahl ein aktiv korrodierendes Material. Sowohl in Salzlösungen als auch im Porenwasser des Bentonits wird das geochemische Milieu stark von der Korrosion des dickwandigen Behälters beeinflusst. Bei Anwesenheit ausreichender Mengen an Eisen kann die reduzierende Wirkung wesentlich größer sein als die der geologischen Umgebung. Anhand des Eh/pH-Diagramms in Bild 8-7 lassen sich die Unterschiede zwischen Salzlaugen und Granitwässern diskutieren.



Q: quinäre Lauge im Punkt Q

Lsg.3: NaCl-reiche Lauge (vgl. Tabelle 8-2)

Stabilitätsgrenzen  $UO_2/U_4O_9$  im Fall der Oxidation von  $UO_2$

Fe, POLLUX: Gegenwart von Behältermaterial

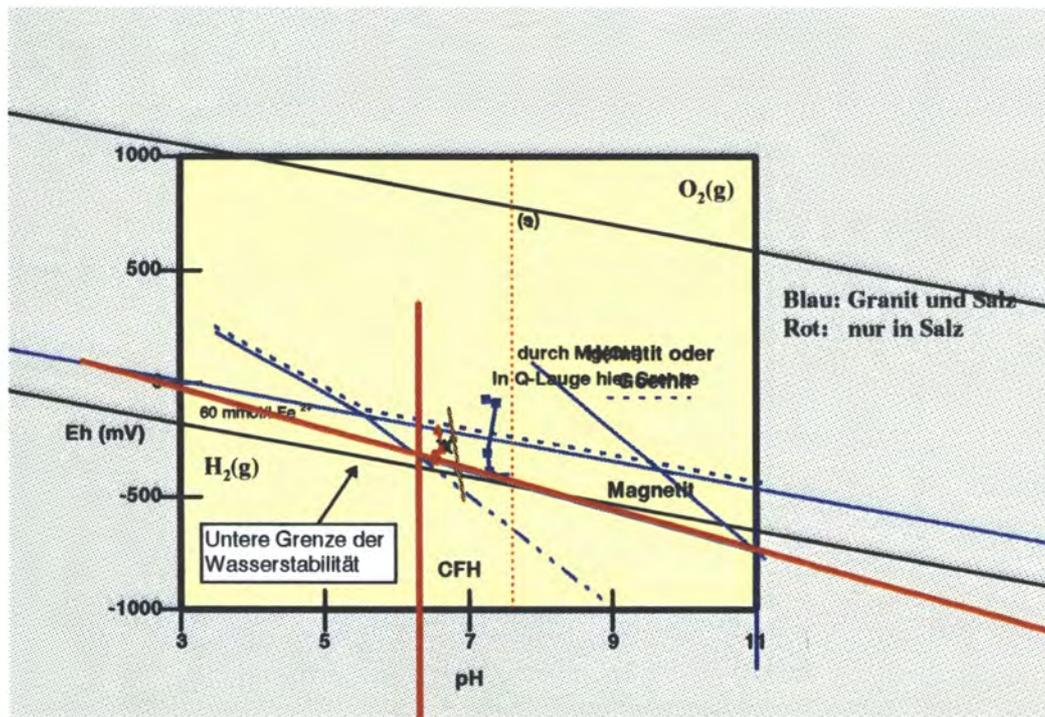
BE, HAW: abgebr. Brennstoff bzw. HAW-Glas

**Bild 8-7: Eh/pH-Werte im Nahfeld von Abfallgebinden in Salz bzw. Granit**

Nach /NAG 85/ muß zwischen drei Korrosionsprozessen unterschieden werden. Die Reaktion des Behältermaterials mit in Wasser gelöstem Sauerstoff, der nach Verschuß im Endlager blieb, ist ein Prozeß von untergeordneter Bedeutung, da der Sauerstoff schnell verbraucht und in der Tiefe des Endlagers nicht nachgeliefert wird. Durch den Verbrauch von Sauerstoff werden die Wässer reduzierender, man bewegt sich in Bild 8-7 in Richtung negativer Eh-Werte. Weiter führt eine Reaktion mit Sulfiden, die durch bakterielle Reduktion von Sulfaten entstehen, selbst wenn man die unwahrscheinliche Annahme macht, daß alles Sulfat zu Sulfid reduziert wird, zu nicht mehr als etwa 1 cm Korrosion in 1.000 Jahren. Die wichtigste Korrosionsreaktion in Granitwässern und in NaCl-reichen Salzlösungen ist die anaerobe Bildung von Magnetit nach



bei der Wasserstoff freigesetzt und die untere Stabilitätsgrenze des Wassers in Bild 8-7 erreicht wird. In  $\text{MgCl}_2$ -reichen Lösungen entstehen unter anaeroben Bedingungen auch andere Korrosionsprodukte, vor allem  $(\text{Fe,Mg})(\text{OH})_2/\text{Fe}_2(\text{OH})_3\text{Cl}$  - CFH, chlorinated ferrous hydroxide -, und nur Spuren von Magnetit. Die Stabilitätsgrenzen zwischen der Bildung von  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  und CFH sind im sog. Pourbaix-Diagramm (Bild 8-8) ersichtlich. Dargestellt sind Korrosionsprodukte, die bei anaerobem Kontakt von Q-Lauge (rote Kurve) und Granitwässern mit niedrig legierten Stählen entstehen. In NaCl-reichen Laugen wird das Stabilitätsfeld von CFH über die Grenze der Wasserstabilität verschoben. Solange Wasserstoff produziert wird, ist die Eh/pH-Beziehung der Wässer durch die untere Grenze der Wasserstabilität gegeben. CFH sollte sich also nicht in NaCl-Lösungen bilden. Hematit oder Goethit (gestrichelte blaue Kurve) entstehen nur in Gegenwart geringer Sauerstoffmengen oder nach vollständigem Umsatz des metallischen Eisens, wenn die Produktion von Korrosionswasserstoff zum Erliegen gekommen ist.



CFH Chlorinated ferrous hydroxide  $(\text{Fe,Mg})(\text{OH})_2/\text{Fe}_2(\text{OH})_3\text{Cl}$

**Bild 8-8: Stabilitätsfelder relevanter Eisenkorrosionsprodukte**

Aus experimentellen Daten läßt sich eine Obergrenze für die anaerobe Korrosion von 2 cm in 1.000 Jahren ableiten. Durch die anaerobe Korrosion entsteht Wasserstoff und das geochemische Milieu wird stark reduzierend. Die Mobilität der Aktiniden (auch von Neptunium) und von Technetium wird reduziert. Der Verbleib des

Wasserstoffs ist bei der Endlagerung in Granit wegen offener Fragen zum Gastransport im Bentonit noch nicht abschließend geklärt.

### 8.3.2 Barrierenwirkung von Endlagergebänden mit abgebranntem Brennstoff

#### 8.3.2.1 Verteilung der Radionuklide im Brennstoff

Zur Beurteilung der Barrierefunktion des Brennstoffs hinsichtlich der Mobilisierung von RN ist die Kenntnis der Verteilung der relevanten RN erforderlich. Die Spaltprodukte, Aktiniden und Aktivierungsprodukte sind elementspezifisch zu verschiedenen Anteilen in den Urandioxidkörnern, an Korngrenzen und Rißoberflächen, in unterschiedlichen Phasen, im Hüllrohr und auf den Strukturteilen zu finden. Die RN sind am Brennstoffrand angereichert und liegen entlang der Brennstabachse im DWR-BE mit annähernd konstanten Konzentrationen im mittleren Brennstabbereich und abnehmenden Gehalten zum Rand hin vor. Die Verteilung der RN ist von ihren chemischen Eigenschaften, von Verunreinigungen sowie von Abbrand und Temperatur (Stableistung) im Reaktor abhängig.

Nach heutigem Kenntnisstand zur RN-Verteilung befindet sich der Hauptteil der RN, nämlich 100 % der Aktiniden und der Seltenen Erden sowie mindestens 99,9 % des Strontiums und mehr als 90 % von Cäsium, Jod und Edelgasen, in der Urandioxidmatrix. Im freien Gasraum des Brennstabes und an Korngrenzen befinden sich bei hochabgebranntem Brennstoff zwischen 0,1 und 5 % der bei der Kernspaltung gebildeten Edelgase (u.a. Kr-85). Die bei den hohen Temperaturen im Reaktor relativ flüchtigen Elemente Cäsium und Jod sind im Plenum bei den tiefen Temperaturen nach Entnahme aus dem Reaktor ziemlich gleichmäßig auf Rißflächen und an der inneren Oberfläche des Hüllrohrs ausgeschieden. In bestimmten Fällen ist die Beweglichkeit von Spaltprodukten so groß, daß sie ihren Entstehungsort durch Diffusion verlassen und neue, metallische Phasen bilden. Diese metallischen Ausscheidungen bestehen vor allem aus den Elementen Pd, Rh, Ru, Mo und Tc. Zum Teil sind sie im Inneren der Urandioxidkörner zu finden, zum Teil sind sie entlang der Korngrenzen verteilt. Die Aktivierungsprodukte Co-60, Ni-59 und Ni-63 sind in den metallischen Strukturteilen der Brennelemente konzentriert, C-14 befindet sich etwa zur Hälfte im Hüllrohr, zur anderen Hälfte im Brennstoff.

### 8.3.2.2 Auslaugung von abgebranntem Brennstoff

Beim Kontakt von Grundwässern oder Salzlauge mit abgebranntem Brennstoff erfolgt eine simultane Auslaugung verschiedener Stellen des heterogenen Brennstoffgefüges und die Bildung neuer Phasen, in denen bestimmte Anteile der anfänglich aus dem primären Brennstoffgefüge mobilisierten RN erneut festgehalten werden. Dies bedeutet, daß die Freisetzung von RN inkongruent erfolgt, d.h. das Verhältnis der RN in Lösung entspricht nicht deren Verhältnis im Brennstoff. Darin ist auch der eigentliche Grund dafür zu sehen, daß unter Endlagerbedingungen nicht die Radioaktivität des Brennstoffs ein Maß der Gefährlichkeit ist, sondern der tatsächlich auflösbare RN-Anteil des Brennstoffs. Neben den verschiedenen Freisetzungsmechanismen sind vor allem Rückhalteprozesse wie die Sorption an Oberflächen oder die erneute Immobilisierung von RN durch Einbau in die Kristallstruktur neu gebildeter fester Reaktionsprodukte von Bedeutung. Folgende Freisetzungs- und Rückhalteprozesse werden im einzelnen kurz dargestellt:

- Freisetzung von RN aus Rissen, Spalten und Korngrenzen,
- Freisetzung aus der  $UO_2$ -Matrix,
- Redoxverhältnisse und Radiolyse,
- Rückhaltung durch Bildung U- bzw. Pu-haltiger Phasenumwandlungsprodukte,
- Weitere Einflußgrößen (Fließrate des Grundwassers, Abbrand, Temperatur, effektive Brennstoffoberfläche).

#### 8.3.2.2.1 Freisetzung von RN aus Rissen, Spalten und Korngrenzen

An der Oberfläche des Ringspaltes zwischen Brennstofftabletten und Zirkalloyhülle sowie an den Stirnflächen der Tabletten und an Rissen haben sich Anteile der sehr leicht löslichen, langlebigen RN Cs-135, I-129 und Cl-36 niedergeschlagen. Bei Kontakt mit Grundwasser oder Laugen werden diese innerhalb weniger Minuten bis Wochen ausgewaschen. Der auswaschbare Anteil des gesamten Cäsiums und Jods entspricht ihrem als Spaltgas freigesetzten Anteil, d.h. typischerweise 1-3 und maximal ca. 7 Prozent. Für Sicherheitsanalysen muß unabhängig von der Endlagerformation für den Kontakt mit Grundwässern und Laugen die instantane Freisetzung von etwa 2 Prozent der Inventare von Cäsium und Jod und, mangels besserer Kenntnis, etwa 30 Prozent von Chlor-36 unterstellt werden.

In die leicht zugänglichen Korngrenzflächen dicht an der Tablettenoberfläche kann Wasser bereits in Zeiträumen von Monaten eindiffundieren und Ausscheidungen von Cäsium und Jod, wahrscheinlich Technetium und weiteren metallischen Phasen selektiv lösen und mobilisieren. Die Korngrenzen sind zu Wegsamkeiten für Wasser und - falls vorhanden - für Sauerstoff ins Innere des Brennstoffgefüges geworden /JOH 88/. Tiefer liegende Korngrenzen werden nur durch langsame Diffusionsprozesse erreicht. Derzeit nimmt man an, daß vergleichbare Mengen an Cäsium und Jod an den Korngrenzen akkumuliert sind wie an offen zugänglichen Spalten und Rissen /JOH 94/, d.h. bei abgebranntem Brennstoff aus Leichtwasserreaktoren etwa 0,1-5 %. Auch für das Element Strontium (vgl. 8.3.2.2.2) wurde das Vorliegen auf Korngrenzen diskutiert und eine Obergrenze von 0,1 % des Inventars angegeben /LOI 95/. Damit ist der Beitrag der Korngrenzen zur Gesamtfreisetzung von Strontium klein. Die Auslauggeschwindigkeit für Cäsium aus Korngrenzen nimmt mit der Zeit ab und die Raten der Cäsiumfreisetzung nähern sich der Rate der Freisetzung der matrixgebundenen RN (vgl. Bild 8-9). Die Freisetzung der RN von Rissen, Spalten und von Korngrenzen ist vom laugenden Medium weitgehend unabhängig, weil sie im wesentlichen von geometrischen Parametern des Gefüges und vom Abbrand abhängt.

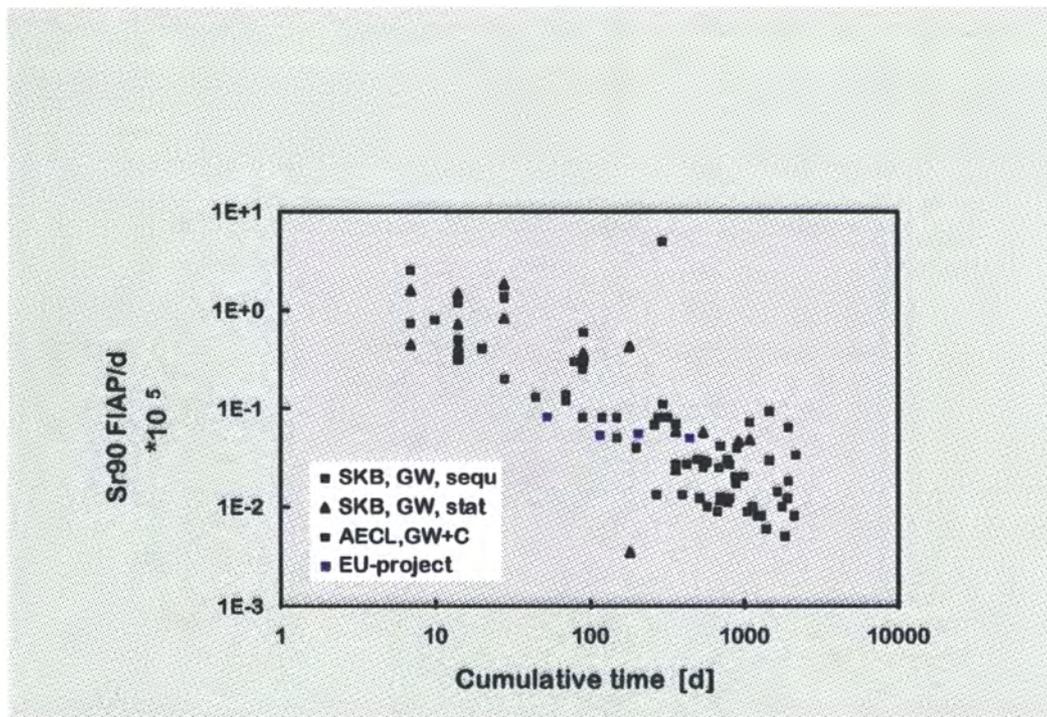
#### 8.3.2.2.2 Freisetzung aus der Matrix der Urandioxidkörner

Der größte Anteil der die Radiotoxizität bestimmenden RN, der Aktiniden, befindet sich in den Brennstoffkörnern. Die Eignung von abgebranntem Kernbrennstoff als Endlagerprodukt hängt daher entscheidend von der Korrosionsstabilität der Urandioxidmatrix unter geologischen Bedingungen ab. Ein Vergleich von Auslaugdaten aus kanadischen, amerikanischen und schwedischen Untersuchungen ergab, daß die Freisetzungsraten von Sr-90 im wesentlichen durch die Geschwindigkeit der Auflösung der Urandioxidkörner bestimmt wird /GRA 89/, weil Sr-90 kaum an Rückhalteprozessen teilnimmt. Es eignet sich somit als Leitelement für das experimentelle Studium des Verhaltens der Brennstoffmatrix. Die Geschwindigkeit der Auflösung von Uran ist meist viel kleiner als von Strontium. Dies liegt wahrscheinlich daran, daß der größte Teil des Urans nach der Korrosion der Brennstoffkörner in sekundäre Phasenumwandlungsprodukte eingebaut wird. Obwohl die Brennstoffmatrix im wesentlichen aus Uran besteht, ist also die Auslaugung von Uran kein Maß für deren Auflösungsprozeß.

Der angesprochene Vergleich von Auslaugdaten aus Experimenten, in denen der Brennstoff mit nicht salinaren Lösungen (reinem Wasser, granitischem Grundwasser

oder Wässern aus Tuff-Formationen) unter anaeroben Bedingungen in Kontakt gebracht worden war, hat darüber hinaus eine überraschende Ähnlichkeit der Strontium-Daten selbst nach 1.000 Tagen Versuchsdauer gezeigt. Dies wurde dahingehend interpretiert, daß Brennstofftyp (CANDU, DWR, SWR) und Abbrand von geringer Bedeutung für die Auflösung der Brennstoffmatrix sind. In Bild 8-9 sind Raten der Strontiumauslaugung als Maß für das Auslaugverhalten der  $UO_2$ -Matrix dargestellt. Neben den Auslaugdaten für granitische Wässer aus Schweden (SKB) und Kanada (AECL) sind zum Vergleich auch am Forschungszentrum Karlsruhe (EU-project) ermittelte Raten für die Strontiumauslaugung in hochkonzentrierter NaCl-Lösung eingetragen.

Es zeigt sich, daß in den verschiedenen wäßrigen Lösungen ähnliche Auslaugdaten ermittelt wurden. Kernaussagen über das Verhalten matrixgebundener RN unter den Verhältnissen in Salzformationen sind somit direkt auf Endlager in Hartgesteinsformationen übertragbar. Korrosionsraten sind nur unwesentlich von Temperatur, pH-Wert und vom  $CO_2$ -Gehalt der Wässer beeinflusst. Nach 1.000 Tagen beträgt die Geschwindigkeit der Auflösung etwa 0,01 % pro Jahr, d.h. daß selbst bei permanentem Kontakt mit Grundwässern - unter der Annahme gleichbleibender Geschwindigkeit über lange Zeit - unter anaeroben Bedingungen mit vollständiger Brennstoffauflösung erst in 10.000 Jahren zu rechnen ist.



FIAP/d: fraction of inventory in the aqueous phase per day  
statische („stat“), sequentielle („sequ“) Auslaugversuche

EU-project: Auslaugung in NaCl

**Bild 8-9: Sr-90-Freisetzungsdaten in Salzlauge und Granitwasser**

### 8.3.2.2.3 Redoxverhältnisse und Radiolyse

Die wichtigste Grundwassereigenschaft im Hinblick auf die Brennstoffstabilität ist das Redoxpotential, da davon abhängt, ob das vierwertige, schwerlösliche Uran der Urandioxidmatrix zu leicht löslichen, sechswertigen Uranylverbindungen oxidiert werden kann. In oxidierenden Grundwässern ist der Verlauf des Auslaugprozesses ein völlig anderer als in einem reduzierenden Milieu.

In Abwesenheit oxidierender Spezies löst sich der Brennstoff nur langsam auf. Würde die Radiolyse nicht ständig oxidierende Spezies produzieren, dann könnte sogar ein chemisches Gleichgewicht zwischen Brennstoff und dem Grundwasser erreicht werden und die Korrosionsrate ginge in stagnierenden Wässern gegen Null. Die experimentell ermittelte Rate der Strontiumauslaugung, d.h. der Auflösung der Brennstoffmatrix, ist unter reduzierenden Bedingungen etwa um den Faktor 4 bis 10 kleiner als unter oxidierenden Bedingungen. Anders ist die Sachlage beim RN Cäsium. Bei hochabgebranntem Brennstoff wird dessen Auslaugung durch die Redoxbedingungen nicht beeinflusst, bei sehr kleinem Abbrand hingegen gilt das gleiche wie für Strontium /WER 89/. Dies liegt daran, daß die Brennstoffmatrix nicht aufgelöst werden muß, um Cäsium von den Spalten und Rissen von hochabgebranntem Brennstoff zu mobilisieren. Bei schwach abgebranntem Brennstoff ist Cäsium jedoch noch kaum zu den Rissen gewandert und verbleibt in der Matrix der Urandioxidkörner.

Die Wichtigkeit der Redoxbedingungen wird auch durch die Tatsache unterstrichen, daß Uranerzlagerstätten in Form von Urandioxid (Uraninit) mehrere Milliarden Jahre lang stabil bleiben konnten, wenn der Zutritt von Sauerstoff oder anderer Oxidantien ausgeschlossen wurde. Der vom Redoxzustand abhängige Stabilitätsbereich von Urandioxid ist in Bild 8-7 eingezeichnet. Eine Mobilisierung von Uran erfolgt erst unter oxidierenden Bedingungen. Umgekehrt scheidet sich Urandioxid aus, wenn ein uranreiches oxidierendes Grundwasser in ein reduzierendes Gestein hineinfließt. Es wäre sicher voreilig, daraus schon auf eine entsprechend lange Stabilität des Brennstoffs unter nicht oxidierenden Bedingungen zu schließen, insbesondere weil durch die radioaktive Strahlung des Brennstoffs Radiolyseprodukte entstehen. Diese Beobachtung des Verhaltens in der Natur (Natürliche Analoga) unterstreicht aber die Bedeutung der Redoxverhältnisse.

Unter den reduzierenden Bedingungen, die sich in Gegenwart eines dickwandigen Stahlbehälters ausbilden werden, wäre abgebrannter Kernbrennstoff eigentlich stabil. Die Freisetzung der Radionuklide aus der Matrix der Urandioxidkörner wäre dann an die Löslichkeitsbegrenzte Auflösung der Matrix gebunden. Selbst bei einem

hypothetisch zutretenden großen Laugenvolumen von z.B. 100 m<sup>3</sup> zu einem Lagerort in Salzgestein wären dann weniger als 0,0003% des Inventars eines POLLUX-Behälters in beliebig langen Zeiten auflösbar. In Wirklichkeit wird die Korrosionsrate jedoch höher sein, weil die  $\alpha$ -,  $\beta$ -, und  $\gamma$ -Bestrahlung der Salzlösungen bzw. Grundwässer chemisch sehr reaktive oxidierende und reduzierende Verbindungen erzeugt. Dieser Prozeß wird als Radiolyse bezeichnet, wobei je nach Strahlungsart zwischen  $\alpha$ -,  $\beta$ - und  $\gamma$ -Radiolyse unterschieden wird. Nach 500 Jahren ist nur noch  $\alpha$ -Radiolyse von Bedeutung, weil die wichtigsten  $\beta$ - und  $\gamma$ -strahlenden Radionuklide wie Pu-241, Cs-137 und Sr-90 bereits zerfallen sind. Die oxidierenden Spezies - im wesentlichen H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> und ClO<sup>-</sup> - können zur Oxidation der Brennstoffoberfläche und damit zur beschleunigten Auflösung führen. Die Abhängigkeit der  $\alpha$ -Dosis von Abbrand und Lagerzeit kann relativ genau vorhergesagt werden. Schwierig ist den Zusammenhang zwischen Dosis und oxidativer Brennstoffauflösung quantitativ zu begründen. Mangels detaillierter Kenntnis werden zwei Konzepte zur Abschätzung des Beitrags der  $\alpha$ -Radiolyse für die Langzeitstabilität des abgebrannten Brennstoffs vorgeschlagen. Das eine /SKB 92/ geht von der Proportionalität zwischen Dosis und Auflösung aus und gibt Obergrenzen für die Auslaugraten an. Das andere, realistischer erscheinende /JOH 94/, postuliert einen Dosiswellenwert, unterhalb dessen keine oxidative Auflösung mehr stattfindet. Korrosionsexperimente des FZK-INE mit abgebranntem Kernbrennstoff bestätigen die Rolle der  $\alpha$ -Radiolyse auch in hochkonzentrierten Salzlösungen.

Die Bedeutung der Radiolyse für die Langzeitstabilität der UO<sub>2</sub>-Matrix des Brennstoffs wird aus der vergleichenden Gegenüberstellung in Tabelle 8-3 deutlich. Wird unterstellt, daß die Randbedingungen der Laborversuche mit den Bedingungen im Endlager über lange Zeiten vergleichbar sind, so ergeben sich bis zur vollständigen Auflösung des Brennstoffs Zeiträume von 10.000 bis 30.000 Jahren. Nimmt man jedoch an, daß die heutigen experimentellen Ergebnisse durch Radiolyse beeinflusst wurden, so kann man aus der Abnahme der Radiolyse mit der Zeit auf deutlich längere Lebenszeiten des Brennstoffs schließen. Dies wird auch aus dem Vergleich der Ergebnisse der schwedischen /SKB 92/ und der deutschen Sicherheitsanalysen deutlich. Dabei ist die Lebenszeit in Salz wesentlich kürzer als in Granit, insbesondere weil in der schwedischen Studie die Abnahme der Radiolyse mit der Zeit berücksichtigt wird. Es bleibt jedoch noch zu untersuchen, ob eine Extrapolation auf derartig kleine Korrosionsraten den Kriterien der Konservativität einer Sicherheitsanalyse genügt. Die Lebenszeit des Brennstoffs von 600 Jahren in Salz resultiert aus ersten orientierenden Versuchen zur Brennstoffkorrosion in Salzlösungen und erscheint aus heutiger Sicht sehr konservativ.

Bedingung		Raten	Lebenszeit
anoxisch/ oxidierend	Experiment Salz, Granit	$10^{-4}/a$	10 000 a
reduzierend	Experiment Salz, Granit	$3 \cdot 10^{-5}/a$	30 000 a
abnehmende Radiolyse	extrapoliert	500 a: $7 \cdot 10^6/a$ $10^5$ a: $3 \cdot 10^8/a$	3% nach $10^5$ a
reduzierend	Nat. Analog Cigar Lake	$10^{-7}/a$	10 Mio a
Globales Modell Salz	GSF93	konstant	600 a
Globales Granit Modell	SKB91	Radiolyse abhängig	2-11 Mio a

anoxisch: sauerstofffrei

**Tabelle 8-3: Brennstoffmatrixkorrosionsraten und geschätzte Zeiten bis zur vollständigen Auflösung des Brennstoffinventars eines Gebindes**

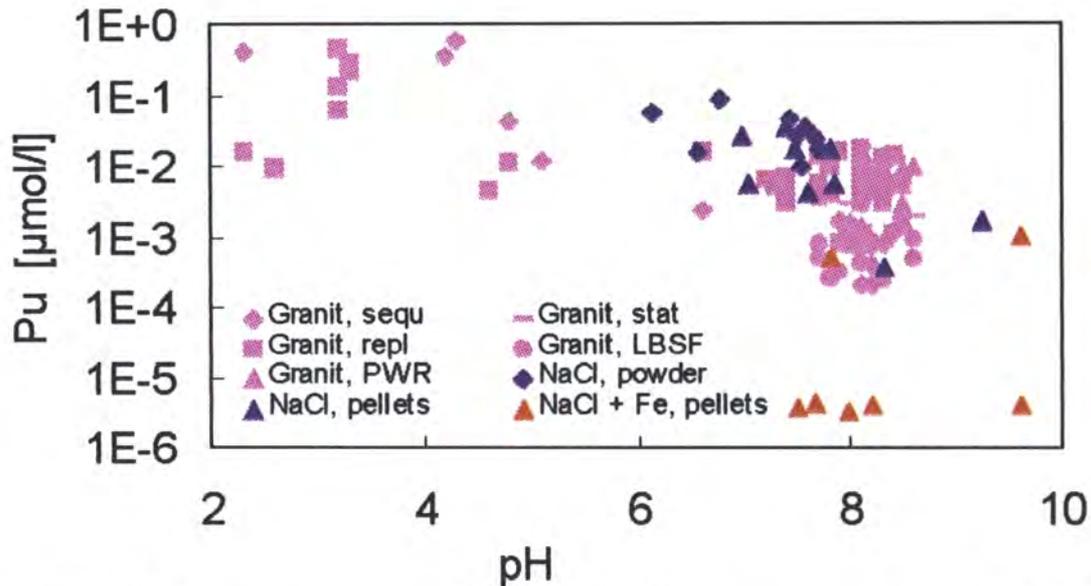
#### 8.3.2.3.4 Rückhaltung durch Bildung U- bzw. Pu-haltiger Phasenumwandlungsprodukte

Die Freisetzung von Uran und anderer schwer löslicher RN aus dem Brennstoff hängt entscheidend vom Chemismus der Grundwässer und somit vom geochemischen Milieu der geologischen Formation ab. Diese Aussage steht nur scheinbar im Widerspruch zur oben festgestellten Unempfindlichkeit der Strontiumauslaugung gegenüber dem geologischen Milieu. Diese ist ebenso wie die Auslaugung vieler leicht löslicher RN durch die Auflösung der primären Brennstoffmatrix kontrolliert, die Auslaugung der schwer löslichen Elemente aber durch die Löslichkeit von sekundären Phasen. Die thermodynamische Löslichkeit von RN und die Art der zugehörigen festen Niederschläge (Mineralisationsprodukte) wird sehr stark von den lokalen geochemischen Bedingungen beeinflusst. So wird die Löslichkeit von Uran, Plutonium, Neptunium und Americium in Gegenwart von gelöster Kohlensäure deutlich erhöht, während Phosphat und zum Teil auch Kieselsäure durch Bildung von schwer löslichen Phosphat- und Silikatphasen zu einer Verringerung der Auslaugung führen.

Bei Kontakt von abgebranntem Brennstoff mit begrenzten Volumina an wäßrigen Medien (Salzlaugen, Granitgrundwässer) bleibt die Konzentration an aufgelöstem Uran bereits nach kurzer Zeit (Tage bis Wochen) konstant und nimmt auch nach beliebig langer Reaktionszeit nicht weiter zu. Ursache dafür ist die Bildung neuer uranhaltiger Phasen als Umwandlungsprodukte des sich auflösenden Brennstoffs. Die Löslichkeit (Stabilität) dieser neuen Phasen bestimmt die Urankonzentration im Wasser. Die Sekundärphasen in Grundwässern aus granitischen Formationen unterscheiden sich von denen in Salzlaugen.

Meist bilden sich unter oxidierenden Bedingungen zuerst Uranyloxidhydrate wie Schöpit /STR 85/, Bequerellit oder Na-Polyuranate. In Granitgrundwasser dominieren Schöpit bzw. bei genügend hohen Calciumkonzentrationen Bequerellit, in NaCl-Lösungen hingegen Na-Polyuranate /DIA 95/. In silikatreichen granitischen Wässern können sich darüber hinaus Uranylsilikate wie Soddyit und Uranophan /WIL 89/ bilden, in phosphatreichen Wässern entsprechende Uranylphosphate. Unter reduzierenden Bedingungen bilden sich in beiden geologischen Formationen U(IV)-Hydroxide, wobei in Granit aber noch die Koffinitisierung (Bildung von U(IV)-Silikaten) betrachtet werden muß. Karbonatreiche Wässer zeigen generell die höchsten Urankonzentrationen.

Andere schwer lösliche RN wie Plutonium und die anderen Aktiniden verhalten sich ähnlich. Bei Auslaugversuchen mit granitischen Wässern und natriumreichen salinaren Wässern im pH-Bereich 7 bis 9 sind schon klare Löslichkeitseffekte zu beobachten. Die Konzentration der RN in Lösung ist deutlich kleiner, als man es aufgrund des Fortschrittes der Auflösung der Brennstoffmatrix erwarten würde. Typische Plutoniumkonzentrationen sowohl in granitischen als auch salinaren Auslauglösungen liegen im Bereich von  $10^{-7}$ - $10^{-9}$  Mol pro Liter (Bild 8-10) und nehmen mit der Zeit nicht weiter zu. Anders sieht es in magnesiumreichen salinaren Wässern aus. Hier bleibt der pH-Wert im Bereich 4 bis 7. Unter diesen Bedingungen ist die Löslichkeit von Plutonium (Bild 8-10), sowie von Americium und Neptunium so weit erhöht, daß diese Elemente über längere Zeit mit der gleichen Geschwindigkeit aus dem Brennstoff herausgelöst werden wie Sr-90. Das bedeutet, daß die Freisetzung dieser Elemente in diesem Zeitraum durch die Auflösung der Brennstoffmatrix bestimmt ist und nicht mehr durch ihre Löslichkeiten.



sequ: sequentiell

repl: Lösungstausch

stat: statisch

Fe: Gegenwart von Eisen

LBSF: LWR-Brennstoff mit extrem niedrigem Abbrand

**Bild 8-10: Pu-Freisetzung in Granitwasser und NaCl-reiche Salzlauge**

Ähnlich wichtig wie bei Uran sind die Redoxbedingungen auch für die Löslichkeit und damit die Rückhaltung vieler anderer radiotoxischer Elemente. Insbesondere wird die Löslichkeit der langlebigen Nuklide Np-237, Pu-239 und Tc-99 unter reduzierenden Bedingungen um viele Größenordnungen gesenkt.

Durch die Behälterkorrosion stellt sich ein reduzierendes geochemisches Milieu ein, das von Vorteil für die Brennstoffstabilität ist. Durch Reduktion der Wertigkeit wichtiger Radionuklide an der Oberfläche des korrodierenden Behälters kann deren Konzentration in Lösung durch Ausfäll- und Sorptionsprozesse um viele Größenordnungen gesenkt werden. Insbesondere das Korrosionsprodukt Magnetit (vgl. Kap. 8.3.1) hat eine hohe Sorptionsfähigkeit für Radionuklide. Auslaugversuche an Brennstoff in Gegenwart von Eisen haben diese vorteilhafte chemische Barrierenwirkung des Behälters bestätigt. Bild 8-10 zeigt beispielsweise, daß Pu-Konzentrationen in Salzlauge durch die Gegenwart von Eisen um Größenordnungen reduziert werden.

In der Natur wie auch bei der Korrosion von Abfallprodukten bilden sich selten reine Phasen. Es liegen deutliche Hinweise dafür vor, daß Americium und vielleicht auch Neptunium in die uranhaltige Phase eingebaut werden können und sich somit eine Mischphase bildet. Die Bildung von Mischphasen kann zu einer deutlich kleineren Löslichkeit von Americium führen /QUI 95/.

### 8.3.2.2.5 Weitere Einflüsse auf Brennstoffkorrosion und Freisetzung von RN

#### **Fließrate und Volumen der zutretenden Lösung**

Die in einem gegebenen Zeitintervall auslaugbare Menge an Sr-90 und damit die Korrosion der Brennstoffmatrix scheinen nicht davon abhängig zu sein, wie oft die Auslauglösung gewechselt wird /FOR 86/. Somit scheint eine weitgehende Unabhängigkeit von der Fließgeschwindigkeit der Lösung zu bestehen. Dies würde bedeuten, daß das Auslaugverhalten der Brennstoffmatrix unabhängig von der Kenntnis der hydrogeologischen Eigenschaften der Granit- bzw. Salzformation bewertet werden könnte. Allerdings gilt dieser Zusammenhang wahrscheinlich nur bei relativ großem Lösungsvolumen, da der Radiolyseeinfluß volumenabhängig ist. Ist das Verhältnis des Volumens der kontaktierenden Lösung und der Brennstoffoberfläche kleiner als 100 µm, so lösen nicht mehr alle emittierten  $\alpha$ -Partikel Radiolyseeffekte aus. Dann ist zu erwarten, daß die Korrosionsraten kleiner werden. Dieser Fall ist zu erwarten, wenn kompaktierter Bentonit in direkten Kontakt mit dem Brennstoff kommt. In schwedischen Untersuchungen wurden experimentell unter solchen Bedingungen in der Tat kleinere Korrosionsraten gemessen.

Radionuklide, deren Konzentration in Lösung durch die thermodynamische Löslichkeit kontrolliert wird, werden in Granit proportional zum effektiven Diffusionsstrom durch die Bentonitbarriere mobilisiert (Kap. 8.4.3). In Salz ist die Freisetzung dieser RN dem insgesamt zutretenden Laugenvolumen proportional.

#### **Temperatur**

Die Freisetzung von Cäsium und Jod aus den Spalten und von Rißoberflächen der Brennstofftabletten ist weitgehend temperaturunabhängig. Der Temperatureinfluß auf die Geschwindigkeit der Matrixauflösung und auf das selektive Herauslösen von Radionukliden aus den Korngrenzen ist noch wenig verstanden. Generell wird ein relativ kleiner Temperatureffekt angenommen, aber es liegen widersprüchliche Literaturangaben vor. So wird für die Auslaugung von CANDU-Brennstoff in Granitwasser eine Erhöhung der Korrosionsrate um den Faktor 10 bis 20 bei Temperaturerhöhung von 25 auf 150°C beobachtet /JOH 88/, während in salinaren Lösungen im gleichen Temperaturbereich sogar eine Abnahme der Korrosion von hochabgebranntem LWR-Brennstoff beobachtet wurde /LOI 95 /.

#### **Effektive Brennstoffoberfläche und Porosität**

Die effektive Oberfläche von abgebranntem Brennstoff ist nicht genau bekannt. Es ist noch unklar, inwieweit Korngrenzenoberflächen hinzugerechnet werden müssen. Extremfälle der auslaugbaren Oberfläche stellen zum einen die äußere, geometrische Tablettenoberfläche, zum anderen die Gesamtheit aller vorliegenden Korn-

grenzen dar. Oft wird angenommen, daß die effektive Oberfläche 2 bis 3 mal größer als die geometrische ist. Unklar ist auch, wie sie sich im Lauf der Zeit entwickelt. Es ist nicht auszuschließen, daß ähnlich wie bei der trockenen Oxidation von abgebranntem Brennstoff zu  $U_3O_8$ , auch bei der oxidativen Auflösung der Brennstoff zu einem feinen Pulver zerfällt.

Der Einfluß der effektiven Oberfläche auf die Brennstoffauflösung ist noch nicht klar. Abschätzungen sind anhand der am Forschungszentrum Karlsruhe durchgeführten Experimente möglich, in denen untersucht wurde, welche Effekte auftreten können, wenn der Brennstoff vollständig zu Pulver zerfallen sollte. Dazu wurde feinst gemahlene Pulver von hochabgebranntem Brennstoff (Partikelgröße kleiner als die ursprüngliche Korngröße) in NaCl-Lösung zwei Jahre ausgelaugt. Die Auslaugrate war nur etwa um den Faktor 10 höher als die der Brennstofftabletten, obwohl die Oberfläche etwa 1.000 mal größer war /LOI 95/.

### **Abbrand**

Die Tatsache daß gleiche Auslaugraten für Strontium aus CANDU-, DWR- und SWR-Brennstoffen gemessen wurden, für Hochabbrand ebenso wie für Niedrigabbrand, bedeutet, daß die Höhe des Abbrands von untergeordneter Bedeutung für die Rate der Auflösung der Brennstoffmatrix ist. Wie bereits ausgeführt, gilt das natürlich nicht für die selektive Auflösung von Cäsium und Jod.

### **8.3.3 Bewertung des Endlagergebindes als geochemische Barriere**

Abschließend soll am Beispiel der RN Uran und Plutonium gezeigt werden, daß abgebrannter Brennstoff in einem dickwandigen Behälter aus Feinkornbaustahl seiner Aufgabe, die wichtigsten, die Radiotoxizität bestimmenden RN im Nahfeld eines Endlagers zurückzuhalten, gerecht werden kann. Anhand der Zahlen für ein Gesamtinventar von 10.000 Tonnen abgebrannten Brennstoffs (davon ~1 % Plutonium) in einem Endlager in Salz oder Granit soll die Barrierenwirkung des Brennstoffs erläutert werden. Bild 8-11 zeigt den Verlauf des Radiotoxizitätsindex des gesamten Plutonium- und Uraninventars im Endlager über hunderttausend Jahre. Der Radiotoxizitätsindex liegt für Plutonium bei  $10^{14}$ , für Uran bei  $10^{11}$ . Für Plutonium wird die Toxizität am Anfang durch das Isotop Pu-238, später durch das langlebige Pu-239 bestimmt. Die Abnahme der Toxizität des löslichen Plutoniums mit der Zeit ist durch den Zerfall des Pu-238, die Zunahme der Toxizität des gelösten Urans durch die Bildung von U-234 bedingt.

Zum Vergleich ist in Bild 8-11 der Radiotoxizitätsindex der Pu-Menge eingezeichnet, die bei der 500 Jahre nach Verschluss des Endlagers beginnenden Korrosion des Inventars eines einzigen POLLUX-Behälters freigesetzt werden würde. Dabei wurde eine im Labor gemessene Matrixkorrosionsrate von  $10^{-7}/d$  und eine unbegrenzte Löslichkeit von Pu im Auslaugmedium angenommen. Der Radiotoxizitätsindex erreicht in diesem Fall Werte von fast  $10^9$ .

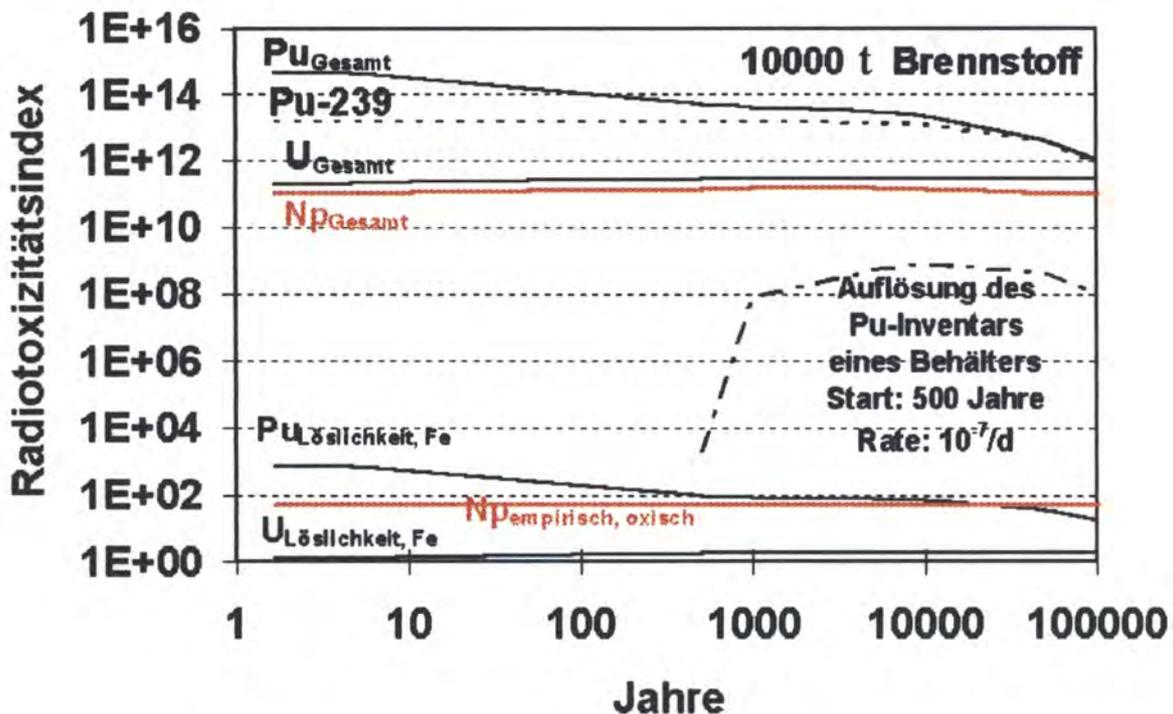


Bild 8-11: Radiotoxizitätsindizes des Gesamtinventars eines Endlagers (10.000 tSM) und der mobilisierbaren Anteile

Aufgrund der im Nahbereich ablaufenden geochemischen Reaktionen stellen diese Radiotoxizitätsindizes jedoch kein realistisches Maß für eine Gefährdung dar. Tatsächlich ist nämlich der weitaus größte Teil der etwa 100 Tonnen Plutonium unlöslich und steht somit auch nach Korrosion der Brennstoffmatrix für einen Transport in die Biosphäre und dort zur Aufnahme über die Nahrungskette nicht zur Verfügung. Lediglich das im Endlagernahfeld lösliche Plutonium ist potentiell für Mensch und Umwelt gefährlich, aber auch nur dann, wenn es alle Barrieren passiert und bis in die Biosphäre gelangt.

Die tatsächlich in den im Nahfeld vorliegenden wässrigen Lösungen mobilisierbare Menge an Plutonium und Uran ist das Produkt aus Sättigungskonzentrationen multipliziert mit dem Lösungsvolumen. Die Löslichkeitsgrenzen in NaCl-Lösungen und Hartgesteinswässern sind in Gegenwart von Stahlbehältern vergleichbar und ä-

ßerst niedrig, da sich durch Reduktion schwer lösliche Uran- und Plutoniumverbindungen bilden. Am Forschungszentrum Karlsruhe wurden in NaCl-Lösung Werte gemessen, die selbst unter Berücksichtigung von kolloidalen Anteilen bei  $10^{-9}$  Mol Pu/l und  $2 \times 10^{-7}$  Mol U/l liegen.

Der Radiotoxizitätsindex solcher mit Plutonium und Uran kontaminierter Wässer läßt sich durch das Verhältnis aus Lösungskonzentrationen und Grenzwerten, z.B. denen der Strahlenschutzverordnung, sowie dem Jahreswasserverbrauch eines Individuums (angenommen werden 800 l) errechnen. Für hochsalinare Lösungen ist auch ein so berechneter Index ein hypothetischer Wert, denn diese Lösungen wären allein wegen des hohen Salzgehaltes noch mindestens um einen Faktor 100 bis 1.000 zu verdünnen, um als Brauchwasser Verwendung zu finden. Den in Bild 8-11 eingezeichneten Kurven für den Verlauf der Radiotoxizitätsindizes der gelösten Anteile liegen bei Uran und Pu im Labor experimentell bestimmte Konzentrationen in Salzlösungen in Gegenwart von Eisen zugrunde. Die ebenfalls dargestellten Daten für Neptunium wurden ohne Fe-Zugabe im Labor bestimmt.

Die für die löslichen Uran- und Plutoniumanteile berechneten Werte des Radiotoxizitätsindex liegen nahe bei 1 bzw. unter 1.000. Schon allein durch Verdünnung auf trinkbare Salzkonzentration käme man in tolerable und ungefährliche Bereiche. Diese potentiell im Endlager-Nahfeld im unmittelbaren Kontakt zum Brennstoff entstehenden Wässer erfahren im Barrierensystem im Falle einer Ausbreitung in Richtung Biosphäre durch Transport- und Sorptionsprozesse eine weitere Verringerung der mobilen RN-Konzentration um Größenordnungen.

Der Vergleich der Radiotoxizität des Endlagerinventars mit den tatsächlich mobilisierbaren Uran- und Plutoniummengen zeigt folglich, daß allein schon durch Löslichkeitsgrenzen unmittelbar an der Grenzfläche zwischen Abfallbinde und Lösung eine Abnahme der Gefährlichkeit um etwa elf Größenordnungen erfolgt. Ähnliche Ergebnisse wie für Uran und Plutonium wurden auch für Neptunium und Americium gefunden. Allerdings ist die Übertragbarkeit der im Labor festgestellten Verhältnisse auf ein reales Endlager noch nicht nachgewiesen.

Aus Bild 8-11 wird auch deutlich, daß durch die Transmutation der langlebigen Radionuklide kein Sicherheitsgewinn zu erwarten wäre. Selbst wenn das Pu-Inventar durch Transmutation um einen Faktor 100 oder sogar 1.000 reduziert werden könnte, so bliebe doch aufgrund der Löslichkeitsgrenze die Menge an gelöstem Pu und damit die Gefährdung durch mobilisierbares Pu unverändert.

Abgebrannter Brennstoff in einem Stahlbehälter stellt eine wesentliche Barriere zur Rückhaltung der die Radiotoxizität des Inventars bestimmenden Nuklide dar. Der quantitative Nachweis der Barrierenwirkung des Brennstoffs für diese Nuklide basiert auf der genauen Analyse der Gesetzmäßigkeiten, die die Löslichkeit an der Grenzfläche Brennstoff/Lösung bestimmen. Für leicht lösliche Nuklide wie Jod-129 und Cäsium-135 stellt das Abfallgebäude hingegen keine ausreichende Barriere dar, so daß vor allem die leicht löslichen langlebigen RN zur Radiotoxizität von Korrosionslösungen beitragen. Für das weitere Verhalten und die Rückhaltung dieser Nuklide sind die geotechnischen und geologischen Barrieren im Endlager bestimmend. Als entscheidend wird die Begrenzung des Laugenzu- und -abflusses, Sorption an Bentonit oder Einbau in Mineralneubildungen und schließlich die Verdünnung entlang des Ausbreitungsweges vom Endlager-Nahfeld bis hin zur Biosphäre angesehen.

#### 8.4 Geotechnische Barriere

##### 8.4.1 Wechselwirkung von Granitgrundwasser mit Bentonit

Bentonit als eine natürlich vorkommende Mischung aus Smektit - einem quellfähigen Tonmineral, Quarz, Feldspat und anderen Mineralen und entstanden durch hydrothermale Verwitterung vulkanischer Gesteine bzw. verhindert als Füll- und Puffermaterial durch seine günstigen hydraulischen Eigenschaften, sein Sorptionsvermögen für Radionuklide, seine oft vorhandene reduzierende Kapazität (bis 0,3% Pyrit) und den Gehalt an organischem Kohlenstoff (0,4%) den Radionuklidtransport aus dem Nahfeld.

Ergänzend zu den Ausführungen zum Verhalten von Bentonit in Kap. 3.1.2 sei folgendes vermerkt. Im Kontakt mit dem Endlagergebäude ist der Bentonit etwa ab Einlagerungsbeginn Temperaturen um 100°C ausgesetzt und verliert einen Teil des Wassers aus den Zwischenschichten der Tonminerale. Bis ca. 105°C bleibt jedoch eine Wasserschicht erhalten. Diese Dehydratation ist reversibel, solange die Kationen-Austauschkapazität nicht durch Sättigung mit Kaliumionen begrenzt ist. Sättigung mit Kaliumionen ist ausgeschlossen, sofern das Grundwasser nur etwa 0,2 Mol/l an K-Ionen ist. Trocknungsrisse schließen sich bei Wasserzutritt sofort. Es gibt Hinweise darauf, daß der Bentonit in Gegenwart von Wasserdampf einen Teil seiner Schwellfähigkeit verliert. Dieser Effekt resultiert aus der Zementation durch amorphe siliziumreiche Phasen, ist aber auf räumlich sehr begrenzte Bereiche

beschränkt. Bei kompaktiertem Bentonit spielt dieser Prozeß wahrscheinlich keine Rolle.

Wichtig für die Langzeitstabilität von Bentonit sind die Bildung von Chlorit - diese kann bei den erwarteten Temperaturen und Magnesiumkonzentrationen des Grundwassers ausgeschlossen werden - und Illit, weil dadurch die Quelfähigkeit beeinträchtigt wird. Die Illitbildung aus Bentonit ist ein in der Natur häufig beobachteter Vorgang. Er hängt von Temperatur, Kaliumgehalt und Fließgeschwindigkeit des Grundwassers ab. Unabhängig vom geologischen Alter wandeln sich nie mehr als 80% in Illit um. Bei dem geringen Kalium-Gehalt granitischen Referenzgrundwassers und einer Referenzfließrate von  $3 \text{ m}^3/\text{Jahr}/\text{pro Gebinde}$  dauert es etwa 100 Mio. Jahre, bis die Umwandlung vollzogen ist. Nach /SKB 92/ würde Bentonit seine dichtenden Eigenschaften nicht verlieren, selbst wenn er über viele Tausende von Jahren Temperaturen um  $130^\circ\text{C}$  ausgesetzt wäre. Die gute Langzeitstabilität von Bentonit auch bei höheren Temperaturen wird beispielsweise durch 450 Mio. Jahre alten Bentonit in 500 m Tiefe auf der Insel Gotland belegt, der unverändert gute Eigenschaften aufwies, obwohl er mindestens für 10 Mio. Jahre Temperaturen von über  $110^\circ\text{C}$  ausgesetzt war (vgl. Kap. 3.1.2).

#### 8.4.2 Porenwasserchemie in Bentonit

Die im System Grundwasser, Bentonit und korrodierender Behälter ablaufenden Reaktionen bestimmen die Zusammensetzung des Porenwassers im Bentonit. Verlässliche Porenwasseranalysen von kompaktiertem Bentonit existieren kaum, weil es sehr schwer aus dem Bentonit extrahiert werden kann. Basierend auf empirischen Daten und Modellrechnungen zur mengenabhängigen Wechselwirkung von Bentonit mit dem Grundwasser werden verschiedene Porenwasserzusammensetzungen angegeben. Es gibt bis heute noch kein allgemein akzeptiertes geochemisches Modell, mit dem die Porenwasserchemie im Bentonit in allen Einzelheiten beschrieben werden könnte. Es scheint klar zu sein, daß die außergewöhnlich stark ausgeprägte Heterogenität des Bentonits eine thermodynamische Beschreibung der Aktivitäten und Aktivitätsverhältnisse der Ionen auf der Basis von Gleichgewichtseinstellungen mit stöchiometrischer Phasen unmöglich macht. Experimentell ist eindeutig belegt, daß es sich bei Smektitmineralen um nicht stöchiometrische Phasen handelt.

Grundsätzlich lassen sich zwei Modelltypen unterscheiden, die auch bei sehr heterogenen Phasen erfolgversprechend sind: Ionenaustauschmodelle, in denen die Natur des Substrats von sekundärer Bedeutung ist /WAN 86 /, /GRA 86/ und

Modelle, die auf einer Kombination von Mineralgleichgewichten und Mischphasenbildungen /FRI 89/ basieren. Im ersten Fall müssen Ionenaustauschkonstanten bekannt sein, im letzten die Gleichgewichtskonstanten der Endglieder der Smektitmischphase und der ebenfalls vorhandenen reinen Phasen.

Relativ wenig ist über den Einfluß des bei Behälterkorrosion aufgelösten zweiwertigen Eisens auf die Porenwasserchemie des Bentonits bekannt. Auf das sich bildende reduzierende geochemische Milieu wird weiter unten eingegangen. Es ist zu erwarten, daß sich eisenhaltige Tonminerale wie Nontronit oder aber auch Greenalit bilden /NAG 94/.

#### 8.4.3 Radionuklidtransport in Bentonit

Die Rückhaltung von Radionukliden im Bentonit hängt von der Bentonitschichtdicke, vom Diffusionskoeffizienten und von RN-spezifischen Größen ab. Bei Untersuchungen zur Verzögerung des Radionuklidtransports durch Bentonitschichten werden sogenannte Durchbruchzeiten ermittelt. Diese definieren den Zeitpunkt, bei dem der RN-Fluß durch den Bentonit einen konstanten Maximalwert erreicht hat. Zwischen effektiven Diffusionskoeffizienten und  $K_d$ -Werten wird ein in etwa reziproker Zusammenhang festgestellt. Die Durchbruchzeiten durch kompaktierten Bentonit sind in Bild 8-12 dargestellt.

Für ein Rechenbeispiel wurden ein konservativer elementunabhängiger Diffusionskoeffizient von  $0,01 \text{ m}^2/\text{a}$  und Gleichgewichtsverteilungskoeffizienten  $K_d$  verwendet /SKB 92/. Die  $K_d$ -Werte sind nur dann gültig, wenn das chemische Milieu identisch mit demjenigen ist, bei dem der experimentelle Wert gemessen wurde, und wenn der dominierende Anteil eines gegebenen RN im Grundwasser im thermodynamischen Sinne gelöst und nicht an Kolloide gebunden vorkommt. Diese Bedingung ist bei den drei- und vierwertigen Aktinidenelementen möglicherweise nicht erfüllt.

Um einen Massenfluß durch den Bentonit für eine gegebene RN-Konzentration zu erhalten, muß der jeweilige Zahlenwert mit der effektiven RN-Konzentration (in mg/l) multipliziert werden. Diese Konzentration kann durch Löslichkeiten begrenzt sein. Bei leicht löslichen RN kann sich ein stationärer Zustand einstellen, der durch die Forderung nach Gleichheit der Raten der Auslaugung aus den Abfallprodukten und der Flußrate durch den Bentonit gegeben ist. Die stationäre Lösungskonzentration des betreffenden RN wird dann solange steigen, bis der Massenfluß durch den

Bentonit gleich der Auslaugrate ist. Der sich nach Durchbruch einstellende stationäre Maximalwert des RN-Flusses ist in Bild 8-13 aufgetragen.

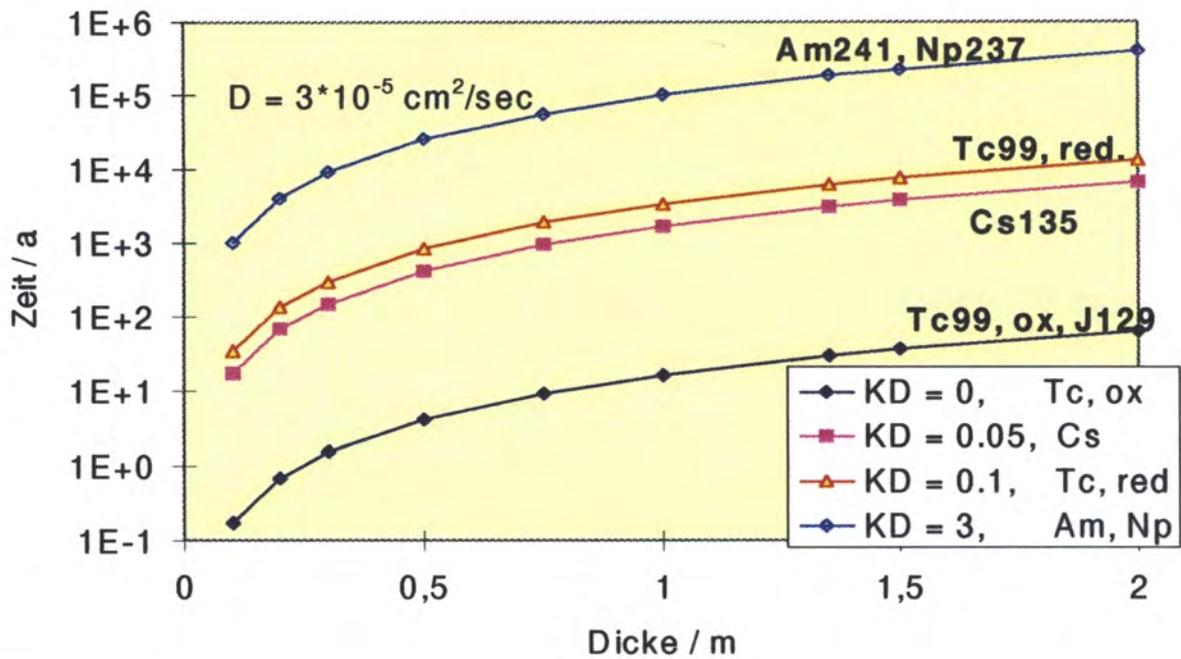


Bild 8-12: Durchbruchzeiten verschiedener Radionuklide als Funktion der Bentonitdicke

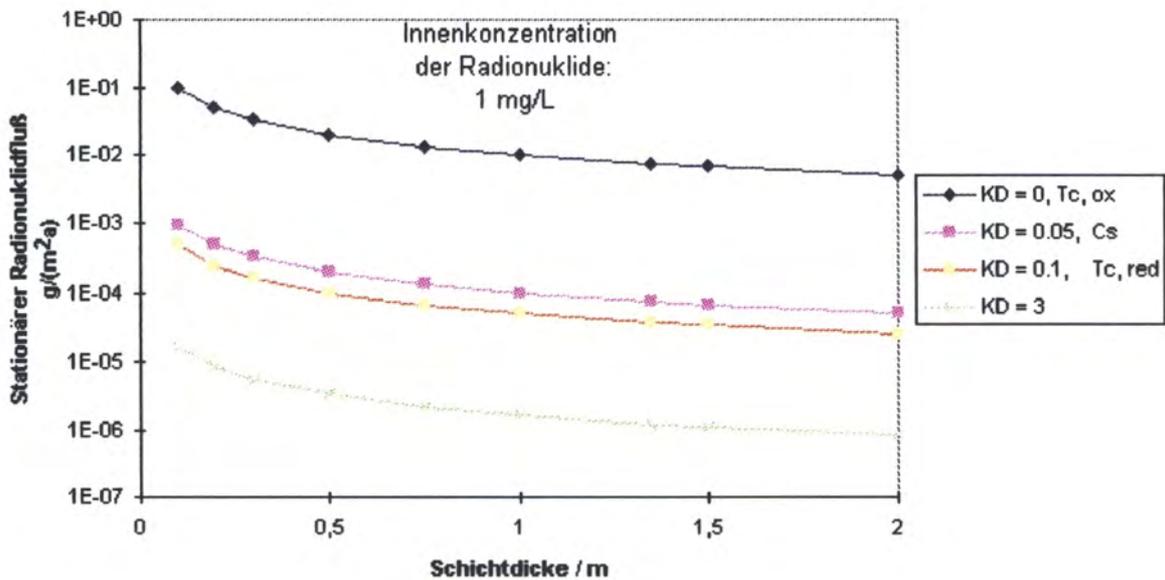


Bild 8-13: Lineare stationäre Flußraten verschiedener Radionuklide als Funktion der Bentonitdicke

## 8.5 Geologische Barriere

### 8.5.1 Radionuklidlöslichkeit in natürlichen aquatischen Systemen

Löslichkeitsgrenzen für sicherheitsrelevante RN, wie sie in verschiedenen Langzeitsicherheitsstudien Anwendung fanden, sind in Tabelle 8-4 aufgeführt. Diese Abschätzungen basieren auf einem oder mehreren Referenzgrundwässern, die als repräsentativ für das Aquifersystem des jeweiligen Endlagers angesehen werden. Die großen Spannbreiten der Werte (z.B. für Np zwischen  $2 \times 10^{-12}$  Mol/l /PNC 92/ und  $10^{-5}$  Mol/l (SAM /BUH 91/)) reflektieren weniger die unterschiedlichen geochemischen Bedingungen als eher den unterschiedlichen Grad an Konservativität. Die für die granitischen Wässer angegebenen Werte basieren auf thermodynamischen Daten von zugrunde gelegten festen Phasen der stabilen Oxidationsstufe unter Berücksichtigung von Hydrolyse- und Komplexbildungsreaktionen in der wässrigen Phase ohne Einbeziehung von Mitfällungsreaktionen und Kolloidbildung. Die in den Sicherheitsanalysen zu Gorleben (PSE /PSE 85/, PAGIS, SAM /BUH 91/) angenommenen Löslichkeitsdaten basieren auf Schätzungen und liegen um Größenordnungen höher als entsprechende Werte in granitischen Wässern.

	/NAG 94/		/PNC 92/	/TVO 92/	/SKB 92/	SAM
	realist.	konserv.	Oxid/Hydroxid			
Ra	$10^{-10}$	$10^{-10}$	-/-	$10^{-4}$	$10^{-6}$	hoch
Th	$5 \cdot 10^{-9}$	$10^{-7}$	$3 \cdot 10^{-10}/5 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-10}$	$2 \cdot 10^{-10}$	
Pa	$10^{-10}$	$10^{-7}$	-	$10^{-5}$	$4 \cdot 10^{-7}$	$10^{-5}$
U	$10^{-7}$	$7 \cdot 10^{-5}$	$4 \cdot 10^{-10}/4 \cdot 10^{-5}$	$3 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-7}$	$10^{-4}$
Np	$10^{-10}$	$10^{-8}$	$2 \cdot 10^{-12}/6 \cdot 10^{-9}$	$2 \cdot 10^{-9}$	$2 \cdot 10^{-9}$	$10^{-5}$
Pu	$10^{-8}$	$10^{-6}$	$3 \cdot 10^{-11}/3 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-8}$	$10^{-5}$
Am	$10^{-5}$	$10^{-5}$	$-/6 \cdot 10^{-8}$	$2 \cdot 10^{-9}$	$2 \cdot 10^{-8}$	$10^{-5}$
Cm	$6 \cdot 10^{-8}$	$10^{-5}$	-	-	-	$10^{-5}$
Ni	hoch	hoch		$10^{-3}$	$10^{-4}$	$10^{-2}$
Se	$10^{-8}$	$6 \cdot 10^{-7}$	$8 \cdot 10^{-7}/8 \cdot 10^{-7}$	$4 \cdot 10^{-6}$	$10^{-9}$	$10^{-4}$
Zr	$5 \cdot 10^{-9}$	$5 \cdot 10^{-7}$	$-/3 \cdot 10^{-8}$	$10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-11}$	-
Tc	$10^{-3}$	hoch	$10^{-12}/4 \cdot 10^{-8}$	$3 \cdot 10^{-8}$	$2 \cdot 10^{-8}$	$10^{-4}$
Pd	$<10^{-11}$	$10^{-6}$	$10^{-9}/4 \cdot 10^{-6}$	$10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-6}$	$10^{-2}$
Sn	$10^{-5}$	$10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-8}/-$	$3 \cdot 10^{-8}$	$3 \cdot 10^{-8}$	hoch

**Tabelle 8-4: Abgeschätzte Löslichkeiten (Mol/l) ausgewählter Radionuklide in Referenzgrundwässern /MCK 93, BUH 91/**

Es muß nochmals betont werden, daß diese Werte im einzelnen nicht als konservativ betrachtet werden dürfen, sondern daß belastbare Daten nur unter Berücksichtigung der komplexen geochemischen Reaktionen abgeschätzt werden können. Im folgenden werden daher Redoxreaktionen, Hydrolyse, Komplexbildung, Kolloidbildung und Sorption für die einzelnen RN unter den jeweiligen Grundwasserbedin-

gungen einander gegenübergestellt und teilweise quantifiziert. Dabei konzentriert sich die Diskussion auf die unter dem Gesichtspunkt der Radiotoxizität und Langlebigkeit der RN relevanten Transuranelemente und auf das langlebige redoxensitive Spaltprodukt Technetium.

### 8.5.2 Redoxreaktionen

Die für ein RN unter gegebenen Grundwasserbedingungen thermodynamisch stabilste Oxidationsstufe läßt sich anhand der Redoxpotentiale und der Hydrolyse- und Komplexierungskonstanten prognostizieren. Unter Vernachlässigung von Komplexierungsreaktionen lassen sich Stabilitätsbereiche für die verschiedenen Radionuklidspezies in einem Eh-pH-Diagramm festlegen und durch Vergleich mit den entsprechenden Grundwasserdaten (vgl. Bild 8-4) die dominierende Spezies bestimmen. Die folgenden drei Abbildungen sind Eh-pH-Diagramme für die redoxsensitiven Radionuklide Np, Pu und Tc. Ihnen ist nur ein erster Anhaltspunkt für die vorliegende Gleichgewichtsspezies zu entnehmen, da Komplexierungsreaktionen, kinetische Effekte und Oberflächeneffekte der Redoxreaktionen sowie die Bildung von kolloidalen Spezies nicht berücksichtigt sind.

Gemäß Bild 8-14 liegt Neptunium unter neutralen pH-Bedingungen für  $E_h > 100$  mV pentavalent als  $\text{NpO}_2^+$  vor, während bei niedrigeren Redoxpotentialen schwerlösliches  $\text{Np}(\text{OH})_4$  stabil ist. Aufgrund der stärkeren Komplexierungstendenz der tetra- als der pentavalenten Stufe sollte sich diese Grenze bei Anwesenheit von Komplexbildnern zu höheren Potentialwerten verschieben. Für die stärker reduzierenden granitischen Grundwässer ist somit von  $\text{Np}(\text{IV})$  auszugehen, während in den Gorleben-Grundwässer je nach Redoxpotential auch  $\text{Np}(\text{V})$  stabil sein kann. Für diese Systeme kann also nur eine genauere Untersuchung der Speziation in dem jeweiligen Grundwasser Aufschluß über die Mobilität und Rückhaltung von Np geben.

Für die Speziation von Plutonium gelten ähnliche Überlegungen wie für Neptunium. Wie aus Bild 8-15 zu entnehmen ist, liegt die Grenzlinie zwischen  $\text{PuO}_2^+$  und dem schwerlöslichen  $\text{Pu}(\text{OH})_4$  bei 400 mV, so daß unter den Bedingungen des Gorleben-Aquifers  $\text{Pu}(\text{IV})$  stabil sein sollte. Unter mehr sauren Bedingungen bzw. stärker reduzierenden Bedingungen, wie sie in den granitischen Grundwässern vorliegen, können auch  $\text{Pu}^{3+}$  bzw. dessen Hydrolyseprodukte stabil sein. Unter oxidierenden Bedingungen, wie sie in stark salinen Wässern unter dem Einfluß der  $\alpha$ -Radiolyse mit Potentialen bis zu 1.100 mV auftreten können, liegt Pu schließlich in der penta- bzw. hexavalenten Oxidationsstufe vor. Für die Geochemie des Pu in endlagerrele-

vanten Wässern sind somit die Oxidationsstufen III, IV, V und VI in Betracht zu ziehen. Erschwerend kommt hinzu, daß die geochemisch relevanten Reaktionen für Pu, insbesondere in der tetravalenten Form, weit weniger gut bekannt sind als für die anderen Aktiniden.

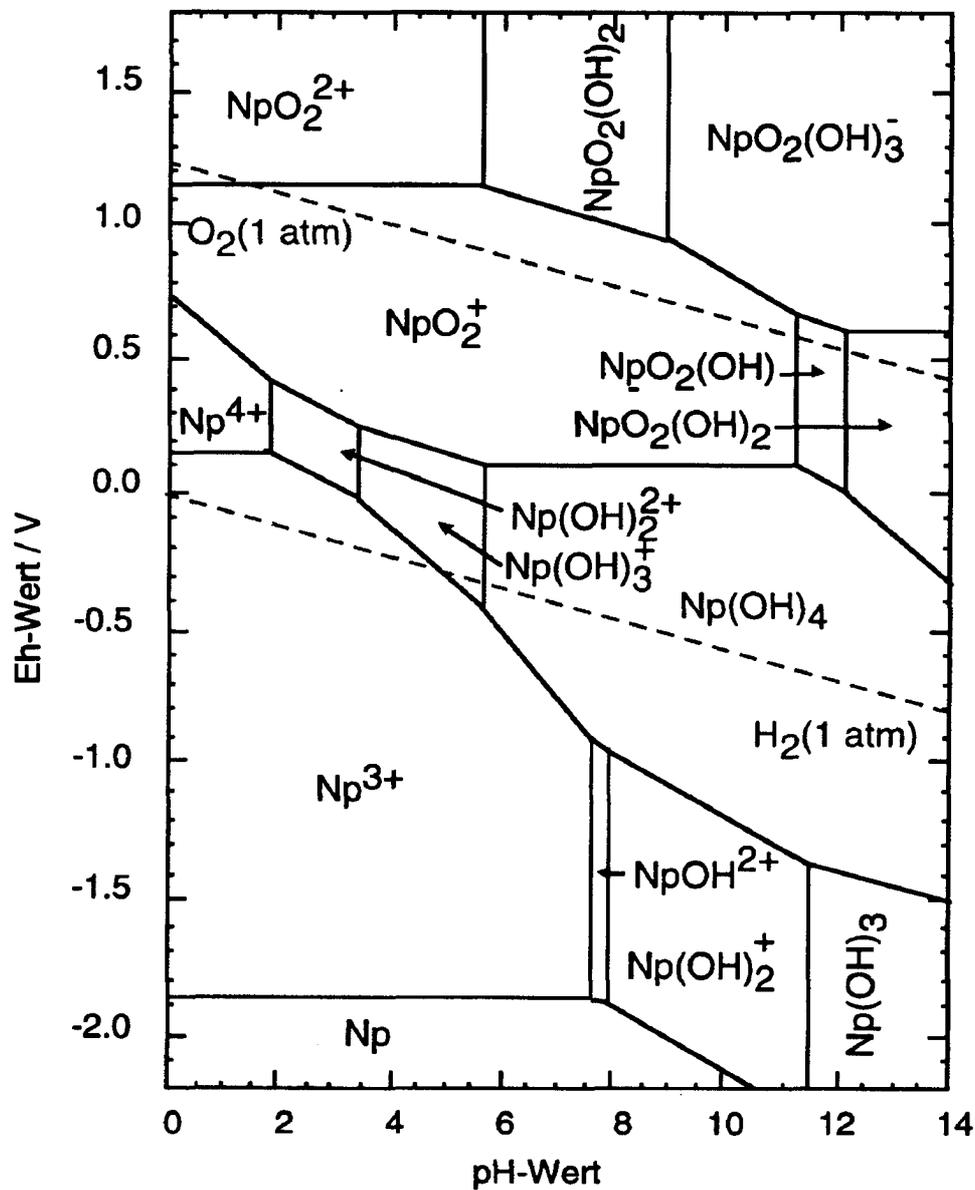
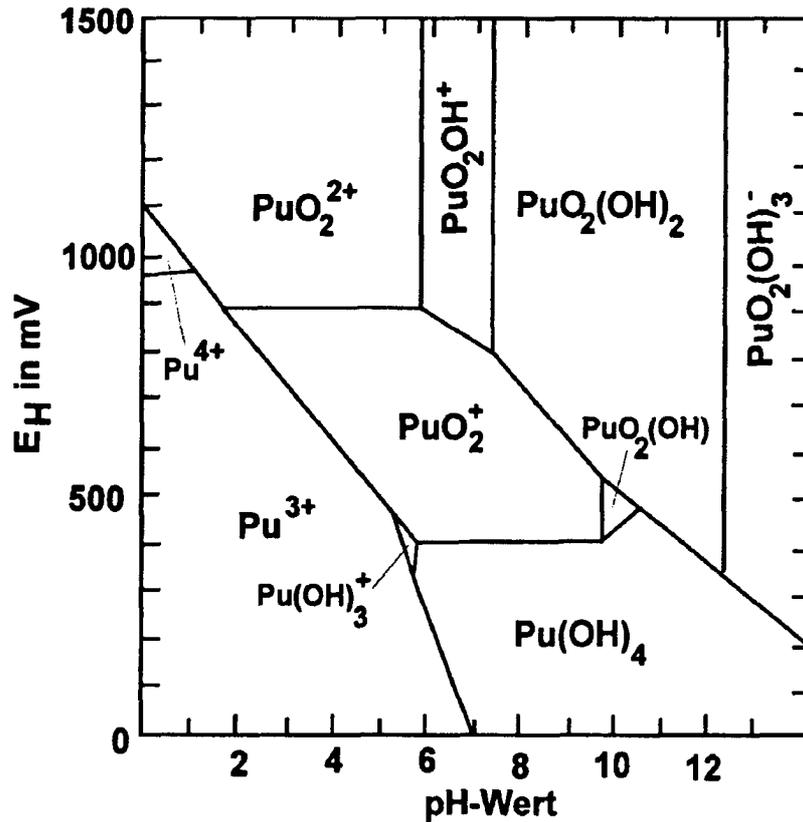
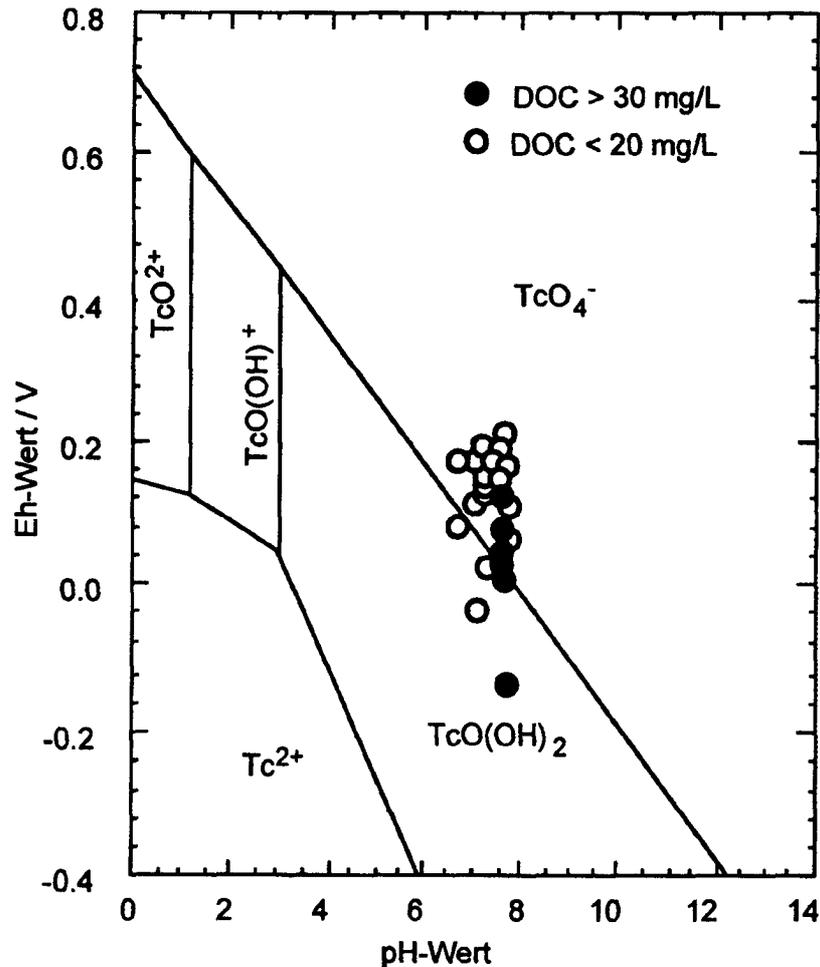


Bild 8-14: Eh-pH-Diagramm von Neptunium



**Bild 8-15:** Eh-pH-Diagramm von Plutonium

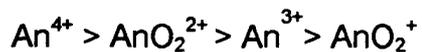
In Bild 8-16 schließlich ist das Eh-pH-Diagramm für Tc gezeigt. Hier sind die grundwasserrelevanten Oxidationsstufen Tc(VII) in der Form des  $\text{TcO}_4^-$ -Anions und Tc(IV) als schwerlösliches  $\text{TcO}(\text{OH})_2$ . Eingezeichnet sind Labormesswerte für ausgewählte Gorleben-Grundwasser-Sedimentsysteme /KIM 95/. Diese Wässer liegen nahe der Stabilitätsgrenze Tc(VII)/Tc(IV) und in der Tat werden für diese System teils sehr kleine, teils sehr hohe Sorptionswerte gemessen (vgl. Kap. 8.5.5). In den granitischen Wässern sollte Tc, von stark alkalischen Bedingungen abgesehen, einheitlich in der tetravalenten Form vorliegen.



**Bild 8-16: Eh-pH-Diagramm von Technetium /KIM 95/**

### 8.5.3 Hydrolyse- und Komplexierungsreaktionen

Die Hydrolyse ist die primäre, allen polyvalenten Metallionen gemeinsame Reaktion in einem natürlichen aquatischen System. Experimentell wird eine steigende Tendenz zur Hydrolyse der Aktinidionen mit der effektiven Ladung /CHO 83/ in der Reihenfolge



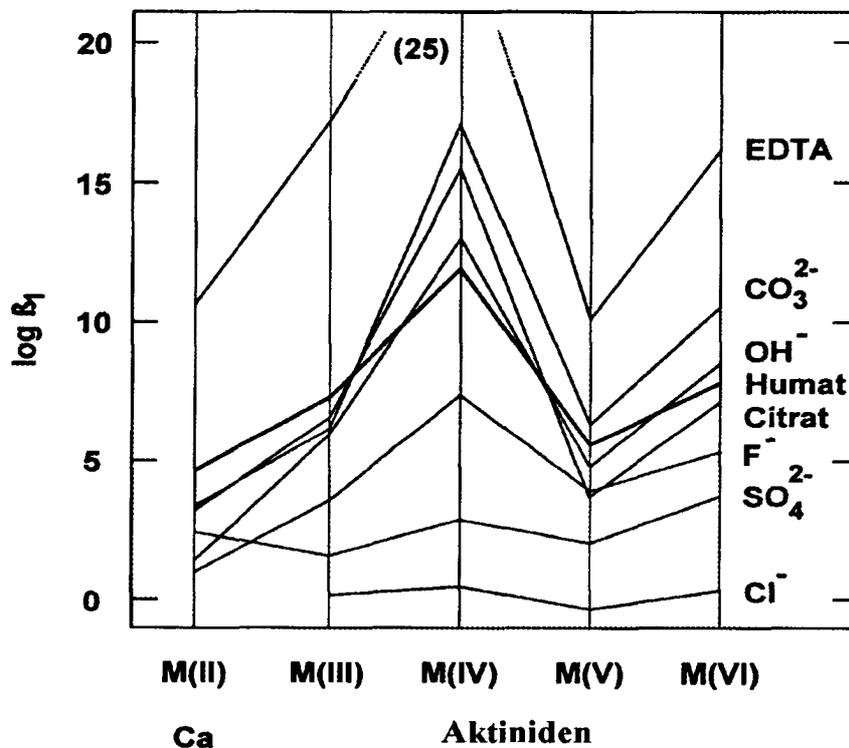
gefunden. Die Stabilität der Aktiniden in aquatischer Lösung zeigt genau die entgegengesetzte Tendenz, so daß unter bestimmten Bedingungen An(V) am stabilsten ist. Die Neigung zur Bildung von Kolloiden ist wiederum parallel zur Hydrolysetendenz, so daß die Tendenz zur Stabilisierung der Transuranionen als Aquoionen durch die Stabilisierung als Kolloide kompensiert werden kann. Die primären Hydro-

lyseprodukte der Transuranionen sind in wäßriger Lösung instabil und tendieren zu einer weiteren Wechselwirkung mit OH-Bindungen verfügbarer Oberflächen.

Unter natürlichen Verhältnissen konkurriert die Hydrolyse mit der Komplexbildung. Jedes natürliche Wasser, insbesondere jedes Grundwasser, enthält in beträchtlichen Mengen komplexierende Anionen wie Carbonat, Chlorid, Sulfat, Phosphat und andere Ionen /STU 81/. Die Komplexbildungsstärke der Anionen für Transuranionen steigt in der Reihenfolge

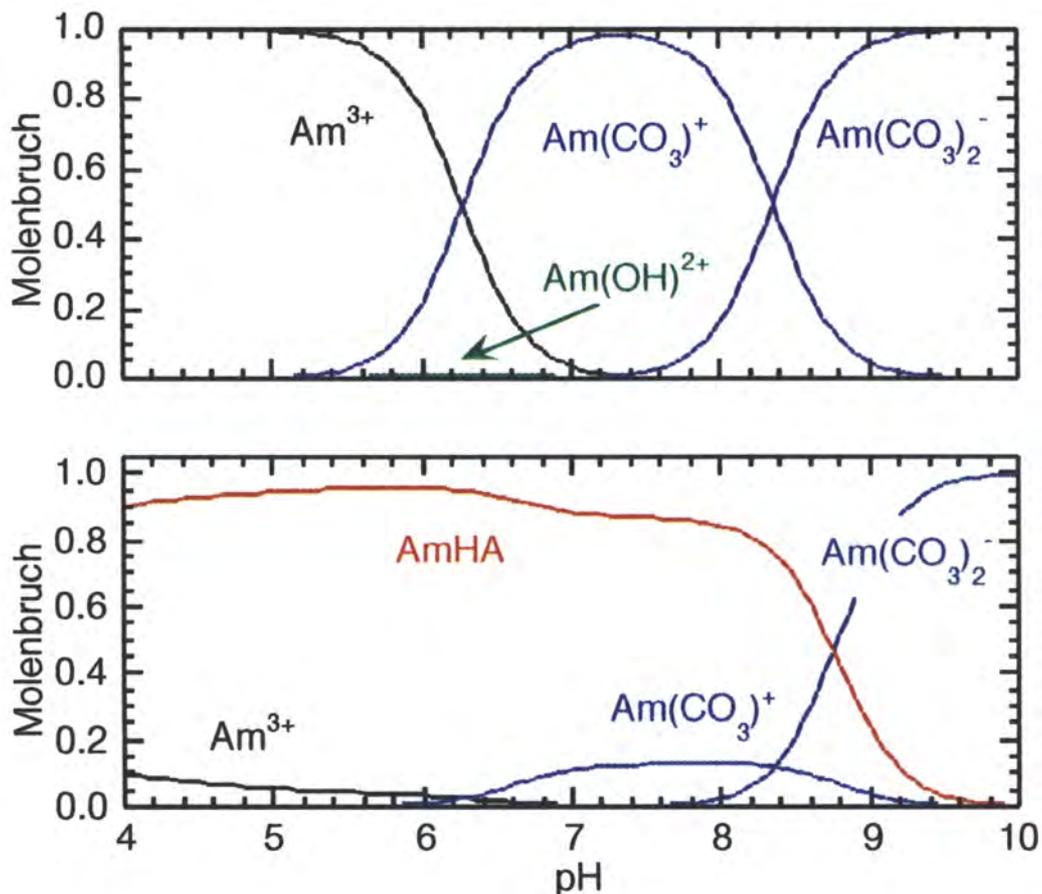


Die ersten Komplexbildungskonstanten der Transuranionen in den verschiedenen Oxidationsstufen sind in Bild 8-17 für eine Reihe relevanter Anionen aufgetragen /KIM 86/. Die Komplexbildungskonstanten zeigen dieselbe Abhängigkeit von der Oxidationsstufe wie sie auch für die Hydrolyse beobachtet wird. Somit können die Transuranionen neben der Destabilisierung durch die Hydrolyse und Stabilisierung durch die Kolloidbildung eine weitere Stabilisierung durch Komplexbildung erfahren. Dies gilt insbesondere für die Reaktion mit den stark komplexierenden Liganden  $\text{CO}_3^{2-}$  und Humat/Fulvat.



**Bild 8-17:** Primäre Komplexbildungskonstanten ( $\beta_1$ ) der Aktiniden in den Oxidationsstufen III, IV, V, und VI für verschiedene Liganden /KIM 86/

Wie in den Bildern 8-4 und 8-5 gezeigt, liegen pH-Werte und Bicarbonat-Konzentrationen in den granitischen und Gorleben-Grundwässern in vergleichbarer Größenordnung. Somit sollten Hydrolyse und Carbonat-Komplexierung vergleichbaren Einfluß auf die Radionuklidspeziation haben, solange von der gleichen Oxidationsstufe ausgegangen werden kann. Hingegen kann der teilweise hohe Huminstoffanteil in den Gorleben-Wässern zu einer drastisch geänderten Speziation gegenüber den nur schwach mit Huminstoff beladenen Granitwässern führen. Dies ist am Beispiel der Am(III)-Speziation in Abhängigkeit vom pH-Wert für ein typisches Gorleben-Wasser und ein Granit-Referenzwasser in Bild 8-18 gezeigt.



**Bild 8-18:** Speziation von Am(III) in einem huminstoffhaltigen Gorleben-Grundwasser (unten) und einem Granit-Referenzwasser (oben)

#### 8.5.4 Kolloideinfluß

Aquatische Kolloide sind allgegenwärtig in natürlichen Wässern. Chemische Zusammensetzung, Struktur und Teilchengröße natürlicher Kolloide variieren stark mit

der geochemischen Natur des Aquifersystems /KIM 91/. Die Konzentration liegt je nach Herkunft zwischen  $10^8$  und  $10^{17}$  Teilchen pro Liter /KIM 90/.

Die Bildung von Pseudokolloiden durch Sorption von Transuranionen auf natürlichen Kolloiden kann zu Löslichkeiten der Radionuklide führen, die weit oberhalb oder unterhalb der thermodynamischen Gleichgewichtskonzentration liegen. Dies ist in Bild 8-19a am Beispiel zweier Grundwässer aus dem Raum Gorleben demonstriert, für welche die Gleichgewichtslöslichkeiten von festem  $^{241}\text{Am(III)-Hydroxid}$  nach Ultrafiltration mit Porenweiten zwischen 1 und 450 nm dargestellt sind. Für das nichtsaline Wasser Gohy-1061 nimmt die Am-Konzentration im Filtrat kontinuierlich um nahezu vier Größenordnungen ab, was eine fast ausschließliche Bindung des Am an die Grundwasserkolloide bedeutet. Im stark salinen Grundwasser Gohy-2122 (2,5 Mol NaCl) wird hingegen die Bildung von Grundwasserkolloiden mit Teilchen  $> 5$  nm weitgehend unterdrückt, so daß die Am-Konzentration nahezu unabhängig von der verwendeten Filterporenweite ist. Dieses Beispiel zeigt, daß in einem kolloidreichen Wasser die Löslichkeit der Aktinidionen keine wohldefinierte Größe ist. Für die Mobilität der Radionuklide ist dabei entscheidend, welche Kolloidteilchen durch Filtration in der Geomatrix zurückgehalten werden.

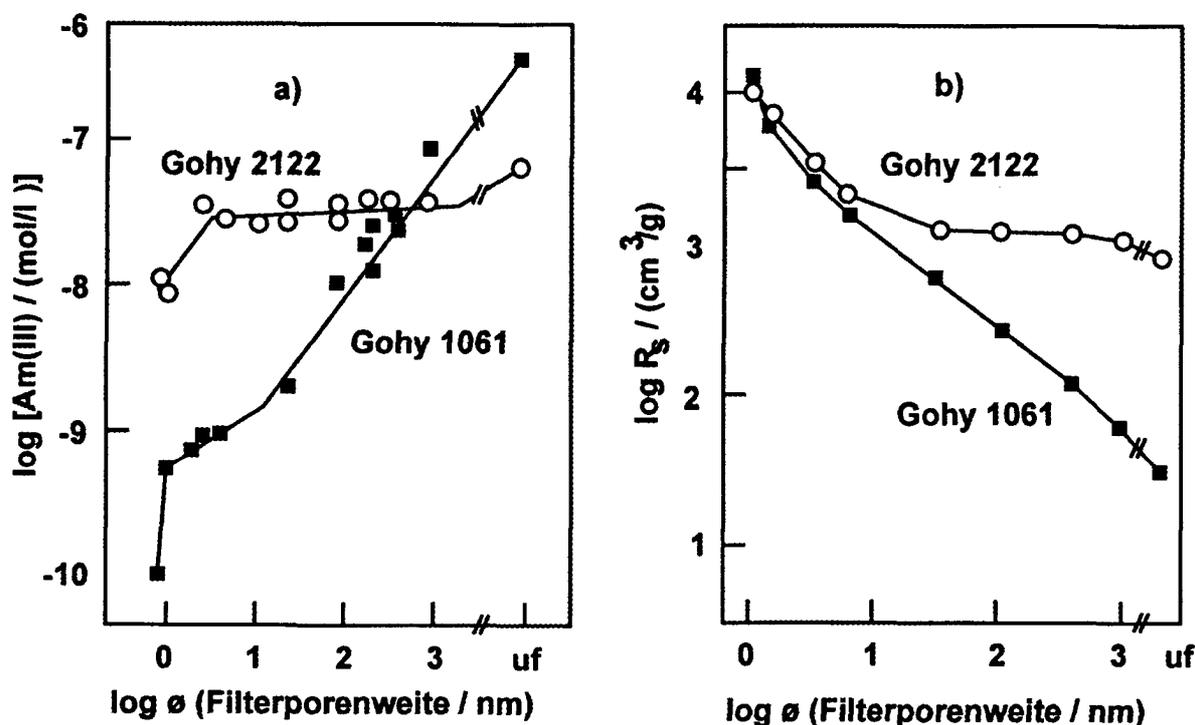


Bild 8-19: a) Löslichkeit von Am(III)-Hydroxid und b) Sorptionskoeffizienten  $R_s$  von  $\text{Cm}^{3+}$  in einem nichtsalinen (Gohy-1061) und einem stark salinen (Gohy-2122) Grundwasser in Abhängigkeit von der Filterporenweite (uf: unfiltriert) /KIM 86/

Im Deckgebirge von Gorleben muß aufgrund der hohen Huminstoffkonzentrationen den Kolloiden ein großer Einfluß auf die Mobilität der polyvalenten Metallionen eingeräumt werden. In den granitischen Wässern wird im allgemeinen aufgrund der geringen gefundenen Konzentrationen an natürlichen Kolloiden ein Einfluß auf die Radionuklidmobilität verneint. Allerdings werden dabei kleine Kolloide mit Durchmessern  $< 100$  nm, die meßtechnisch sehr schwer zu erfassen sind, meist nicht berücksichtigt. Ungeklärt ist auch der Einfluß des Bentonits auf die Radionuklidmigration im Endlagerfernfeld. Durch den Bentonit werden zwar bei der Brennstoffauflösung gebildete Kolloide wirksam filtriert, durch Erosion des Bentonits im Kontaktbereich mit dem granitischen Aquifer können sich aber Bentonit-Kolloide bilden, die als Transportvehikel für Radionuklide fungieren können. Die Frage, welche Rolle die Kolloide als Transportträger für die Radionuklide spielen, ist damit noch weitgehend ungeklärt.

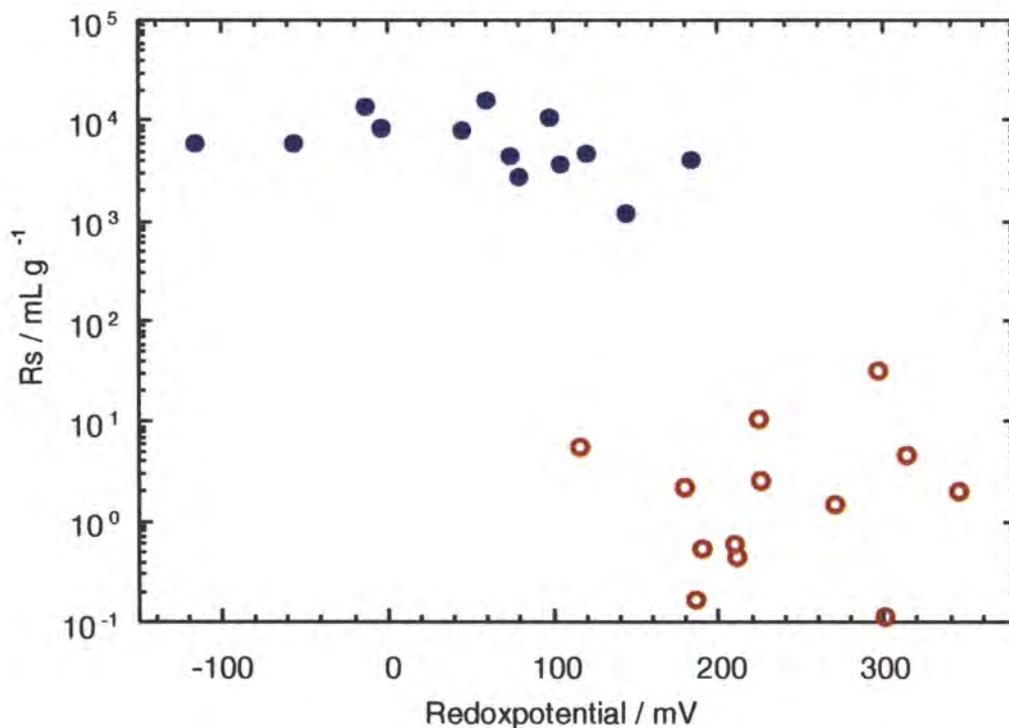
#### 8.5.5 Radionuklidrückhaltung durch Sorption

Wie bereits diskutiert (Bild 8-19), wird die Definition einer „praktischen“ Löslichkeit der polyvalenten Metallionen in einer gegebenen aquatischen Lösung durch die Bildung von Pseudokolloiden weitgehend vereitelt. Dieselbe Schwierigkeit besteht bei der Bestimmung des geochemischen Sorptionskoeffizienten  $R_s$  eines Transurans. Dieser Koeffizient wird gemeinhin als  $K_d$ -Wert [ml/g] interpretiert und vielfach als physikalischer Parameter zur Quantifizierung des Retentionsprozesses von Radionukliden in der natürlichen Umgebung benutzt. Ein typisches Beispiel ist in Bild 8-19b gezeigt /KIM 86/, in dem die Sorptionskoeffizienten  $R_s$  von Cm(III) nach Ultrafiltration aufgetragen sind. Für das nichtsaline Grundwasser Gohy-1061 ist der bestimmte  $R_s$ -Wert eine Funktion der Porenweite und variiert um 2,5 Größenordnungen. In Übereinstimmung mit der Löslichkeit von Americium in dem stark salinen Grundwasser Gohy-2122 zeigt der Sorptionskoeffizient für Curium nur eine geringe Abhängigkeit von der verwendeten Porenweite.

Umfangreiche Sorptionsdaten liegen für Technetium, Neptunium, Plutonium und Americium in ausgewählten Sediment/Grundwassersystemen des Deckgebirges von Gorleben /KIM 95/ vor. Batch-Versuche wurden für bindige und sandige Sedimente, Säulenversuche für sandige Sedimente durchgeführt. Analog zur Löslichkeit hängt die Sorption im wesentlichen von der Oxidationsstufe des vorliegenden Radionuklids ab, daneben aber auch durch die Stabilisierung durch Komplexbildung und Bildung von Huminkolloiden.

Der Einfluß des Eh-Wertes auf den Sorptionskoeffizienten ist in Bild 8-20 für die Sorption des redoxsensitiven Tc an bindige Sedimente (Tonanteil > 5%) gezeigt. Bei Eh-Werten < 140 mV finden sich fast ausschließlich hohe  $R_s$ -Werte von  $10^4$  ml/g, wie sie für Tc(IV) zu erwarten sind. Unter oxidierenden Bedingungen hingegen liegt das Tc heptavalent vor und zeigt nur eine sehr geringe Sorption ( $0,1 < R_s < 10$  ml/g). Ebenso ist in sandigen Sedimenten die Tc-Sorption zu vernachlässigen.

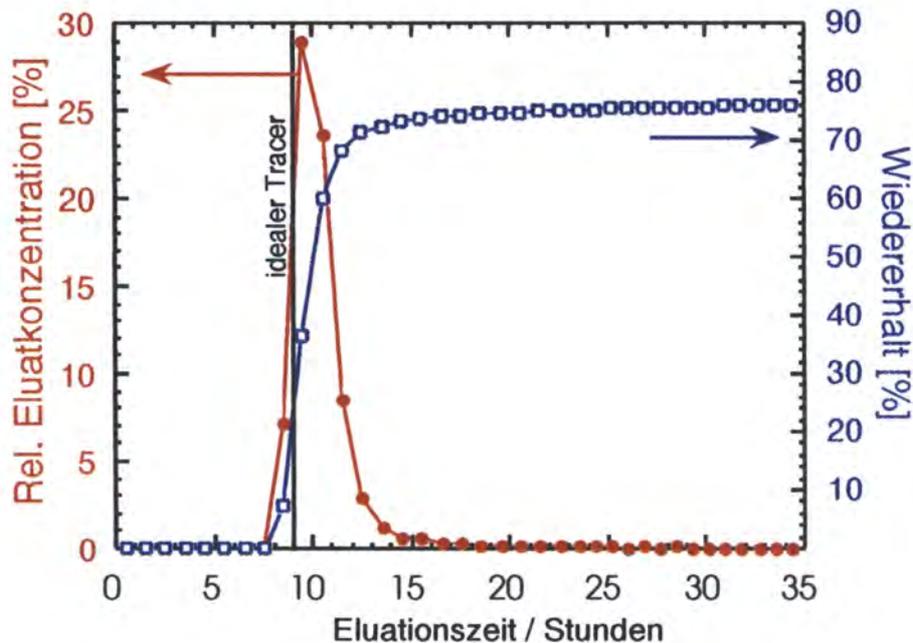
Der Einfluß von Huminkolloiden auf die Sorption sei am Beispiel des Am diskutiert. Batch-Experimente liefern für bindige Sedimente hohe  $R_s$ -Werte  $> 10^4$  ml/g, für sandige Sedimente im allgemeinen Werte zwischen 500 und  $10^4$  ml/g. In stark huminstoffhaltigen Grundwässern hingegen ergibt sich an sandige Sedimente nur eine geringe Sorption. Wie Bild 8-21 zeigt, läßt sich dies durch Säulenexperimente bestätigen: Die Hauptmenge des Am hat praktisch dasselbe Durchbruchverhalten wie der ideale Tracer, d.h. sie wird überhaupt nicht zurückgehalten. Ein Rest von etwa 25 Prozent des Am wird bereits in den ersten Zentimetern der Säule (Gesamtlänge 25 cm) zurückgehalten und ist somit weitgehend immobil.



**Bild 8-20:** Sorptionskoeffizienten von Technetium in verschiedenen bindigen Gorleben-Sediment/Grundwasser-Systemen als Funktion des Redoxpotentials /KIM 95/ (blau: reduz., rot: oxid. Wässer)

Dieses Beispiel soll verdeutlichen, daß die Beschreibung der Radionuklidrückhaltung für die höherwertigen Aktinidionen bei Anwesenheit von Kolloiden durch einen einfachen  $K_d$ -Ansatz oft nicht möglich ist und die zugrunde liegenden Reaktions-

mechanismen genauer analysiert werden müssen. Damit erscheint auch eine vergleichende Gegenüberstellung von Literaturdaten zur Sorption von Radionukliden in granitischen Systemen und im Sedimentgestein des Deckgebirges von Gorleben nur bedingt aussagekräftig.



**Bild 8-21:** Durchbruchkurve und Wiedererhalt für  $^{241}\text{Am(III)}$  in Sand in einem stark huminstoffhaltigen Gorleben-Grundwasser /KIM 94b/

### 8.6 Vergleichende Gegenüberstellung

Bei der Endlagerung hochradioaktiver Abfälle in stabilen geologischen Formationen, sei es in Salz- oder in Hartgesteinsformationen, stellt ein möglicher Zutritt von Grundwässern oder Laugen zu den Einlagerungsörtern und die sich daran anschließende Mobilisierung von RN den Beginn eines Ereignisablaufs mit der Möglichkeit der Strahlenbelastung zukünftiger Generationen dar.

Zum Nachweis der Langzeitsicherheit der Endlagerung sind Aussagen zu den radiologischen Konsequenzen für den Fall erforderlich, daß Grundwässer die Abfallprodukte erreichen und Inventaranteile mobilisieren und transportieren sollten. Wichtige Prozesse stellen dabei die Korrosion der Abfallprodukte, die Freisetzung von Radionukliden, die Rückhaltung von anfänglich mobilisierten Radionukliden an sekundären Barrieren und ihre Migration entlang möglicher Grundwasserfließwege bis hin zur Biosphäre dar. Für die Aufklärung der ablaufenden Prozesse und Reaktionen wird der Einfluß des geochemischen Milieus auf das Verhalten der Radionuklide unter

natürlichen Bedingungen untersucht, wobei die durch technische und geotechnische Barrieren verursachte Änderung des geogenen geochemischen Milieus berücksichtigt werden muß. Insbesondere in der näheren Umgebung („Nahfeld“) der endgelagerten radioaktiven Abfälle unterscheidet sich das geochemische Milieu deutlich von dem der ungestörten Gesteinsformation. Die grundsätzliche Vorgehensweise zur Bewertung der geochemischen Wirksamkeit des Multibarrierensystems ist für Hartgesteins- und Salzformationen ähnlich:

1. Es müssen die wichtigsten Parameter identifiziert werden, die das geochemische Milieu beschreiben: Salinität, Redoxpotential und pH-Wert der Grundwässer, Konzentration gelöster Kohlensäure und anderer Grundwasserinhaltsstoffe, insbesondere von Huminstoffen.
2. Es müssen die wichtigsten geochemischen Reaktionen der Abfallbehälter, Abfallprodukte aber auch der Wirtsgesteine beschrieben werden.
3. Es müssen die wichtigsten geochemischen Reaktionen der Radionuklide beschrieben werden: Redoxreaktionen, Hydrolyse und Komplexierung mit natürlichen Liganden in Lösung, thermodynamische Löslichkeit, Kolloidbildung, Mitfällung und Sorption auf Oberflächen der Geomatrix.

Wichtige Hilfsmittel dafür sind geochemische Rechencodes auf der Basis von Mineral/Lösungs-Gleichgewichten mit zugehörigen thermodynamischen Datenbasen sowie gekoppelte Geochemie- und Transportcodes. Beide Hilfsmittel befinden sich international in Entwicklung. Unzulänglichkeiten bestehen zum einen in der noch unvollständigen Datenbasis für langlebige Radionuklide und in der Möglichkeit, den kolloidgetragenen Radionuklidtransport belastbar beschreiben zu können.

Im vorliegenden Vergleich der Verhältnisse in Hartgesteins- und Salzformationen wurden beim Endlager im Salz Abfallgebirge und Deckgebirge, beim Endlager im Hartgestein Abfallgebirge und Bentonitbarriere als wichtige geochemische Barrieren identifiziert. Das Nahfeld wird in beiden geologischen Formationen reduzierend sein. Unter diesen Bedingungen liegen die radiotoxizitätsbestimmenden Aktiniden in ihren thermodynamisch schwerlöslichen, aber zur Kolloidbildung neigenden drei- und vierwertigen Oxidationsstufen vor. Insbesondere Radionuklidrückhaltung durch Sorption an Behältermaterialien spielt eine wichtige Rolle. Korrosionsraten von abgebranntem Kernbrennstoff scheinen in beiden geologischen Formationen ähnlich zu sein. Ein unter dem Gesichtspunkt der Endlagersicherheit sinnvoller geochemischer Vergleich beider Formationen auf Grundlage maximaler Konzentrationen wichtiger Nuklide ist aber heute noch nicht möglich, weil die Variationsbreite mögli-

cher saliner Wässer in Salzformationen derart groß ist, daß bisher nur unrealistisch hohe Lösungskonzentrationen angegeben werden können.



## 9 ZUSAMMENFASSUNG UND OFFENE FRAGEN

Die Gegenüberstellung von Endlagerkonzepten in Salz und Hartgestein erfolgte mit dem Ziel, in den einzelnen Teilbereichen - von der Standorterkundung bis hin zur Barrierenwirksamkeit - die charakteristischen Unterschiede herauszuarbeiten und Vor- und Nachteile festzustellen. Wenn auch zum jetzigen Zeitpunkt noch keine quantitativen Angaben verlässlich möglich sind, die eindeutig den Vorteil der einen und die Unterlegenheit der anderen Wirtsgesteinsart belegen, so sind bei der Beschäftigung mit GEISHA keine Aspekte zu Tage getreten, die zu Zweifeln am Endlagermedium Salz Anlaß geben würden. Eher das Gegenteil ist der Fall, und die in Deutschland schon früh getroffene Entscheidung für Salz erscheint vernünftig und nachvollziehbar.

So liegen deutsche Granitvorkommen in einer geologisch wesentlich unruhigeren Region als skandinavische Kristalline und sind intensiver geklüftet und gestört. Auch sind die deutschen Kristallinkomplexe wesentlich kleinräumiger als die in Skandinavien oder Kanada. Dadurch wird die Auswahl geeigneter Standorte, insbesondere für ein relativ großes Kernenergieprogramm, wesentlich erschwert. Hingegen sind in Deutschland die nord- und mitteldeutschen Salzlagerstätten schon früh, teils durch Aufschlüsse an der Erdoberfläche, teils durch Tiefbohrungen und Bergwerke, bekannt geworden. Die gute Unterscheidbarkeit zwischen den Eigenschaften der Salzlagerstätten und des Nebengesteins ist eine günstige Voraussetzung für ihre Erkundung. Insgesamt ist somit in Deutschland der Kenntnisstand zu Salz deutlich besser und umfangreicher als zu Hartgestein.

Aufgrund der unterschiedlichen thermischen Eigenschaften von Bentonit/Granit einerseits und Salzgrus/Steinsalz andererseits sowie unterschiedlicher Grenztemperaturen am Übergang Endlagerbehälter-Versatz, sind Hohlraumbedarf und Behälterzahl in Hartgestein deutlich (~Faktor 3) höher als in Steinsalz. Dementsprechend höher sind die Kosten eines Endlagers in Hartgestein. Zusatzkosten ergeben sich beim Endlager in Hartgestein durch die teurere Ausbruchtechnik und höhere Betriebskosten, vor allem aber durch die benötigten großen Mengen an Bentonit. Weiter dürften große Kristallinvolumina geringer Durchlässigkeit in Deutschland nur sehr schwer lokalisierbar sein; wahrscheinlich würde eine größere Zahl an Tiefbohrungen erforderlich sein, um ein belastbares Modell für die Standortregion erstellen zu können. Dadurch würde sich in Deutschland die sonst gültige Aussage - die Erkundungskosten in Granit liegen deutlich unter denen in Salz - wahrscheinlich zugunsten von Salz verschieben.

GEISHA weist eine gewisse Unausgewogenheit auf, die im Zuge der konzeptionellen Planung des Endlagerbehälters Eingang in die Studie fand. Während der POLLUX-Behälter für Salz eine dreifache Funktion hat - er ist Endlager-, Zwischenlager- und Transportbehälter und erfüllt die Vorschriften für Typ-B(U)-Verpackungen - ist der Hartgestein-Behälter bei GEISHA nur als Endlagerbehälter verwendbar. Außerdem ist er in seiner Konzeption einfacher als die ausländischen Behälter, die für denselben Zweck vorgesehen sind. Beim Nachweis der Langzeitsicherheit kommt der Barrierenwirkung dieses Behälters jedoch besondere Bedeutung zu. Es ist daher zu erwarten, daß sich dieser Behälter bei seiner weiteren Entwicklung wesentlich verteuern wird.

Für Hartgestein wurde nur die einsöhlige Streckenlagerung betrachtet, obwohl die für ein großes Nuklearprogramm erforderlichen Einlagerungsgebiete wahrscheinlich nicht auf einem einzigen Horizont Platz finden werden. Mehrsöhligkeit in Hartgestein dürfte jedoch große Ansprüche an Auslegung und Sicherheitsnachweise stellen.

Höchster Stellenwert kommt dem Unterschied zu, der für die Vorgehensweise zur Erbringung des Sicherheitsnachweises typisch ist. Bei Hartgestein ist der Nachweis der Tauglichkeit der technischen und geotechnischen Barrieren konzeptführend. Dies ist z.B. darin begründet, daß eine genaue Bestimmung der vernetzten Wegsamkeiten und Strömungsverhältnisse in der geklüfteten Hartgesteinsbarriere, wenn überhaupt, nur mit extrem hohem Aufwand möglich ist. Der Sicherheitsnachweis ist daher über die Barrierenwirksamkeit des Endlagergebindes und des Bentonits unter Berücksichtigung des sich zeitlich ändernden geochemischen Milieus zu erbringen. Der Schwerpunkt liegt beim Endlagerbehälter, den Korrosionsprodukten und vor allem beim Bentonit mit seinen „maßgeschneiderten“ Eigenschaften. Hingegen ist bei Steinsalz der Nachweis der Funktionstauglichkeit der geologischen Barriere konzeptführend. Beim Salzstock Gorleben zeigte sich beispielsweise, daß der Stoffbestand der Lösungseinschlüsse seit 250 Mio. Jahren nicht durch wäßrige Lösungen aus dem Deckgebirge und dem Nebengestein verändert worden ist und die geologische Barriere somit über diesen Zeitraum ihre Funktion erfüllt hat. Vergleicht man schließlich die Robustheit der wesentlichen Barrieren, so hat die Nahbereichsbarriere bei Hartgestein die gleiche Wirksamkeit zu erbringen wie hunderte Meter Salz.

Bei beiden geologischen Formationen kann das mit der Endlagerung verbundene Schutzziel erreicht werden. Hervorzuheben ist der charakteristische Unterschied, wonach die Anwesenheit von Grundwässern im Hartgestein-Endlager die Normalität

darstellt, während mit Zutritt von Laugen in Salz nur beim Störfall zu rechnen ist. Die bei den unterschiedlichen Langzeitsicherheitsanalysen ausgewiesenen Dosisunterschiede für die beiden Endlagermedien sind nicht medienspezifisch, sondern vor allem durch Annahmen zu den Endlagerkonzepten und die Wahl der Daten bedingt.

Der Kenntnisstand hinsichtlich der geochemischen Vorgänge bei der Freisetzung im Nahfeld und der sich daran anschließenden Nuklidmigration ist für beide geologische Formationen etwa gleich. Erforderlich ist eine Verbesserung dieses Kenntnisstandes und dessen Berücksichtigung in den Langzeitsicherheitsanalysen. In den bisherigen Langzeitsicherheitsanalysen wurden geochemische Vorgänge in nicht ausreichendem Maße berücksichtigt. Dadurch ist die Hauptzielrichtung zukünftiger FuE-Arbeiten charakterisiert.

Im folgenden sind einige konkreten Fragen aufgeführt, die bei einem tiefergehenden Vergleich von Endlagerkonzepten in den besprochenen Wirtsgesteinsvarianten zu klären sind bzw. die Gegenstand zukünftiger FuE-Arbeiten sein sollten:

#### 1. Standorterkundung:

Schwierig ist zum jetzigen Zeitpunkt eine Aussage dahingehend, bei welchem Wirtsgestein die „Treffsicherheit“ höher ist, ob in Zielrichtung auf Klüftzonen in Hartgestein oder auf Laugentaschen bei Steinsalz. Noch ist man bei der untertägigen Erkundung häufig auf Verfahren angewiesen, bei denen der Wirtsgesteinskörper mit Bohrungen durchörtert werden muß. Durch Kombination mehrerer, möglichst zerstörungsfreier, physikalischer Verfahren kann dieses Problem wahrscheinlich überwunden werden.

#### 2. Geotechnische Barrieren:

In einem Endlager in einer Steinsalzformation ist Salzgrus als Versatzmaterial vorgesehen. Ein Nachteil von Salzgrus besteht darin, daß er keine Rückhaltewirkung für freigesetzte Radionuklide aufweist. Dies kann durch geeignete Zuschlagstoffe, z.B. Hydroxylapatit, kompensiert werden. Beim amerikanischen Endlager für Transuranabfälle (WIPP), das in Steinsalz errichtet wurde, wird eine Zugabe von 30 Prozent Bentonit zum Salzgrus erwogen.

Bei Hartgestein hat sich hochkompaktierter Bentonit als Verfüll- und Puffermaterial mit günstigen Rückhalteeigenschaften und hoher mechanischer Stabilität erwiesen. Jedoch wäre es erstrebenswert, die Grenztemperatur ( $\sim 100^{\circ}\text{C}$ ) etwa durch geeignete Zuschlagstoffe zu erhöhen, ohne Einbußen bei der hydraulischen Leitfähigkeit und der Sorption zu erleiden. Die damit verbundenen Vorteile bei der Behälter- und Endlagerauslegung könnten beträchtlich sein.

Bentonit ist außerdem in Form kompaktierter Bentonitblöcke teuer. Als Alternative bietet sich wie beim französischen Konzept Bentonit-Granulat als Ausgangsmaterial an, dessen Zusammensetzung im Hinblick auf Schütffähigkeit zu optimieren wäre. Erfahrungen aus bisherigen, vom BMBF geförderten Vorhaben könnten genutzt werden; Entwicklungsarbeiten zum Schachtverschluß und das Verfüllkonzept für Morsleben könnten diesbezüglich ein Anknüpfungspunkt sein.

Auflockerungszonen um untertägige Hohlräume und Strecken sind potentielle Ausbreitungspfade für Schadstoffe. Wichtig ist daher die Entwicklung von Verfahren zur Verbesserung der Barrierenwirkung des Gebirges, d.h. der Abdichtung solcher gestörter Zonen. Dies trifft insbesondere auf Hartgesteinsformationen zu, in denen mit einer Ausheilung dieser Störzonen nicht zu rechnen ist.

### 3. Auslegung des Endlagerbehälters und des Endlagers:

In GEISHA wurden Transport und Zwischenlagerung außer acht gelassen, während der POLLUX-Behälter auch die sich daraus ergebenden Anforderungen erfüllt. Eine weitergehende Untersuchung könnte sich an das Prinzip des amerikanischen MPC (Multi Purpose Canister) anlehnen, bei dem ein Innenbehälter, der die Brennelemente hält, für die wechselnden Aufgaben von der Konditionierung bis ins Endlager mit unterschiedlichen *overpacks* versehen wird. Eine ähnliche Technik, die sogenannte „Frühe Kapselung“, wird zur Zeit in Deutschland entwickelt /DAN 97/. Dabei werden abgebrannte Brennelemente bereits im Lagerbecken der Kernkraftwerke verpackt. Bis zur endgültigen Entscheidung über den Entsorgungsweg bis hin ins Endlager werden nur noch diese Kapseln gehandhabt.

Das Endlagerkonzept bei GEISHA orientiert sich am schwedischen KBS-3-Konzept, das die Einlagerung in vertikalen Bohrlöchern favorisiert. Diesbezüglich existiert noch ein Optimierungsspielraum, wobei andere Einlagerungsarten (horizontale Bohrlöcher, Streckenlagerung, Mehrsöhligkeit) zu berücksichtigen wären. Alternative Verfüll- und Puffermaterialien, die höhere Temperaturen zulassen, sollten in eine derartige erweiterte Endlagerplanung einbezogen werden.

Der für die Kernmaterialüberwachung erforderliche Inspektionsaufwand ist beim zugrunde gelegten Hartgesteinskonzept größer als in Salz. Es ist sicherzustellen, daß jeder Einzelabschirmbehälter beladen in den Schacht einfährt und leer zurückkehrt. Falls in Granit die Einlagerungsstrecken offen stehen, bis alle Bohrlöcher befüllt sind, könnte sich für die Überwachungsbehörde die Notwendigkeit ergeben, die Bohrlochverschlüsse bis zum Abwerfen der Strecken zu kontrollieren. Dies würde zu einem erheblichen Inspektionsaufwand führen.

Schließlich ist auch Kritikalitätssicherheit bei Endlagerung in Salz auf einfachere Weise zu erreichen als in Hartgestein. Um Unterkritikalität zu gewährleisten, muß bei Hartgestein durch administrative Maßnahmen ein Mindestabbrand und somit eine Höchstmenge an Restspaltstoff in den endzulagernden Brennelementen gewährleistet werden.



## LITERATURVERZEICHNIS

- /ALL 78/ ALLEN, E.J., Criticality Analysis of Aggregations of Actinides from Commercial Nuclear Waste in Geological Storage, ORNL/TM-6458 (1978).
- /BEC 89/ BECHTHOLD, W., et al., Systemanalyse Mischkonzept (SAM), Abschlußbericht Hauptband, KWA-2190 A1, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Projektgruppe Andere Entsorgungstechniken (Dezember 1989).
- /BFS 96/ Stand der Erkundung, Gorleben Info Nr. 57, Bundesamt für Strahlenschutz, Informationsstelle Gartow (Dezember 1996).
- /BOR 93/ BORSTEL, L.E., von, Lösungen in marinen Evaporiten, Bundesamt für Strahlenschutz, BfS-SCHR-10/93 (1993).
- /BOR 97/ BORNEMANN, O., MINGERZAHN, G., Zwischenbericht zum Arbeitspaket 9G 41211000 (Geologie Erkundungssohle, Mineralogie, Geochemie), BGR-Bericht (1997), in Vorbereitung.
- /BRÄ 94/ BRÄUER, V., et al., Endlagerung stark wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle in tiefen geologischen Formationen Deutschlands - Untersuchung und Bewertung von Regionen in nichtsalinaren Formationen, BGR Hannover (November 1994).
- /BUC 91/ BUCKAU, G., Dissertation, Freie Universität Berlin (1991).
- /BUH 91/ BUHMANN, D., NIES, A., STORCK, R., Analyse der Langzeitsicherheit von Endlagerkonzepten für wärmeerzeugende Radioaktive Abfälle, GSF-Bericht 27/91, Systemanalyse Mischkonzept, TA7, KWA-5702A, Kernforschungszentrum Karlsruhe (Juli 1991).
- /BUT 91/ BUTCHER, B.M., The Advantages of a Salt/Bentonite Backfill for Waste Isolation Pilot Plant Disposal Rooms, SAND90-3074, Sandia National Laboratories, Albuquerque (April 1991).
- /CHO 83/ CHOPPIN, G.R., Radiochim. Acta 32, 43 (1983).
- /CLO 84/ CLOSS, K.D., et al., Systemstudie Andere Entsorgungstechniken, Abschlußbericht Hauptband, KWA-2190/1, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Projektgruppe Andere Entsorgungstechniken (Dezember 1984).
- /DAN 97/ DANNERT, V., PEEHS, M., BANCK, J., Frühe Kapselung abgebrannter Brennelemente: Entkopplung der Anforderungen aus Betrieb und Entsorgung, Jahrestagung Kerntechnik, Aachen (Mai 1997).

- /DGG 93/ Empfehlungen des Arbeitskreises „Salzmechanik“ der DGGT zur Geotechnik der Untertagedeponierung von besonders überwachungspflichtigen Abfällen im Salzgebirge - Ablagerung in Bergwerken - Bautechnik 70 (1993) 734-744.
- /DIA 95/ DIAZ, P., GRAMBOW, B., eingereicht bei Geochimica Cosmochimica (1995).
- /DIN 96/ DIN V ENV 1997-1, Eurocode 7, Entwurf, Berechnung und Bemessung in der Geotechnik, Teil 1: Allgemeine Regeln, Deutsche Fassung ENV 1997-1: 1994, Berlin (April 1996).
- /DIN 96a/ DIN V 1054-100, Sicherheitsnachweise im Erd- und Grundbau, Teil 100: Berechnung nach dem Konzept mit Teilsicherheitsbeiwerten, Berlin (April 1996).
- /DOE 95/ DOE starts work on repository environmental impact statement, Office Civ. Rad. Waste Mgmt., Yucca Mt. Project (1995) 115.
- /DRE 74/ DREYER, W., Gebirgsmechanik im Salz, F. Enke Verlag Stuttgart (1974).
- /ENG 92/ ENGELMANN, H.J., et al., Direkte Endlagerung ausgedienter Brennelemente, Strahlenexposition im bestimmungsgemäßen Betrieb, DEAB T52, DBE Peine (August 1992).
- /EUG 80/ EUGSTER, H.P., HARVIE, C.E., WEARE, J.H., Geochim. Cosmochim. Acta 44 (1980) 1335-1347
- /FOR 86/ FORSYTH, R.S. et al., The corrosion of spent UO<sub>2</sub> fuel in synthetic groundwater, J. Nucl. Mat. 138 (1986) 1.
- /FRI 89/ FRITZ, B., KAM, M., Chemical Interaction Between the Bentonite and the Natural Solutions from the Granite Near a Repository for Spent Nuclear Fuel, SKB Techn. Rep. 85-10, (1985).
- /GAU 95/ GAUTSCHI, A., Kristallin: Untersuchungen, Resultate, weitere Vorgehen, NAGRA informiert, Heft 25, Wettingen (März 1995) 10-21.
- /GRA 86/ GRAMBOW, B., HERMANSSON, H. P., BJÖRNER, I. K., WERME, L., „Glass/water reaction with and without bentonite present - experiment and model“, Scientific Basis for Nuclear Waste Management IX, edited by L. Werme (Mater. Res. Soc. Proc.), Pittsburgh (1986) 187-194.
- /GRA 89/ GRAMBOW B., Spent Fuel, Dissolution and Oxidation - an Evaluation of Literature Data, SKB Techn. Rep. 89-13, Stockholm (1989).
- /HER 83/ HERRMANN, A.G., Radioaktive Abfälle, Springer-Verlag, Berlin (1983).

- /HER 95/ HERRMANN, A.G., RÜHE, S., Lösungseinschlüsse in Zechsteinevaporiten, Kali und Steinsalz, Bd. 11/10 (Mai 1995) 345-354.
- /JOH 88/ JOHNSON, L., SHOESMITH, D., „Spent fuel“ Waste Forms for the Future (W. Lutze, R. Ewing, Ed.) Elsevier, Amsterdam (1988).
- /JOH 94/ JOHNSON, L., The Disposal of Canada's Nuclear Fuel Waste: The Vault Model for Postclosure Assessment, AECL-10714, COG-93-4 (1994).
- /KIM 87/ KIM, J.I., BUCKAU, G., KLENZE, R., Natural Analogues in Radioactive Waste Disposal (B. Come, N. Chapman, (Graham and Trotman, London (1987) 289.
- /KIM 86/ KIM, J.I., Handbook on the Physics and Chemistry of Actinides, Vol. 4, Herausg. A.J. Freeman, C. Keller, (North Holland, Amsterdam, 1986).
- /KIM 90/ KIM, J.I., CEC Report EUR 12858 EN, ( B. Come, ed.), Brüssel (1990).
- /KIM 91/ KIM, J.I., Radiochim. Acta 52/53, 71 (1991).
- /KIM 93/ KIM, J.I., Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol. 294 (1993) 3.
- /KIM 94/ KIM, J.I., MRS Bull. XIX 12 (1994) 47.
- /KIM 94b/ KIM, J.I., et al. "Colloid Migration in Groundwaters: Geochemical Interaction of Radionuclides with Natural Colloids", Technischer Bericht RCM 01194, Institut für Radiochemie, TU München (1994).
- /KIM 95/ KIM, J.I., Nuklidmigration im Deckgebirge und Salzstock Gorleben, Absch. Ber. BfS, RCM 01495 (1995).
- /KOR 94/ KORTHAUS, E., private Mitteilung (1994).
- /LAA 93/ LAAKSOHARJU, M., An Approach to Qualify Classification of Deep Groundwaters in Sweden and Finland, SKB Techn. Rep. 93-27 (1993).
- /LOI 95/ LOIDA, A., GRAMBOW, B., GECKEIS, H., DRESSLER, P., "Processes governing radionuclide Release from highburnup spent fuel (Proc. Symp.)", Mat. Res Soc. 1995).
- /MCK 93/ MACKINLEY, I.G., SAVAGE, D., Proceedings of the Fourth International Conference on the Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere, Charleston, USA (12.-17. Dez. 1993) 657-665.
- /NAG 85/ NAGRA, Projekt Gewähr, Bd. 1-5, Nagra Gewähr Report Series NGB 85-01/05, Nagra, Wettingen, Schweiz (1985).

- /NAG 94/ KRISTALLIN-I, Safety Assessment Report, NAGRA Techn. Rep. 93-22 (Juli 1994).
- /NOS 96/ NOSECK, U., Gegenüberstellung einiger LZS-Analysen für Endlager in Granit- und Salzformationen, GRS-135, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit, Braunschweig (1996).
- /PAP 94/ PAPP, R., „Planungsgrundlagen und Ergebnisse der Systemanalyse Endlagerkonzepte“, Sammlung der Vorträge Absch. Veransth. SEK, Nov. 1993, AE Nr. 29, Forschungszentrum Karlsruhe, PTE (1994) 4-1 - 4-7.
- /PET 90/ PETTERSSON, C., et. al., „Characterisation of Humic Substances from Deep Groundwaters in Granitic Bedrock in Sweden“, Report SKB 90-29 (1990).
- /PNC 92/ H-3 First Progress Report of R&D on Geological Disposal for High-Level Waste, PNC TN 141093-059 (1992).
- /PSE 85/ Projekt Sicherheitsstudien Entsorgung, Abschlußbericht, Hahn-Meitner-Institut Berlin (1985).
- /QUI 95/ QUIÑONES, J., GRAMBOW, B., LOIDA, A., GECKEIS, H., „Coprecipitation phenomena of trivalent ions related to spent fuel dissolution“, (Spent Fuel Workshop, Überlingen, Sept. 1995), zur Publikation in J. Nucl. Materials.
- /RAY 96/ RAYNAL, J., DARDAINE, M., „Conception et comportement des barrières ouvragées“, Le stockage direct des combustibles irradiés, Abschlußbericht Groupe de Travail, Bd. 2 (Alexandre, D., Fabre, J.C.), CEA-ANDRA (1996) 137-158.
- /RÖT 95/ RÖTHEMEYER, H., Stand und Perspektiven der Endlagerforschung in Deutschland, Kali und Steinsalz, Bd. 11/10 (Mai 1995) 330-335.
- /ROT 96/ Rothfuchs, T., „Spezielle Sicherheitsaspekte der Streckenlagerung; der TSS-Versuch“, Direkte Endlagerung (Sammlung der Vorträge 7. und 8. Dezember 1995), FZKA-PTE Nr. 2, Forschungszentrum Karlsruhe (1996) 269-284.
- /RSK 83/ Sicherheitskriterien für die Endlagerung radioaktiver Abfälle in einem Bergwerk, Empfehlung der Reaktor-Sicherheitskommission, Bundesanzeiger Jhrg. 35, Nr. 2 (1983).
- /SKB 92/ Final Disposal of Spent Nuclear Fuel, Importance of the Bedrock for Safety, SKB Techn. Rep. 92-20 (1992).
- /SKB 96/ Äspö Hard Rock Laboratory, 10 Years of Research, SKB Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company, Stockholm (Juni 1996).

- /SKI 91/ SKI PROJECT-90, Vol. I, Statens Kärnkraftinspektion Swedish Nuclear Power Inspectorate Stockholm, Schweden, SKI Technical Report 91:23 (August 1991).
- /SKI 91a/ Statens Kärnkraftinspektion Swedish Nuclear Power Inspectorate Stockholm, Schweden, SKI Technical Report 91:23 (August 1991).
- /SMA 93/ SMAILOS, E., Corrosion of high-level Waste packaging material in brines, Nuclear Technology, Vol. 10 (Dezember 1993) 343-350.
- /STO 88/ STORCK, R., et al., Performance Assessment of Geological Isolation Systems for Radioactive Waste (PAGIS): Disposal in Salt Formations. EUR 11 778 EN, GSF-Bericht 23/88, Commission of the European Communities, Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH München, Brüssel-Luxemburg (1988).
- /STR 85/ STROES-GASCOYNE „Dissolution of used CANDU-fuel at various temperatures and redox conditions“; (Proc. Mat. Res. Soc. Symp.) Vol. 50 (1985) 317-326.
- /STU 81/ STUMM, W., MORGAN, J.J., Aquatic Chemistry, 2. Ausg. (John Wiley and Sons, New York, 1981).
- /TVO 92/ Final Disposal of Spent Nuclear Fuel in the Finnish Bedrock, Techn. Rep. YJT 92-31E, Helsinki (1992).
- /VEN 88/ VENET, P., HAIJTINK, B., Coûts et modes de financement de l'évacuation géologique des déchets radioactifs, Kommission d. Europäischen Gemeinschaft, EUR 11837, Brüssel (1988).
- /WAN 86/ WANNER, H., „Modelling radionuclide speciation and solubility limits in the near-field of a deep repository“, Scientific Basis for Nuclear Waste Management IX, edited by L. Werme (Mater. Res. Soc. Proc.) Pittsburgh, (1986).
- /WER 83/ WEREN, B.H., et al., Nuclear Criticality Safety Analysis of a Spent Fuel Waste Package in a Tuff Repository, Lawrence Livermore National Laboratory, UCRL-15575 (Dezember 1983).
- /WER 89/ WERME, L.O., FORSYTH, R.S., The SKB Spent Fuel Corrosion Programme - Status Report 1988; SKB-Techni. Rep. 89-14, Stockholm (1989).
- /WHI 94/ WHITAKER, S., AECL Strategy For Surface-Based Investigations of Potential Disposal Sites and the Development of a Geosphere Model, AECL Research, Whiteshell Lab., Kanada, SKB-Techn. Rep. 94-18, Stockholm (Mai 1994).
- /WIL 89/ WILSON, C.N., GRAY, W.J., Measurement of Soluble Nuclide Dissolution Rates from Spent Fuel, PNL-SA1720, Pacific Northwest Lab., Richland, USA (1989).





- <sup>13</sup> Kakirit: Dicht von tektonisch erzeugten Rutschungen und Klufflächen durchzogenes Gestein, das wegen seines Gefüges als Bruchbrekzie bezeichnet wird. Gehen die Brucherscheinungen bis in das einzelne Korn der Gesteine hinein, bilden sich Kataklastite.
- <sup>14</sup> Kataklastik: Tektonisch bedingte Zerbrechungserscheinungen in und an Einzelmineralen eines Gesteines. Sie kann selektiv sein, indem sie nur einzelne spröde Minerale betrifft und andere Minerale völlig intakt läßt, oder aber sämtliche Gefügebestandteile des Gesteins erfassen. Als Extremfall würde eine Mylonitisierung (s.d.) erfolgen. Durch Kataklastik geprägte Gesteine werden Kataklastite (→ Kakirit) genannt. Sie besitzen ein kataklastisches Gefüge.

## ABKÜRZUNGSVERZEICHNIS

<b>ANDRA:</b>	Agence nationale pour la gestion de déchets radioactifs (Frankreich)
<b>BE:</b>	Brennelement
<b>BGR:</b>	Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe
<b>BMBF:</b>	Bundesministerium für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie
<b>BMFT:</b>	Bundesministerium für Forschung und Technologie
<b>BMI:</b>	Bundesministerium des Innern
<b>BMU:</b>	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit
<b>CEA:</b>	Commissariat à l'énergie atomique (Frankreich)
<b>Ci:</b>	Curie
<b>DGGT:</b>	Deutsche Gesellschaft für Geotechnik
<b>EAB:</b>	Einzelabschirmbehälter
<b>ELG:</b>	Endlagergebäude
<b>FuE:</b>	Forschung und Entwicklung
<b>FZK-INE:</b>	Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Institut für Nukleare Entsorgungstechnik
<b>FZK-PTE:</b>	Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Projektträger des BMBF für Entsorgung
<b>FZK:</b>	Forschungszentrum Karlsruhe GmbH
<b>GNB:</b>	Gesellschaft für Nuklear-Behälter mbH
<b>GNS:</b>	Gesellschaft für Nuklear-Service mbH
<b>HAW:</b>	Highly-Active Waste
<b>HRL:</b>	Hard Rock Laboratory
<b>HTR:</b>	Hochtemperaturreaktor
<b>HWZ:</b>	Halbwertszeit
<b>IAEO:</b>	Internationale Atomenergie Organisation

<b>INE:</b>	Institut für Nukleare Entsorgungstechnik
<b>KTB:</b>	Kontinentale Tiefbohrung
<b>MAW:</b>	Medium-Active Waste
<b>MBZ:</b>	Materialbilanzzone
<b>NAGRA:</b>	Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (Schweiz)
<b>NV:</b>	Nichtverbreitung
<b>PSE:</b>	Projekt Sicherheitsstudien Entsorgung
<b>RN:</b>	Radionuklid
<b>RSK:</b>	Reaktor-Sicherheitskommission
<b>SAM:</b>	Systemanalyse Mischkonzept
<b>SKB:</b>	Svensk Kärnbränslehantering AB (Schweden)
<b>SMP:</b>	Schlüsselmeßpunkt
<b>SP:</b>	Strategischer Punkt
<b>Sv:</b>	Sievert
<b>TSS:</b>	Thermische Simulation der Streckenlagerung
<b>TVO:</b>	Teollisuuden Voima Oy (Finnland)
<b>URL:</b>	Underground Research Laboratory, Whiteshell (Kanada)
<b>VP-:</b>	Verfüll- und Puffer-